HAL
open science

Déformations et instabilités d'interfaces liquides pilotées par la diffusion d'une onde laser en milieux turbides

Julien Petit

To cite this version:

Julien Petit. Déformations et instabilités d'interfaces liquides pilotées par la diffusion d'une onde laser en milieux turbides. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2011. Français. NNT : . tel-00750211

HAL Id: tel-00750211

https://theses.hal.science/tel-00750211v1

Submitted on 9 Nov 2012

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.

N° d'ordre : 4454

THÈSE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

PAR **Julien PETIT**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : LASERS, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

Déformations et instabilités d'interfaces liquides pilotées par la diffusion d'une onde laser en milieux turbides

---

Soutenue le 14 décembre 2011

Après avis de :

M. David QUÉRÉ	Directeur de recherche au CNRS Laboratoire PMMH de l'ESPCI École Polytechnique, Paris	**Rapporteur**
M. Olivier EMILE	Professeur à l'université Rennes 1 URU 435 Physique des Lasers, Rennes	**Rapporteur**

Devant la commission d'examen formée de :

M. David QUÉRÉ	Directeur de recherche au CNRS	**Rapporteur**
M. Olivier EMILE	Professeur à l'université Rennes 1	**Rapporteur**
M. Emmanuel VILLERMAUX	Professeur à l'université de Aix–Marseille 1	**Examinateur**
M. Hamid KELLAY	Professeur à l'université Bordeaux 1	**Examinateur**
M. Hamza CHRAIBI	Maître de conférences à l'université Bordeaux 1	**Examinateur**
M. Jean-Pierre DELVILLE	Directeur de recherche au CNRS	**Directeur de thèse**

– 2011 –

Remerciements

Le travail présenté dans ce manuscrit résulte de trois années intensives passées au sein du groupe physique non–linéaire sous champ au centre de physique moléculaire optique et hertzienne (CPMOH), devenu depuis l'année 2010 le laboratoire ondes et matière d'Aquitaine (LOMA) sous la direction de Jean–Pierre Delville. Je voudrais donc témoigner toute ma gratitude à l'égard de celles et ceux qui m'ont entouré et soutenu durant cette période.

Je voudrais tout d'abord remercier très sincèrement Jean–Pierre Delville, en tant que directeur de thèse, pour m'avoir fait confiance en acceptant de m'encadrer pleinement tout au long de ces trois années, malgré un emploi du temps « de ministre ». En effet, prendre en charge la direction d'un laboratoire est difficilement compatible avec la fonction de directeur de thèse. Pourtant, sa disponibilité infaillible, son éternelle bonne humeur et son optimisme m'ont permis de mener à bien ce travail.

Je le remercie également pour ses conseils avisés, pour m'avoir poussé à donner le maximum de moi–même (toujours dans un esprit très positif) : « oui, il faut pousser le système ! » Enfin, un grand merci pour son soutien dans les moments difficiles où la manip ne fonctionnait pas, que la *micro* était « morte » au bout d'une journée d'expérience ou lors de la rédaction de ce manuscrit où des raisonnements de dernière minute ont apporté des résultats étonnants... « Mais pourquoi on y a pas pensé plus tôt ! ? » J'ai, par conséquent, énormément appris à ses côtés et je l'en remercie.

J'associe à ces remerciements les autres membres permanents de l'équipe, Régis Wunenburger, Etienne Brasselet et Hamza Chraïbi, ce dernier ayant également accepté de faire parti de mon jury de thèse.

Je souhaite vivement remercier ensuite David Quéré ainsi que Olivier Emile d'avoir accepté la lourde tâche de rapporter ce manuscrit. Un grand merci également à Emmanuel Villermaux de m'avoir fait l'honneur de sa présence au sein du jury. Enfin, un merci tout particulier à Hamid Kellay pour avoir présidé ce jury mais également pour les différents travaux que nous avons pu réaliser ensemble (et que je l'espère continueront dans le futur). Nos discussions concernant les phases de Winsor ou encore la dynamique de déstabilisation de colonnes liquides m'ont appris énormément de choses et j'ai particulièrement apprécié notre façon de travailler.

L'élaboration d'un nouveau dispositif expérimental au début de ma thèse m'a permis d'interagir fortement avec la cellule mécanique du laboratoire et par conséquent je remercie Eddie Maillard et Sandra Bosio pour leur disponibilité et leur aide malgré des dessins de pièces parfois un peu « douteux » ! De même, je voudrais remercier les personnes sans qui le bon déroulement de cette thèse, dans des conditions optimales, n'aurait été possible.

Ainsi, à ce titre je remercie les électroniciens William Benharbone, Philippe Maire, Sébastien Cassagnère et Joël Plantard, les informaticiens Richard Perrier et Hassan Akrach, Marc Tondusson pour son aide lorsque le *chiller* vacillait et enfin Jacky Geneste : « le Mac Gyver » du labo ! Merci à Laurence Quémard, Sophie Grandet, Laurette Geneste, Isabelle Guillaume (merci pour ton aide concernant la conf' à Munich !), Suzanne Bessus et Annie Commarmond pour m'avoir guidé et parfois déchargé de certaines démarches administratives. Enfin, merci à Bernadette Bergeret, du haut de sa bibliothèque, pour la recherche de papiers historiques introuvables sur le net !!!

Tout au long de ces trois années, j'ai eu le plaisir et la chance de rencontrer un certain nombre de thésards et de post–docs. En tout premier lieu (et surtout les plus proches !) je souhaite remercier vivement Matthieu Robert de Saint Vincent, dit le Vicomte, maintenant sur la route des Highlands après avoir eu du mal à décoller du bureau 120 de l'équipe Delville. Merci à toi pour m'avoir accepté dès mon arrivée dans notre petit bureau, pour m'avoir guidé et aidé scientifiquement et moralement. Je suis très heureux que cette cohabitation se soit transformée au fil du temps en une amitié sincère. Merci également à Nicolas Bertin, ton aide en MATLAB fut capitale, mais également ton humeur *bertinesque* ainsi que ta faculté sans égale à l'attrbution de surnoms !!! Bon continuation à toi au pays des kangourous. Je voudrais remercier aussi Julien Burgin (Pipeau) de passage en tant que post–doc dans notre équipe et notre bureau, devenu à présent permanent dans le bureau d'à côté avec le vrai, l'unique breton du labo, Yann (merci pour ta bonne humeur) et Peter (le beau gosse !), bref : la NOG Team. Merci également au « Blond » et à Herr von Gert pour nos franches parties de rigolade : « quoi, un cargo de bananes... ! » ; « M's-sieurs, Dames » ; « Ripoche ! »... Merci à Christine pour son soutien lors de la recherche d'enseignements pour mon contrat d'ATER et surtout pour les bonnes adresses de restos.

Merci également aux *Lounis Girls* (Silvia et Laura) et leur sourire quotidien. Merci à BenJ, Geoff, Boss, Tom Cruise (« Ai tolé »), Rokhaya, Pini, Hatim, Benoit, Pedro, François, Tini, Nick, Ulysse... J'en oublie certainement, dans ce cas merci à TOUS et je vous souhaite toute la réussite possible !

Je voudrais également remercier Kévin, David (Denis–Petit) et David (Rivière) que j'ai encadré au cours de leur stage de Licence. Les deux premiers ayant essuyés les plâtres des premières manips de déstabilisation de colonnes liquides et le dernier s'étant acharné à traquer la brisure thermique !!! Merci à vous et je vous souhaite bonne route.

Enfin, je voudrais exprimer toute ma reconnaissance et mon amour à ma famille qui n'a cessé de me soutenir tout au long de mon parcours, dans les joies comme dans les difficultés. C'est sans conteste grâce à leur aide que je suis arrivé ici aujourd'hui. En résumé : MERCI !

À mon père.

Table des matières

1 Vers la physique des jets liquides induits par laser **1**
1.1 Depuis les travaux de Félix Savart 2
1.2 Jets liquides induits par entrainement visqueux 4
1.3 Jets liquides induits électriquement 6
1.4 Jets liquides induits par une onde acoustique 8
1.5 Jets liquides induits optiquement 10
1.5.1 Déformations d'interfaces liquides par la pression de radiation optique 10
1.5.2 Technique d'impression LIFT 11
1.5.3 Technique d'ablation laser 12
1.5.4 Utilisation de la diffusion de l'onde issue d'un faisceau laser continu 14
1.6 Plan du manuscrit 17

2 Forces exercées par une onde électromagnétique non résonnante dans les liquides diélectriques **19**
2.1 La pression de radiation optique 19
2.1.1 L'expérience fondatrice de Ashkin et Dziedzic 19
2.1.2 Déformation d'une interface liquide induite par la pression de radiation optique : approche qualitative 21
2.1.3 Déformation d'une interface liquide induite par la pression de radiation optique : approche quantitative 24
2.1.4 Équations régissants l'équilibre de l'interface en absence d'écoulement 30
2.2 Contraintes exercées par la diffusion de la lumière 31
2.2.1 Déformation d'une interface liquide molle induite par la diffusion de l'onde incidente en volume : approche qualitative 31
2.2.2 Déformation d'une interface liquide molle induite par la diffusion de l'onde incidente en volume : approche quantitative 35
2.2.3 Équations régissants l'écoulement au sein du fluide et conditions aux limites 47
2.3 Conclusion 48

3 Techniques Expérimentales **49**
3.1 Dispositif expérimental 49
3.1.1 Trajet optique de l'onde incidente 49
3.1.2 Caractérisation du faisceau incident 51
3.1.3 Contrôle thermique de l'échantillon 53
3.1.4 Chaîne d'acquisition des images 53
3.1.5 Déformations obtenues suivant le sens de propagation 54
3.2 Modélisation numérique des déformations d'interfaces liquides observées . . 59

3.3 Systèmes fluides utilisés 62
3.3.1 Phases de Winsor 63
3.3.2 Phases micellaires de microémulsion 65

4 Déformations d'interfaces liquides séparant deux fluides transparents et isotropes 67
4.1 Système fluide utilisé : phases de Winsor à base de n–heptane en équilibre de Winsor III 68
4.2 Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (faisceau laser ascendant) 68
4.2.1 Évolution de la hauteur de déformation et morphologies typiques adoptées par l'interface liquide en fonction de la puissance laser . . 68
4.2.2 Régime linéaire de déformation 73
4.2.3 Méthode sans contact permettant la détermination de tensions interfaciales faibles 76
4.2.4 Régime non–linéaire de déformation : comparaison expérience – simulation numérique 79
4.2.5 Bilan 80
4.3 Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (faisceau laser descendant) 81
4.3.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser 82
4.3.2 Caractérisation du seuil d'instabilité 84
4.3.3 Instabilité de type sous–critique : mise en évidence d'un cycle d'hystérésis en puissance 88
4.3.4 Bilan 92
4.4 Illumination de l'interface liquide par deux faisceaux lasers contra–propageants 93
4.4.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation de l'interface liquide sous l'action de deux faisceaux lasers contra–propageants . . 94
4.4.2 Caractérisation du seuil d'instabilité en configuration double propagation 97
4.4.3 Cycle d'hystérésis en configuration double propagation 100
4.4.4 Bilan 101
4.5 Conclusion 103

5 Modélisations numériques des déformations d'interfaces liquides soumises uniquement aux effets de la diffusion de l'onde incidente en volume 107
5.1 Influences des effets de la force diffusive à la déformation d'une interface liquide molle 108
5.2 Modélisations numériques des déformations d'une interface liquide séparant deux phases diffusantes et isotropes 114
5.2.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser 114
5.2.2 Comportement de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau incident 115
5.2.3 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de l'écart au seuil d'instabilité 117
5.3 Conclusion 118

6 Déformations d'interfaces liquides séparant un fluide transparent et un fluide diffusant 121
6.1 Système fluide utilisé : phases de Winsor à base de n–dodécane en équilibre de Winsor III . . . 121
6.2 Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (propagation depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent) . . . 122
6.2.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation induite par les effets de la force diffusive en fonction de la puissance laser . . . 124
6.3 Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (propagation depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent) . . . 127
6.3.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser . . . 127
6.3.2 Caractérisation du seuil d'instabilité . . . 128
6.3.3 Robustesse de l'instabilité de jet liquide ainsi créée . . . 130
6.4 Illumination de l'interface liquide par deux faisceaux lasers contra–propageants 131
6.4.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser lorsque deux fasiceaux lasers contra–propageants interceptent l'interface liquide . . . 132
6.4.2 Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de $h_{max}(P)$ en configuration double propagation . . . 135
6.5 Conclusion . . . 136

7 Déformations d'interfaces liquides séparant deux fluides diffusants et isotropes 139
7.1 Système fluide utilisé : phases micellaires de microémulsion . . . 140
7.2 Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (faisceau laser ascendant) 141
7.2.1 Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser : apparition de différents régimes de déformations . . . 142
7.2.2 Régime linéaire de déformation . . . 144
7.2.3 Régime non–linéaire de déformation . . . 159
7.2.4 Au–delà du seuil d'instabilité : apparition d'un nouveau mécanisme d'instabilité de jet liquide . . . 169
7.2.5 Bilan . . . 176
7.3 Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (faisceau laser descendant) . . . 178
7.3.1 Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser. . . . 179
7.3.2 Caractérisation du seuil d'instabilité . . . 180
7.3.3 Instabilité de type sous–critique : mise en évidence d'un cycle d'hystérésis . . . 185
7.3.4 Bilan . . . 187
7.4 Illumination de l'interface liquide à l'aide de deux faisceaux lasers contra–propageants . . . 188
7.4.1 Compensation des effets relatifs à la force diffusive . . . 189
7.4.2 Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser : comparaison avec les résultats obtenus en simple propagation (section 7.3.1) . . . 190

7.4.3 Influence des effets inhérents à la force diffusive sur les morphologies des déformations et sur l'instabilité d'interface mise en évidence . . 193
7.4.4 Influence des effets relatifs à la force diffusive sur les cycles d'hystérésis observés en simple propagation descendante 199
7.4.5 Bilan 204
7.5 Conclusion 205

Conclusion et perspectives 209

A Systèmes fluides utilisés et leurs propriétés 217

Annexe A : Systèmes fluides utilisés et leurs propriétés 217
A.1 Phases de Winsor 217
A.1.1 Généralités 217
A.1.2 Effets de la salinité et de la longueur de la chaîne carbonée 219
A.1.3 Phases de Winsor utilisées comme système diphasique de référence : transparent et isotrope 221
A.1.4 Phases de Winsor à base de n–dodécane : système diphasique présentant une phase transparente et une phase diffusante 225
A.2 Phases micellaires de microémulsion 229
A.2.1 La microémulsion quasi–critique utilisée 229
A.2.2 Diagramme de phases et recherche d'un échantillon critique 231
A.2.3 Comportements thermophysiques au voisinage d'un point critique . 233
A.2.4 Indice de réfraction de la solution mère et indices de réfraction de chacune des phases de l'échantillon critique démixté 236
A.2.5 Caractéristiques diffusives et thermiques de l'échantillon critique . . 237
A.2.6 Protocole expérimental de la réalisation des échantillons critiques . 241

Bibliographie 243

Chapitre 1

Vers la physique des jets liquides induits par laser

Un jet peut être défini comme un « courant » de matière présentant une forme plus ou moins cylindrique. Ce type d'objet est rencontré dans une grande variété de situations différentes du « jet de particules » à l'échelle de l'univers.

Les études des jets liquides et de leur évolution, à savoir la brisure de ceux–ci (le plus souvent régit par la tension de surface), ont permis de mettre en exergue un certain nombre de phénomènes physiques clés. Les motivations pilotant ces études sont aussi variées que les diverses situations dans lesquelles nous pouvons observer ces phénomènes. Nous pouvons notamment évoquer l'optimisation des processus de combustion, l'amélioration de l'impression à jet d'encre ou encore l'échantillonnage de l'ADN... Plus proche de nous, les jets sont également rencontrés dans la vie de tous les jours que ce soit au niveau du robinet de notre évier de cuisine ou dans les divers pulvérisateurs, qu'ils soient utilisés à des fins cosmétiques ou agricoles !

En outre, les études des jets liquides permettent de sonder un grand ensemble de propriétés physiques telles que la tension de surface, la viscosité ou encore la densité. Les jets sont également sensibles aux fluctuations thermiques (à l'échelle nanométrique) ou aux interactions gravitationnelles à très grande échelle.

D'un point de vue expérimental, le développement des techniques en laboratoire et de l'imagerie à haute cadence ont permis de raviver récemment l'étude de ce phénomène. Nous pouvons notamment citer en exemple l'étude des derniers instants de la brisure d'un jet liquide et de sa dynamique où les effets non–linéaires prédominent la rupture [1] ou encore la structuration de l'atomisation d'un jet [2] entre autres. Le très bon article de revue de J. Eggers et E. Villermaux [3] nous apporte une description complète des aspects fondamentaux et technologiques relatifs à ces différentes études.

Au cours de cette introduction, nous n'avons pas la prétention d'effectuer une revue complète des différentes études concernant la physique des jets liquides mais nous proposons une brève présentation des instabilités de jets liquides obtenues de différentes manières, quelles soient d'origine « mécanique », électrique, acoustique ou encore optique, cette dernière constituant le *corpus* du présent manuscrit.

1.1 Depuis les travaux de Félix Savart

Nous débuterons cette section par une citation issue des travaux fondateurs de F. Savart regroupés dans son mémoire sur « la constitution de veines liquides lancées par des orifices circulaires en mince paroi » [4]. Dès 1833, il est le premier à avoir mis en évidence, de manière précise, l'inévitable évolution d'un jet liquide en gouttes et étudié les lois régissant ces comportements.

> *Il n'est personne qui n'ait observé que les veines liquides, lancées verticalement de haut en bas, se composent de deux parties d'un aspect très différent. [...] La partie qui touche à l'orifice est un solide de révolution dont toutes les sections horizontales vont en décroissant graduellement de diamètre. Cette première partie de la veine est calme et transparente, et ressemble à une tige de cristal. La seconde partie, au contraire, est toujours agitée, et paraît dénuée de transparence, quoiqu'elle soit cependant d'une forme assez régulière pour qu'on puisse facilement voir qu'elle est divisée en un certain nombre de renflements allongés dont le diamètre maximum est toujours plus grand que celui de l'orifice.*
>
> *Cette seconde partie de la veine est composée de gouttes bien distinctes les unes des autres, qui subissent, pendant leur chute, des changements périodiques de forme, auxquels sont dues les apparences de ventres ou renflements régulièrement espacés...* [4]

F. Savart remarque ainsi, sans avoir identifié l'origine du mécanisme, la brisure spontanée du jet liquide en gouttes de manière indépendante d'une quelconque force extérieure ou quelque soit la direction dans laquelle le jet est émis. Il montre aussi que ce phénomène est une caractéristique intrinsèque au fluide. Afin d'apporter une observation quantitative à ce phénomène, il développa notamment une technique stroboscopique dont une image est présentée figure 1.1.

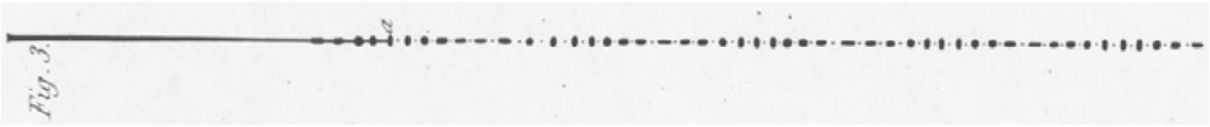


FIG. 1.1 – *Image issue du mémoire de F. Savart [4] montrant la brisure d'un jet liquide de* 6 mm *de diamètre. Il pu ainsi mettre en évidence une succession de gouttes principales et de gouttes satellites.*

Quarante ans plus tard, J. Plateau apporte une preuve expérimentale de la déstabilisation d'une colonne liquide en gouttes lorsque celle–ci excède un certain rapport d'aspect limite $\Lambda = L/D$ (représentant le rapport de la longueur de la colonne liquide sur son diamètre à la base). Ce rapport d'aspect limite fut évalué entre $\Lambda = 3.0$ et $\Lambda = 3.6$ [5].

L'hypothèse réalisée par J. Plateau est que le moteur de l'instabilité est la tension de surface, le système cherchant à minimiser son énergie de surface. Si un cylindre fluide, de rayon initial R_0, est soumis à une perturbation de longueur d'onde λ supérieure à la circonférence du cylindre $2\pi R_0$, la colonne liquide devient instable. J. Plateau a notamment calculé la variation d'aire induite par une perturbation sinusoïdale et montré que toute perturbation de longueur d'onde supérieure au périmètre de la colonne conduit à une réduction de l'aire. Ceci définit donc le rapport d'aspect limite de stabilisation d'une

colonne liquide égal à : $\Lambda = \pi$.

Quelques années plus tard, Lord Rayleigh [6, 7] parvient à décrire théoriquement la dynamique des colonnes liquides dans l'air en tenant compte de l'inertie du fluide, cette dernière s'opposant à la déstabilisation capillaire de l'interface liquide. Pour ce faire, il considéra une colonne de fluide non–visqueux, de longueur infinie et de rayon moyen R_0, dont la surface est soumise à de petites perturbations sinusoïdales de longueur d'onde λ et de taux de croissance ω. Il démontre que le taux de croissance obéit à l'équation de dispersion suivante :

$$\left(\frac{\omega}{\bar{\omega}}\right)^2 = \frac{I_1(X)}{I_0(X)} X \left(1 - X^2\right), \tag{1.1}$$

avec $\bar{\omega} = \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R_0^3}}$, $X = kR_0$ et I_i la fonction de Bessel modifiée d'ordre i. ρ est la masse volumique du fluide considéré et σ, la tension de surface. La relation 1.1 a été vérifiée expérimentalement avec succès à maintes reprises et est représentée sur la figure 1.2. Le taux de croissance de la perturbation est maximal pour $X = 0.697$ correspondant à une perturbation de longueur d'onde $\lambda = 9.01R_0$. Ce mode étant le plus instable, il pilote la perturbation et fixe la taille des gouttes liquides ainsi obtenues.

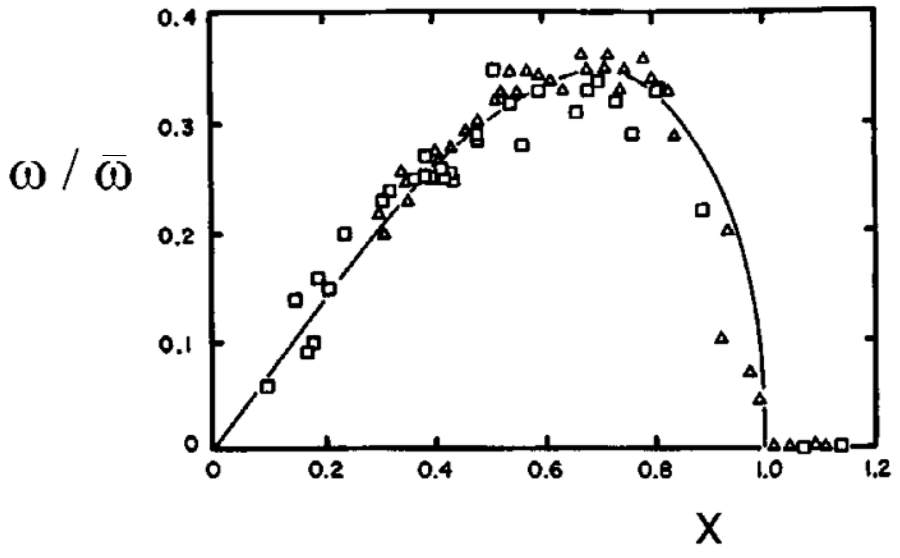


Fig. 1.2 – *Évolution de la relation de dispersion donnée par les travaux de Rayleigh et explicitée par la formule 1.1 (en trait plein). Les symboles correspondent aux mesures effectuées sur un jet d'eau. Image issue de la référence [1]*

L'influence de la viscosité lors de la déstabilisation d'un jet composé d'un fluide de viscosité η_1 dans un autre fluide de viscosité η_2 a été étudié par S. Tomotika [8]. La relation de dispersion résultante et sensiblement similaire à celle présentée figure 1.2.

Suite à cette brève présentation des travaux historiques menant à l'étude d'un jet liquide tant lors de sa formation que de sa déstabilisation en gouttes, nous allons exposer différentes méthodes conduisant à la génération de jets liquides.

1.2 Jets liquides induits par entrainement visqueux

Un écoulement mis en place à l'extérieur d'un fluide est un outil très polyvalent pour le contrôle de l'épaisseur d'un jet liquide et son comportement lors de la brisure. Les travaux de A. M. Gañán-Calvo *et al.* ont notamment démontrés la facilité de produire des gouttes monodisperses de diamètre controllable, par l'intermédiaire d'une géométrie d'écoulement focalisé (*flow focusing* en anglais) [9–12]. La focalisation de l'écoulement consiste à accéléré localement un fluide entourant un autre fluide. La phase dispersée (correspondant au fluide intérieur) est ainsi étirée par la phase continue (fluide extérieur), conduisant à la formation d'un jet et à la brisure en gouttes de celui–ci.

À la fois l'inertie du fluide et les forces visqueuses peuvent être exploitées afin de produire des jets. Concernant le mécanisme par lequel les forces visqueuses conduisent à l'établissement d'un jet, nous pouvons citer comme exemple les expériences réalisées en *selective withdrawal* [13–16].

Comme cela est présenté figure 1.3, une expérience de *selective withdrawal* consiste en un tube immergé dans un récipient au–dessus d'une interface séparant deux fluides visqueux non miscibles. Lorsque le fluide est aspiré (ou pompé) à travers le tube pour des faibles valeurs du « débit d'aspiration », noté Q, seule la phase liquide supérieure est entraînée. L'écoulement induit déforme l'interface liquide en une bosse de déformation stable (figure 1.3 (a)).

La hauteur de cette bosse de déformation, ainsi que sa courbure, augmentent à mesure que Q croît (ou que la distance séparant le tube de l'interface liquide diminue) jusqu'à une transition où la phase liquide inférieure est entraînée à son tour avec le phase supérieure formant ainsi une pointe liquide (figure 1.3 (b)). L'interface liquide devient « sans limite » dans la direction verticale et la géométrie de la phase liquide supérieure devient toroidale. Proche de cette transition, I. Cohen et S. R. Nagel [13] ont montré que la courbure et la hauteur de la déformation d'interface ont simultanément un comportement caractéristique des systèmes à l'approche d'une singularité.

Une légère augmentation de Q induit l'émergence d'un jet liquide à travers le tube (figure 1.3 (c)), c'est le phénomène d'entrainement visqueux.

I. Cohen et S. R. Nagel ont notamment établi que la transition, entre le *selective withdrawal* et l'entrainement visqueux, subit par l'interface conduit à la loi de puissance :

$$S_u \propto Q^{0.30\pm0.05}, \tag{1.2}$$

où S_u est la distance seuil séparant le tube de l'interface (si $S < S_u$, l'interface est déstabilisée). Pour de faibles valeurs de Q, la transition observée est douée d'hystérésis. Ainsi il est possible de trouver une valeur de $S > S_u$ pour laquelle l'interface est toujours instable. Cette particularité est également mise en évidence lorsque la distance séparant le tube et l'interface liquide est fixée. Il est donc possible d'observer un jet liquide fin induit par entrainement visqueux pour des valeurs de Q inférieures au « débit d'aspiration » nécessaire à l'établissement de cette instabilité.

Dans le cas où la distance entre le tube et l'interface liquide est fixée, des études expérimentales et numériques ont été réalisées afin d'étudier l'évolution de la hauteur de

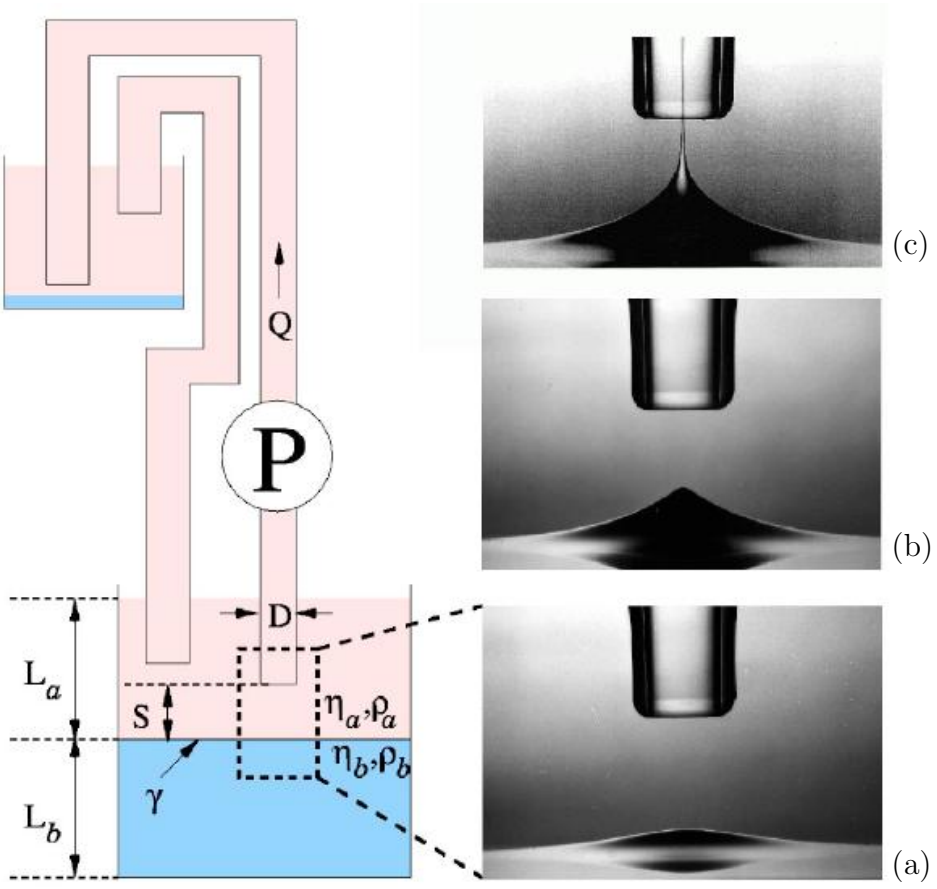


Fig. 1.3 – *Présentation du montage expérimental permettant d'étudier les transitions de structures déformées d'une interface liquide entre deux fluides visqueux en régime de selective withdrawal. En parallèle, sont présentées des photographies de la déformation d'interface engendrée pour différentes valeur du « débit d'aspiration », noté Q. La figure est issue de la référence [14].*

déformation et de la courbure de celle–ci à l'approche du seuil de transition. Le seuil est caractérisé par les notations h_c, κ_c et Q_c correspondant respectivement à la hauteur de la déformation d'interface seuil, la courbure seuil et le « débit d'aspiration » seuil. La figure 1.4, issue de la référence [16], présente les résultats obtenus lors de simulations numériques de ce problème.

D'après les figures 1.4 (a) 1.4 (b), il apparaît clairement qu'à l'approche de Q_c, la hauteur de déformation et la courbure saturent simultanément pour les valeurs critiques respectives h_c et κ_c. Enfin, les graphiques en inserts de chaque figure nous permettent d'apprécier que h et κ approchent leur valeur critique suivant les lois de puissance :

$$\left(\frac{h_c - h}{h_c}\right) \propto \left(\frac{Q_c - Q}{Q_c}\right)^{0.5}, \quad \left(\frac{\kappa_c - \kappa}{\kappa_c}\right) \propto \left(\frac{Q_c - Q}{Q_c}\right)^{0.5}. \tag{1.3}$$

Cette dépendance suggère que la transition observée depuis le *selective withdrawal* vers l'entrainement visqueux résulte d'une « compétition », à $Q = Q_c$, entre deux solutions d'équilibre, l'une stable et une autre instable. Cette transition suit une structure ayant la forme d'une bifurcation de type noeud–col.

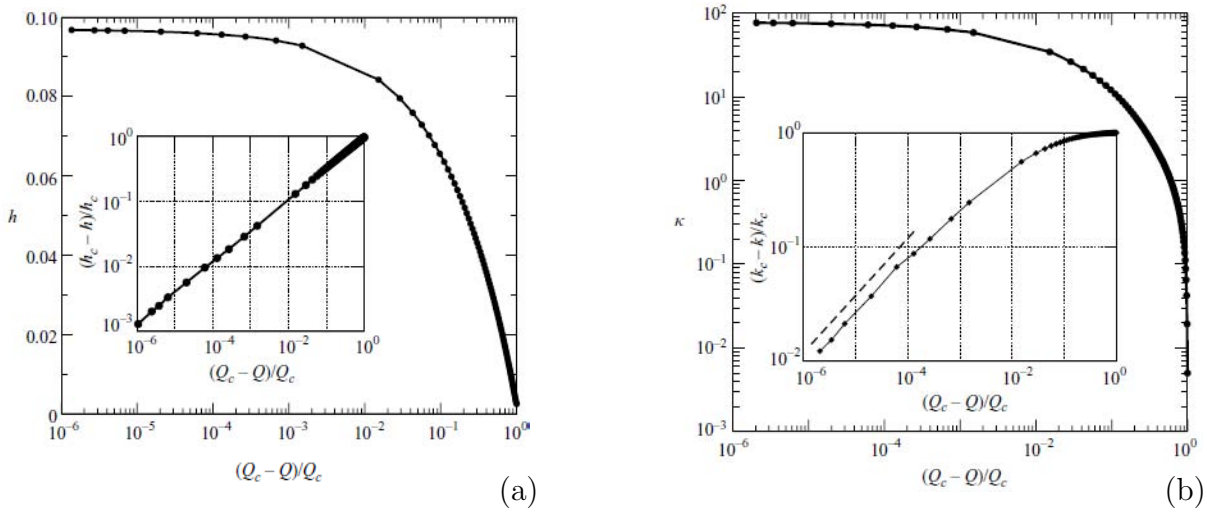


FIG. 1.4 – *Résultats issus de l'étude numérique présentée dans la référence [16]. (a) Évolution de la hauteur de déformation à l'approche du seuil de transition. En insert la représentation utilisée est* $(h_c - h)/h_c$ *vs.* $(Q_c - Q)/Q_c$*. (b) Évolution de la courbure de la déformation à l'approche du seuil de transition. En insert la représentation utilisée est* $(\kappa_c - \kappa)/\kappa_c$ *vs.* $(Q_c - Q)/Q_c$*. Dans les deux cas, la réprésentation en abscisse correspond à l'écart relatif du « débit d'aspiration »* Q *à sa valeur seuil* Q_c*.*

Enfin, toujours suite aux travaux de I. Cohen *et al.* [16], il a été démontré que lorsque l'interface est significativement déformée par rapport à son allure au repos, la courbure de la bosse de déformation engendrée dépend de manière logarithmique de la hauteur de déformation.

1.3 Jets liquides induits électriquement

Une des premières preuves expérimentales de la génération de jets liquides sous champ électrique date du XVIIIème siècle par M. l'Abbé Nollet. Dans son mémoire intitulé « Recherches sur les causes particulières des phénomènes électriques, et sur les effets nuisibles ou avantageux qu'on peut en attendre » [17], des expériences sont notamment réalisées sur les « écoulements électrifiés ». Nous pouvons citer un passage édifiant de ce mémoire :

> *Les écoulements électrifiés, quand ils se font par des canaux un peu larges [...] sont accompagnés d'un assemblage d'aigrettes lumineuses qui entoure de toutes parts le jet de liqueur, vers l'endroit où il commence à s'éparpiller et à se diviser en plusieurs petits jets divergents.* [17]

Cette observation expérimentale est toujours aujourd'hui étudiée et nous connaissons maintenant ce type de phénomène sous le nom d'ionisation par électro–nébulisation (ou *electrospraying* en anglais).

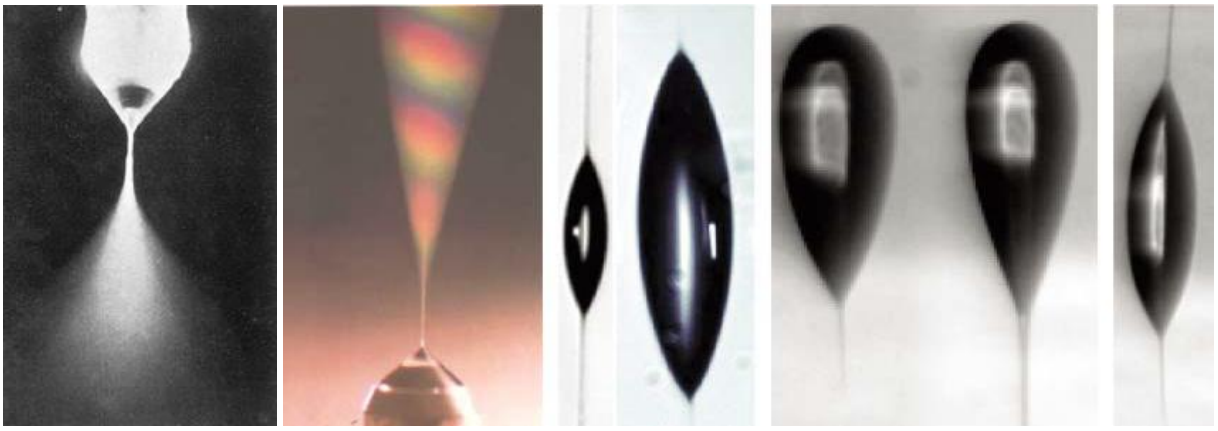
Cet effet a également été étudié par J. Zeleny au début du XXème [18]. Lors de cette expérience historique, une goutte liquide (un alcool), formée au bout d'un capillaire était soumise à un fort champ électrique. Les contraintes exercées sur l'interface de la goutte induites par le champ électrique transforment la morphologie de la goutte en une forme conique caractéristique. Sous certaines conditions de champ électrique et de pression hydrostatique, J. Zeleny avait observé cette forme conique particulière adoptée par la goutte

liquide et la formation, au bout de ce cône, d'un jet liquide très fin qui se brisait en petites gouttes au bout d'une certaine longueur. En effet, lorsque le cône de Taylor s'approche de la limite de Rayleigh, le cône s'allonge et forme un jet liquide qui se brise en une multitude de gouttes. La limite de Rayleigh correspond au point où les répulsions coulombiennes entre les charges égalent la tension de surface. Cette charge limite s'exprime :

$$q_{Rayleigh} = 8\pi \left(\sigma \varepsilon_0 r^3\right)^{1/2}, \tag{1.4}$$

où r est le rayon de la goutte, σ la tension de surface et ε_0 la permittivité diélectrique du vide.

Il fallu attendre 1964 pour que G. Taylor examine ce problème de manière théorique et convienne que la forme conique résulte principalement d'un équilibre entre les forces électrostatiques et la tension de surface [19,20]. Le « cône de Taylor » est observé pour des liquides conducteurs ou non. Nous pouvons notamment citer les travaux de J. D. Sherwood [21], de F. K. Wohlhuter *et al.* [22] ou encore ceux de A. Ramos et A. Castellanos [23], qui ont étendu l'analyse réalisée par G. Taylor au cas de liquides diélectriques. L'angle du cône de Taylor a été calculé théoriquement, vérifié expérimentalement à maintes reprises et est égal à $\theta_{Taylor} = 49.29^\circ$. On peut également citer les travaux théoriques de A. M. Gañán–Calvo [24] décrivant une approche analytique de ce problème complexe ou encore ceux de H. Li *et al.* [25] et H. Stone *et al.* [26] concernant les morphologies coniques adoptées par une goutte sous champ électrique et magnétique. Pour plus de détails sur ce phénomène caractéristique, le lecteur est invité à consulter entre autres les articles de revue de D. A. Saville [27] et de J. Fernández de la Mora [28]. Quelques images expérimentales de ce phénomène sont présentées figure 1.5.



(a) (b) (c) (d) (e)

Fig. 1.5 – *Exemples d'images expérimentales présentant le phénomène d'electrosraying et du cône de Taylor. (a) Image issue des travaux pionniers de J. Zeleny [18]. Les images suivantes sont extraites de l'article de revue de J. Fernández de la Mora [28]. (b) Transition cône – jet, phénomène d'electropspraying. (c) Explosion symétrique d'une goutte de glycol de* 24 µm *de diamètre, chargée à la limite de Rayleigh en absence de champ extérieur. (d) Explosions asymétriques de gouttes de méthanol, chargées à 13% de la limite de Rayleigh dans un champ extérieur de* $2.21.10^6$ V/m. *(e) Explosion symétrique d'une goutte de méthanol non chargée, de* 225 µm *de diamètre, dans un champ extérieur de* $2.18.10^6$ V/m.

1.4 Jets liquides induits par une onde acoustique

La génération de gouttes liquides par une onde acoustique est un sujet d'étude en plein essor, notamment dans le cadre de l'amélioration de la qualité des imprimantes à jet d'encre ou encore dans le domaine biomédical pour délivrer de très faibles quantités de liquide. Les têtes d'impression éjectent des gouttes liquides à travers des buses et la plus petite taille de goutte obtenue dépend de la taille de cette buse d'impression. En parallèle, la construction de buses de tailles très petites n'est pas une tâche aisée.

Le désir de production de gouttes liquides en s'affranchissant d'une buse devient donc légitime. Une autre caractéristique néfaste à l'utilisation de buses d'éjection est la génération de gouttes satellites altérant la qualité finale d'impression.

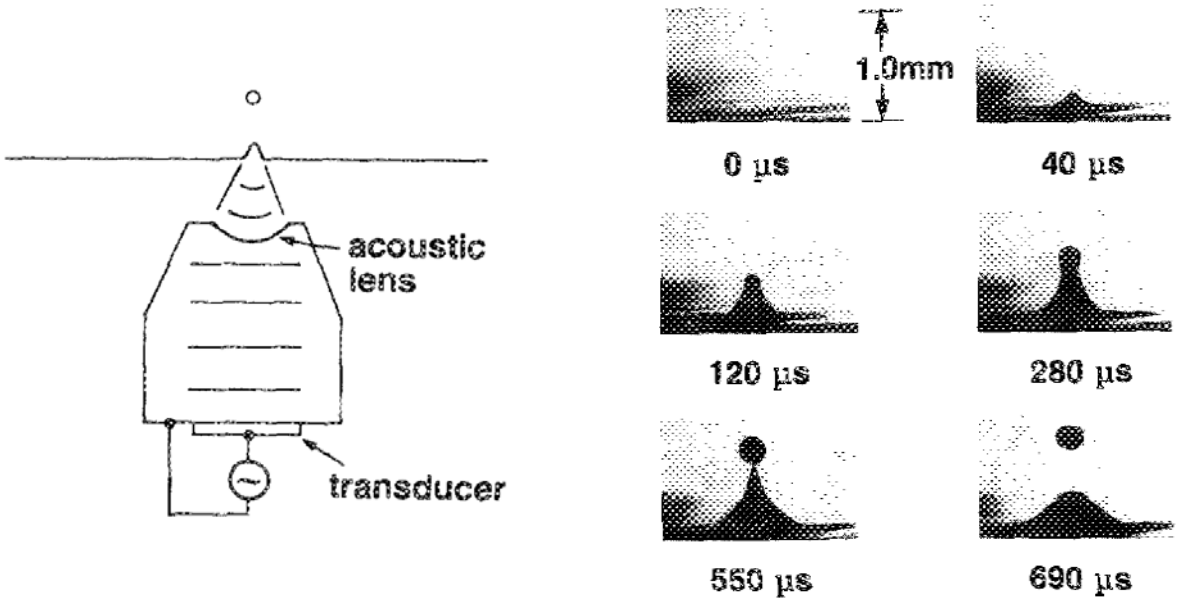
Les travaux de R. W. Wood et A. L. Loomis [29], à la fin des années 1920 ont apporté la première preuve expérimentale de la génération de gouttes liquides en absence de buse. L'utilisation d'une onde acoustique de haute intensité permettait de dominer la tension de surface, s'opposant à la déformation de l'interface liquide.

Ces études ont notamment été reprises par S. A. Elrod *et al.* [30]. Ils ont montré la possibilité de générer des gouttes à partir d'une interface liquide et de contrôler leur diamètre (de 300 µm à 5 µm) ainsi que leur vitesse d'émission. Ceci fut réalisé à l'aide d'ondes acoustiques focalisées au niveau de l'interface liquide (en absence de buse). Une fois que la goutte liquide est émise, ils montrent que la surface relaxe et une onde capillaire se propage depuis le point où l'onde acoustique est focalisée. Les gouttes émises sont stables à la fois en terme de taille et de vitesse. Enfin, il est démontré que lorsque la lentille acoustique, utilisée afin de focaliser l'onde acoustique au niveau de l'interface liquide, présente une faible aberration sphérique, le diamètre des gouttes émises se comporte comme l'inverse de la fréquence acoustique utilisée. La pression de radiation associée à cette onde acoustique est identifiée comme étant le moteur de cette éjection de goutte, lorsqu'elle domine les effets de tension de surface. La figure 1.6 (a) représente le schéma théorique de leur expérience et la figure 1.6 (b) montre l'évolution du processus d'éjection d'une goutte liquide à partir d'un pulse d'énergie 58 μJ et de durée d'impulsion 20 μs.

Plus récemment ces études se sont développées jusqu'à produire des gouttes liquides de l'ordre de 10 µm de diamètre, représentant un volume de l'ordre de 0.5 pL [31]. Comme nous l'avons vu plus haut, la taille des gouttes émises étant proportionnelle à la longueur d'onde acoustique utilisée, ils ont utilisé une lentille structurée permettant aux ondes acoustiques transmises d'interférer constructivement les unes avec les autres au niveau de l'interface liquide et ainsi d'intensifier la pression acoustique. L'utilisation des harmoniques de la fréquence fondamentale leur permettent de produire une puissance acoustique encore plus importante et d'atteindre des diamètres de gouttes de l'ordre de la dizaine de micromètres. Cela est représenté par la figure 1.7.

D'un point de vue recherche fondamentale, des travaux ont été réalisés au sein de notre équipe de recherche lors de la thèse de N. Bertin [32]. Il a notamment étudié la formation de jets liquides induits par une onde acoustique. Différents couples de fluides ont été utilisés afin de faire varier le contraste de viscosité entre les deux fluides en coexistence.

Le streaming d'Eckart, correspondant à la dissipation de l'énergie acoustique durant



(a) (b)

Fig. 1.6 – *(a) Schéma de l'expérience de S. A. Elrod et al. pour l'émission de gouttes liquides par l'intermédiaire d'ondes acoustiques focalisées au niveau d'une interface liquide. (b) Évolution temporelle de la formation d'une goutte à une fréquence acoustique de* 5 MHz. *Les différentes images sont issues de la référence [30].*

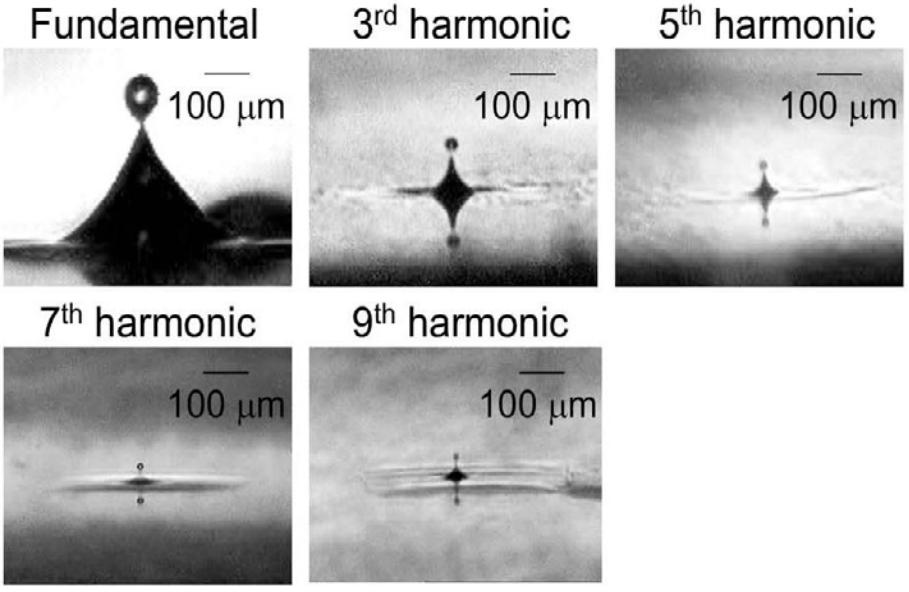


Fig. 1.7 – *Réduction de la taille des gouttes liquides émises par l'utilisation des harmoniques successives de la fréquence acoustique fondamentale. Le plus petit diamètre atteint est de l'ordre de* 10 µm. *Image issue de la référence [31].*

sa propagation, peut engendrer la mise en mouvement du fluide et la création d'un écoulement permanent stationnaire dans le sens de propagation du faisceau. Ce phénomène est typiquement d'origine visqueuse. N. Bertin a démontré que la déstabilisation de l'interface liquide en jet n'est pas due à ce streaming d'Eckart. En effet, comme illustré figure 1.8, il est possible de générer des jets liquides quelle que soit la viscosité des deux phases liquides

(même si la viscosité modifie légèrement leur allure). [32]

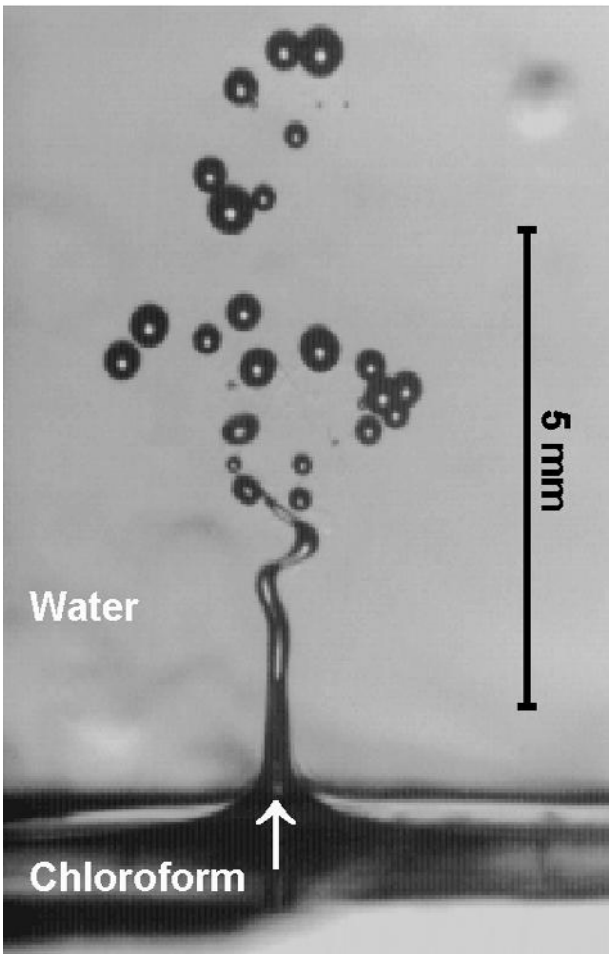


FIG. 1.8 – *Exemple d'un jet liquide induit par une onde acoustique focalisée. Image issue de la référence [33].*

1.5 Jets liquides induits optiquement

Les champs d'investigations présentés précédemment ne se sont étendus aux forces optiques que très récemment. En effet, bien que l'interaction d'une onde laser avec des particules diélectriques de tailles micrométriques a suscité un grand intérêt dans les années 70 [34–37] (manipulation, piégeage et lévitation optique), beaucoup moins d'attention fut apportée aux déformations directes d'interfaces liquides molles. La principale raison de ce manque est lié au fait que les déformations d'interfaces liquides par pression de radiation optique sont intrinséquement faibles.

1.5.1 Déformations d'interfaces liquides par la pression de radiation optique

À la fin des années 80, J.-Z. Zhang et R. K. Chang ont réalisé les premières observations directes de déformations de l'interface d'une goutte d'eau sous l'action d'une onde laser [38]. Ces gouttes étaient illuminées par un laser à colorant (de longueur d'onde

dans le vide $\lambda_0 = 600$ nm, de durée d'impulsion 0.4 μs et de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 200$ µm). Ils ont notamment mis en évidence que lorsqu'un pulse d'énergie 200 mJ était appliqué, l'interface liquide de la goutte d'eau se déformait et produisait un long filament sur la face de sortie de la goutte. Ceci est explicité par la séquence temporelle d'images expérimentales présentée figure 1.9.

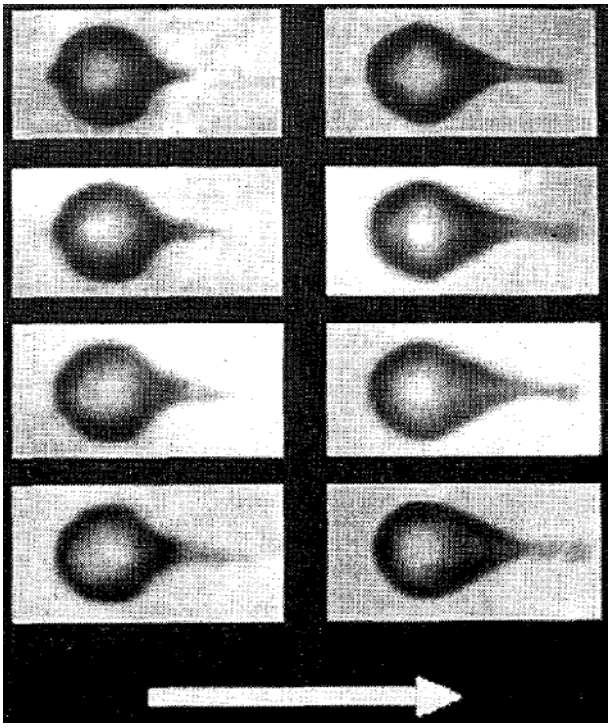


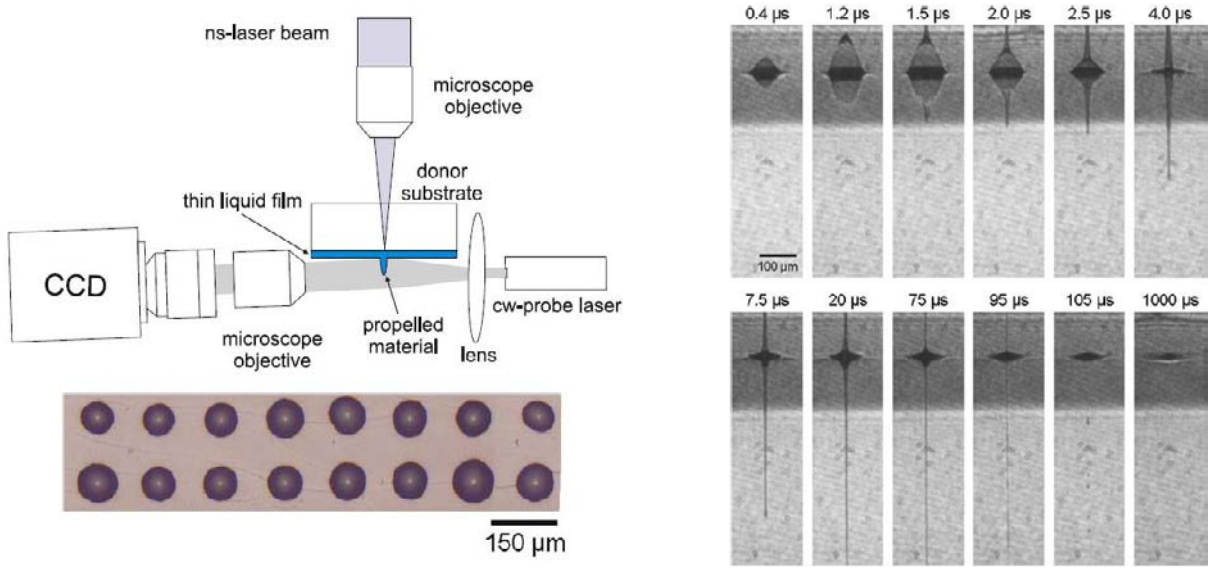
Fig. 1.9 – *Première observation expérimentale directe de la déformation d'une goutte d'eau sous l'action d'un pulse laser d'énergie* 200 mJ. *L'image en haut à gauche est pour* $\Delta t = 1$ μs *et l'image en bas à droite est pour* $\Delta t = 15$ μs. *Nous pouvons observer l'émergence d'un filament liquide depuis la face de sortie de la goutte (le faisceau laser se propage depuis la gauche vers la droite).*

Le filament liquide observé dans les expérience de J.-Z. Zhang et R. K. Chang évoque les prémices d'un jet liquide induit par laser.

1.5.2 Technique d'impression LIFT

Depuis, certaines applications aux techniques d'impression de haute qualité ont été réalisées. Nous pouvons citer en particulier la technique d'impression LIFT pour *Light–Induced Forward Transfer*. Le principe de cette technique consiste à transférer une quantité de matière grâce à une impulsion laser, à partir d'une pellicule enduite sur une cible jusqu'à un substrat receveur comme ceci est illustré figure 1.10 (a).

À l'aide de la figure 1.10 (b) nous pouvons observer le développement temporel de ce processus d'impression par LIFT. Différents stades peuvent être distingués. En effet, jusqu'à 1.2 μs, une bosse de déformation est induite, laquelle gonfle comme un « ballon ». Entre 1.2 μs et 4 μs, ce « ballon » s'effondre progressivement et un jet liquide de taille



(a) (b)

FIG. 1.10 – *(a) Illustration de la technique d'impression LIFT. (b) Images expérimentales du processus temporel de LIFT ($t = 0$ s correspond au pulse laser). Les deux figures sont issues de la référence [39].*

micrométrique est obtenu. De 4 μs et 95 μs, ce jet liquide s'allonge et se rétrécit jusqu'à se briser en une multitude de gouttes dont le diamètre varie de 70 µm à 90 µm. Ce processus est interprété de la façon suivante : suite à l'absorption du pulse laser au niveau de l'interface, une poche de gaz se forme (le « ballon »), laquelle se développe et « pousse » le liquide. Ensuite, lorsque les forces agissant à l'intérieur de ce « ballon » dues à l'expansion du gaz sont dominées par la pression extérieure et la tension de surface, le « ballon » commence à s'effondrer sur lui–même. À partir de ce moment, l'inertie de la pointe du « ballon » conduit à la formation du jet. Enfin, lorsque le jet devient suffisamment long et fin, il se brise en gouttes liquides [39].

La possibilité de transférer des liquides par LIFT s'est révélée un atout majeur dans le domaine biomédical où il est nécessaire de manipuler de très faibles quantités de solution tout en préservant les propriétés biologiques du matériau. En effet, il a été envisagé de procéder à la déposition de matériaux organiques ou biologiques par cette technique, puisque le solvant utilisé agit à la fois comme absorbeur d'énergie et vecteur de transport des molécules. Ceci fut démontré pour des protéines et des cellules [40, 41] et par voie de conséquence fut étendu à la fabrication de biopuce d'ADN [42].

1.5.3 Technique d'ablation laser

La formation optique de jets liquides peut également intervenir lors de la technique d'ablation par laser, principalement dévolue aux application biomédicales telles que la chirurgie ophtalmique ou encore dans le transport de cellules vivantes. Cette technique peut également être employée afin de générer des sprays très fins permettant d'améliorer l'efficacité des processus de combustion.

La première étude détaillée de la formation de jets liquides par ce processus d'ablation par laser fut réalisée par A. Vogel *et al.* en 1990 [43]. Ils avaient utilisé comme tissu

biologique des cornées bovines afin d'évaluer les éventuels dommages collatéraux suite à l'application d'un pulse laser (issu d'un Nd^{3+}–YAG). Le processus d'ablation par laser consiste, suite au pulse laser, à la formation d'un plasma au point focal. L'extension de ce plasma conduit à une onde de choc et à une bulle de cavitation. Enfin, l'effondrement de cette bulle de cavitation conduit à la formation de jets liquides à très grande vitesse. L'application de ce procédé à la génération de sprays fut récemment réalisée par S. T. Thoroddsen *et al.* [44]. Le schéma de leur expérience est présenté figure 1.11 (a).

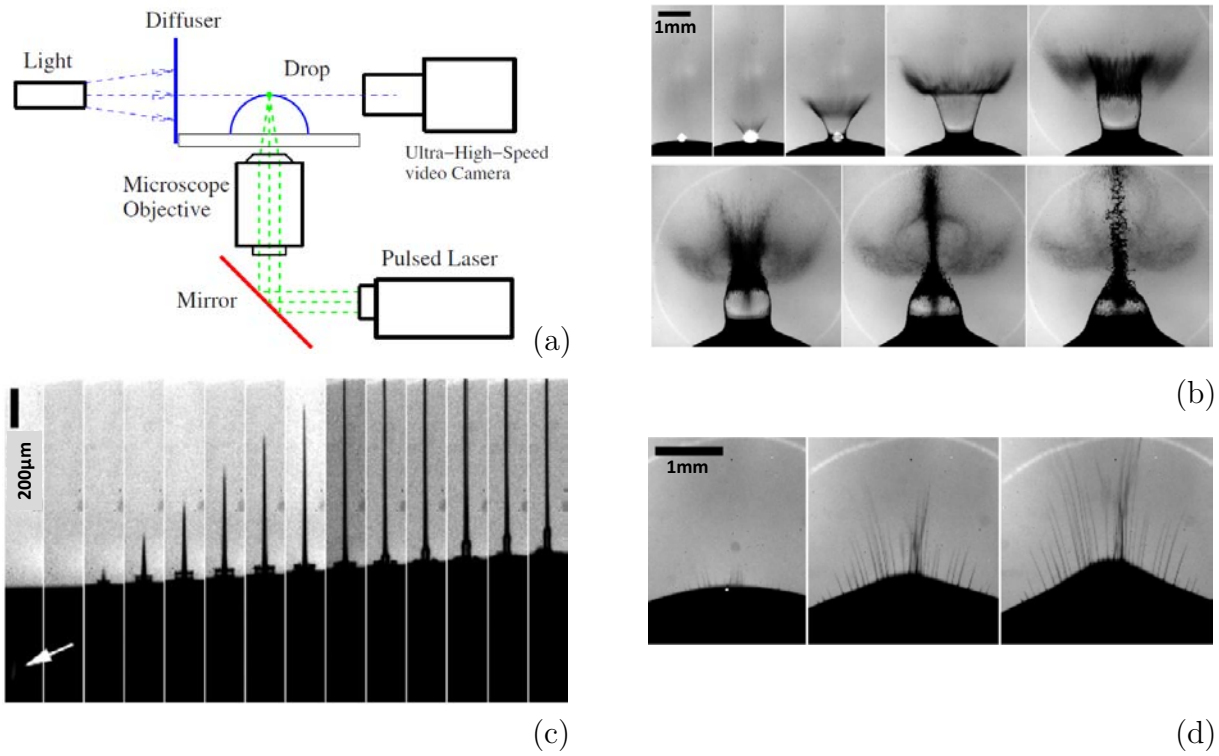


Fig. 1.11 – *(a) Schéma du dispositif expérimental d'ablation par laser uitlisé par Thoroddsen et al.. (b) Mise en évidence de la formation d'une couronne éjectant le fluide suite au pulse laser focalisé au niveau de l'interface d'une goutte d'eau de rayon* 3 mm. *Les images, de gauche à droite et de haut en bas, correspondent aux instants : t= 0, 1, 2, 5, 10, 18, 36 et 60 µs. (c) Exemple d'émission d'un jet liquide à partir d'une goutte d'eau. Le faisceau est focalisé à* 400 µm *sous l'interface de la goutte (indiqué par la flèche blanche) et la puissance est de* 30 mJ. *(d) Émergence d'une multitude de jets de tailles micrométriques à partir de la surface d'une goutte constituée d'un mélange d'eau et de glycérine à 60%. Toutes ces images sont issues de la référence [44].*

La figure 1.11 (b) montre l'évolution temporelle de la formation de la couronne éjectant le fluide suite à un pulse laser (de durée d'impulsion $\sim$ 7 ns). Des études complémentaires ont été réalisées notamment concernant l'influence de la distance séparant le point de focalisation du pulse laser par rapport à l'interface (figure 1.11 (c)). Sur la figure 1.11 (c), le faisceau laser est focalisé à une distance de 400 µm sous l'interface d'une goutte d'eau. Le jet se forme lorsque l'onde de choc, issue de la cavitation, entre en collision avec des petites bulles présentent sous la surface de la goutte.

Enfin, une étude fut également réalisée afin d'évaluer l'influence de la viscosité du fluide utilisé sur ce procédé. La figure 1.11 (d) présente l'émergence d'une multitude de jets liquides de tailles micrométriques lorsque le faisceau laser est focalisé à 150 µm

sous l'interface d'une goutte liquide composée d'un mélange d'eau et de glycérine à 60%. Les jets observés émergent à différentes vitesses dépendant de la profondeur à laquelle le faisceau et focalisé.

1.5.4 Utilisation de la diffusion de l'onde issue d'un faisceau laser continu

La diffusion de l'onde d'un faisceau laser continu a été appliquée avec succès à différents domaines. Nous pouvons citer tout particulièrement l'expérience historique de lévitation optique d'une particule tout d'abord démontrée par A. Ashkin en 1970 [34], ouvrant par la même le vaste domaine des effets mécaniques de la lumière. À la fin des années 1990, M. J. Renn *et al.* ont également démontré le guidage de particules micrométriques piégées dans le faisceau [45]. Une onde laser continue était utilisée pour piéger et guider des particules dont la taille variait de 50 nm à 10 µm. Les forces radiales en gradient ($F_{grad} \propto \frac{4}{3}\pi R^3 \Delta n \vec{\nabla} I_0$, où R est le rayon de la particule, Δn le contraste d'indice de réfraction et $\vec{\nabla} I_0$ le gradient de l'intensité du faisceau incident) permettaient de piéger la particule alors que l'absorption et la force diffusive (*scattering force* en anglais : $F_{scatt} \propto \left(\frac{4}{3}\pi R^3\right)^2 \Delta n I_0 / c\lambda^4$, où λ correspond à la longueur d'onde du faisceau incident) « poussaient » et transportaient la particule le long d'une fibre optique creuse.

Dans la suite, nous allons présenter quelques exemples d'application de cette force diffusive lorsque les objets étudiés sont de taille beaucoup plus grande que la longueur d'onde du faisceau laser incident (régime de diffusion de Mie).

Aiguillage de particules par force diffusive

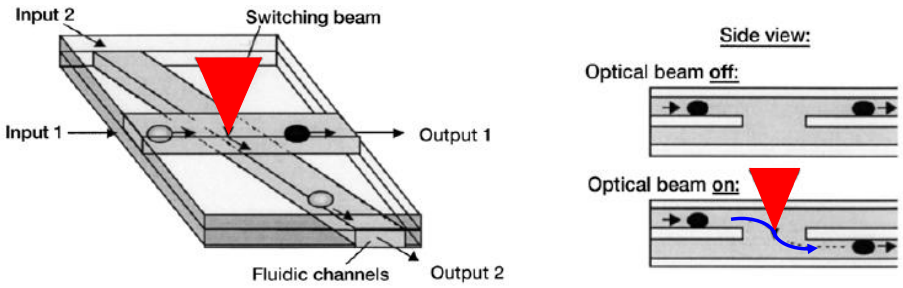
L'aiguillage de particules par l'intermédiaire de la diffusion d'un faisceau laser est illustré par la figure 1.12 (a) et la figure 1.12 (b) présente des images expérimentales.

Comme on peut le voir sur la figure 1.12 (a), il s'agit d'un dispositif microfluidique présentant une jonction croisée à deux niveaux. Les particules sont transportées par un écoulement fluide, à débit constant, à travers le canal supérieur. En absence de faisceau laser, les particules ne sont pas déviées de leur trajectoire et sortent au niveau de l'*output 1* sur le schéma en trois dimensions de la figure 1.12 (a). En revanche, lorsque le faisceau laser est en fonction perpendiculairement à cette jonction, la force diffusive au niveau de la particule « pousse » celle–ci vers le canal situé au niveau inférieur du dispositif microfluidique et les particules sont amenées vers l'*output 2*.

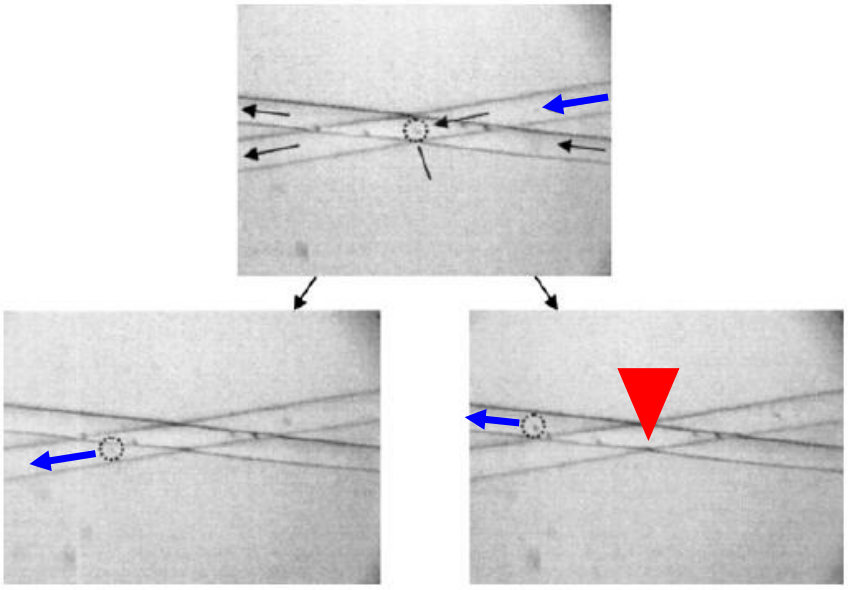
Ceci est démontré expérimentalement par les images présentées figure 1.12 (b)

Chromatographie optique

La technique de chromatographie optique est basée sur l'équilibre de deux forces : l'une correspond à la force diffusive induite par le faisceau laser sur la particule (les forces en gradient permettant de piéger les particules le long de l'axe du faisceau laser) et l'autre est la résistance apportée par l'écoulement du fluide dans lequel sont suspendues les particules, de sens opposé à la propagation du faisceau laser [47]. La figure 1.13 (a) illustre le dipositif expérimental permettant d'effectuer de la chromatographie optique.



(a)



(b)

Fig. 1.12 – *(a) Illustration de la méthode d'aiguillage de particules par diffusion d'une onde laser. (b) Images expérimentales de l'aiguillage de particules de* 5 µm *de diamètre. Les deux figures sont issues de la référence [46].*

L'équilibre entre la force de trainée due à l'écoulement ($F_{drag} \propto 6\pi R\eta V$) et la force diffusive induite par l'onde incidente permettent de piéger les particules à une position stable en fonction de leur polarisabilité. Les particules ayant les tailles les plus grandes ou un indice de réfraction plus élevé seront « poussées » sur une plus grande distance dans le sens de propagation de l'onde laser incidente par rapport à des particules de tailles plus petites ou d'indice de réfraction plus faible. Il en résulte une séparation des particules de différentes tailles et composition (indice de réfraction) le long de l'axe du faisceau laser comme ceci est illustré par l'image expérimentale de la figure 1.13 (b). Dans cette expérience de chromatographie optique, S. J. Hart *et al.* ont utilisé des billes de silice, de PMMA et de PS de tailles uniformes ($\sim$ 2.25 µm) mais d'indice de réfraction différents et démontrent ainsi l'efficacité de cette technique [49].

Séparation de particules « au vol »

Toujours dans la lignée des techniques de séparation de particules présentées plus haut, A. A. Lall *et al.* ont récemment démontré la possibilité de séparer des particules « en vol » [50]. Des séparations en terme de taille sont possibles mais également concer-

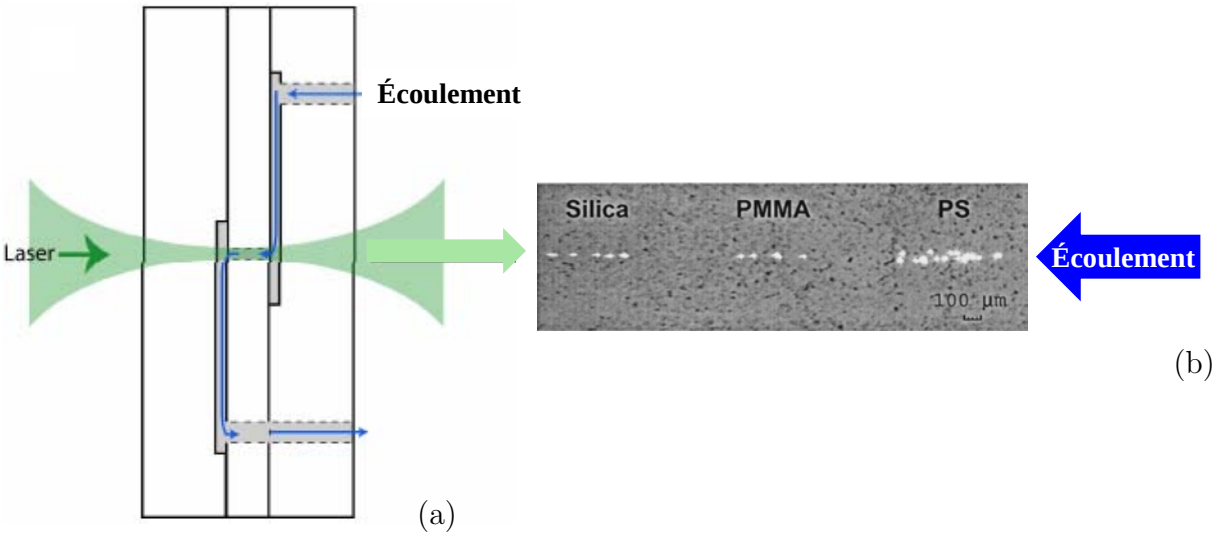


FIG. 1.13 – *(a) Schéma du dispositif expérimental pour réaliser de la chromatographie optique [48]. (b) Séparation de trois types de particules d'indice de réfraction différents : billes de silice, PMMA (plexiglas) et PS (polystyrène). La taille des billes est* ~ 2.25 µm, *la puissance laser appliquée est* $P = 770$ mW *et la vitesse du fluide est* $V = 32$ µm/s. *[49].*

nant les indices de réfraction ou encore les densités. Les particules sont en suspension dans un gaz (comme l'air par exemple), tel un aerosol. Le principe de cette méthode est illustré par la figure 1.14 (a).

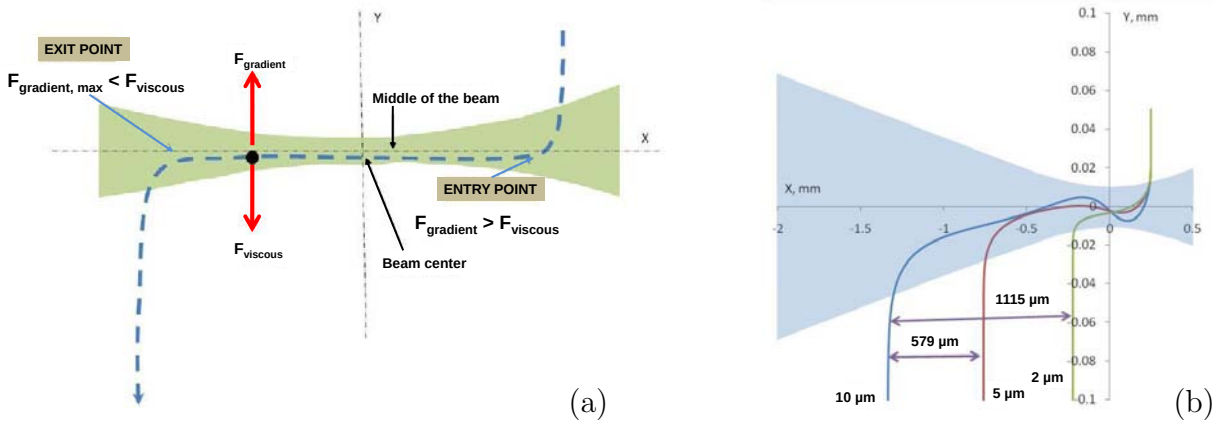


FIG. 1.14 – *(a) Illustration de la méthode de séparation de particules « au vol ». Présentation de l'équilibre des forces dans les directions verticale et horizontale et de la trajectoire résultante de la particule (en pointillés). (b) Trajectoires adoptées par des particules de PS de diamètre* 2, 5 *et* 10 µm. *La puissance laser appliquée est* $P = 10$ W, *le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 10$ µm *et la vitesse du gaz est de* $V = 3$ cm/s. *Images issues de la référence [50].*

Le mouvement de la particule dans le faisceau laser résulte d'un couplage complexe entre la force diffusive (notée $F_{scatter}$ dans l'exemple présenté figure 1.14 (a)) et les forces en gradient (notées $F_{gradient}$) avec les forces visqueuses dues au gaz environnant. La force diffusive « pousse » la particule dans la direction horizontale alors que les forces en

gradient agissent dans la direction verticale et tendent à amener la particule vers le centre du faisceau laser. L'équation décrivant le mouvement de la particule dans la direction horizontale (axe x) peut s'écrire [50] :

$$\rho \frac{\pi D_p^3}{6} \frac{\mathrm{d}v_x}{\mathrm{d}t} = F_{scatter}(x, y) - 3\pi\mu D_p v_x, \tag{1.5}$$

et suivant l'axe y :

$$\rho \frac{\pi D_p^3}{6} \frac{\mathrm{d}v_y}{\mathrm{d}t} = F_{gradient}(x, y) - 3\pi\mu D_p \left(v_y - v_g\right) - \rho \frac{\pi D_p^3}{6} g, \tag{1.6}$$

avec v_x et v_y la vitesse de la particule suivant respectivement l'axe x et y. μ est la viscosité du gaz et D_p le diamètre de la particule. La résolution numérique de ces équations rend compte de la déflection δ de la particule. Ainsi, la séparation, notée S, obtenue entre deux particules différentes (1 et 2) est donnée par [50] :

$$S_{1,2} = \delta\left(D_{p,1}, n_1, \rho_1\right) - \delta\left(D_{p,2}, n_2, \rho_2\right). \tag{1.7}$$

D'après la relation 1.7, il est donc possible d'évaluer la séparation de différentes particules suivant la taille, l'indice de réfraction ou encore la densité de celles–ci. La figure 1.14 (b) représente les trajectoires de particules de PS de 2, 5 et 10 µm de diamètre. Cette figure nous montre que la particule de 10 µm de diamètre est retenue pendant un laps de temps plus élevé dans le faisceau laser que pour les particules plus petites. Ceci implique que la particule la plus grosse est la plus déviée. La séparation observée entre les particules de 2 µm et 10 µm est de plus de 1 mm.

Cette méthode s'avère donc être très efficace, compte tenu des larges déflections des trajectoires observées, pour procéder à la séparation de particules non–absorbantes comme des objets biologiques.

Étude de nouvelles méthodes basées sur la diffusion de lumière en régime de Rayleigh pour la manipulation et la déformation d'interfaces liquides

Toutes les techniques optiques présentées précédemment se basent sur l'interaction entre une onde laser et des particules de taille micrométrique. Lorsque les objets diffusants sont beaucoup plus petits (de taille inférieure à la longueur d'onde incidente) et en concentration plus faible, il convient de considérer le régime de diffusion de Rayleigh. C'est cet aspect de la diffusion de la lumière que nous allons étudier dans ce manuscrit de thèse.

1.6 Plan du manuscrit

Le but de ce travail est de démontrer que les forces diffusives peuvent non seulement déformer une interface liquide mais aussi la déstabiliser pour former un jet. Ce mémoire se divise en six chapitres. Le chapitre 2 sera consacré à la description des différentes contraintes exercées par une onde électromagnétique non–résonnante dans les liquides diélectriques. Nous détaillerons les effets de la pression de radiation optique au niveau d'une interface liquide et nous montrerons que la diffusion de la lumière en volume est susceptible

d'induire des contraintes visqueuses au niveau de l'interface liquide par l'intermédiaire de la génération d'écoulements permanents au sein d'un milieu turbide.

Le chapitre 3 décrira les différentes techniques expérimentales et numériques adoptées ainsi que les propriétés physico–chimiques des fluides utilisés au cours de cette thèse.

Au cours du chapitre 4, qui sera le premier chapitre expérimental de ce mémoire, nous établirons une base de résultats et de comportements lorsque seuls les effets de la pression de radiation optique participent à la déformation d'une interface liquide molle. Ce chapitre fera ainsi office de « référence » pour la suite de notre propos car la pression de radiation sera toujours présente dans l'ensemble de nos expérimentations.

Le chapitre 5 sera entièrement dévolu à la présentation d'un certain nombre de prédictions numériques, ne prenant en compte que les effets diffusifs de l'onde incidente dans le milieu. Les chapitres expérimentaux suivants seront consacrés à l'étude du couplage existant entre les effets de pression de radiation et les effets diffusifs.

Le chapitre 6 exposera les résultats expérimentaux obtenus à l'aide d'un système fluide présentant une phase transparente en coexistence avec une phase diffusante.

Enfin, le chapitre 7 cloturera ces travaux de recherche par l'étude du couplage entre les effets de la pression de radiation optique et de la force diffusive, lorsque cette dernière agit dans les deux phases turbides de l'échantillon considéré.

Chapitre 2

Forces exercées par une onde électromagnétique non résonnante dans les liquides diélectriques

Au cours de ce chapitre, nous allons introduire et décrire les différentes contraintes responsables de la déformation d'une interface liquide soumise à l'illumination d'une onde électromagnétique (émise par un laser continu). Nous allons principalement nous intéresser à deux phénomènes physiques entrant en jeu lors de la déformation d'une interface fluide : la pression de radiation optique agissant à l'interface entre deux liquides, ainsi que les écoulements en volume engendrés par une force diffusive présente lorsque l'onde incidente est diffusée par le milieu turbide qu'elle traverse (les contraintes capillaires et la gravité s'opposent à ces mécanismes de déformation).

Nous présenterons tout d'abord la pression de radiation optique et nous expliquerons le choix que nous avons réalisé concernant l'expression de la quantité de mouvement d'un photon dans un milieu d'indice n en reprenant les travaux de thèse de A. Casner [51]. Nous évaluerons l'influence de l'électrostriction sur les déformations d'interfaces liquides observées en nous basant notamment sur les travaux de Brevik [52, 53] et nous donnerons les expressions de la pression de radiation optique à un angle d'incidence θ_i quelconque ainsi qu'à incidence normale. Enfin, nous détaillerons les contraintes exercées sur l'interface par les écoulements en volumes générés par la diffusion de la lumière dans des milieux turbides.

Les fluides que nous utilisons n'étant pas absorbants, nous négligerons dans la suite de notre propos tous les effets thermiques tels que les effets thermocapillaires aux interfaces [54, 55] ou les effets de chauffage en volume [56].

2.1 La pression de radiation optique

2.1.1 L'expérience fondatrice de Ashkin et Dziedzic

Au début des années 1970, Ashkin et Dziedzic ont réalisé une expérience consistant à focaliser à l'interface entre l'eau et l'air un faisceau laser Nd^{3+}–YAG doublé en fréquence de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm [57]. La largeur au col du faisceau était de $\omega_0 = 2.1$ µm et la source délivrait des impulsions de durée 60 ns avec une puissance crête de 1–4 kW. L'expérience est représentée schématiquement sur la figure 2.1.

Ils n'ont pas pu observer directement des déformations d'interfaces par cette technique, la tension de surface eau–air étant trop élevée ($\sigma_{eau-air} = 72.10^{-3}$ N/m) pour obtenir des rapports d'aspects significatifs, mais ont pu caractériser les effets de lentille associés à la déformation engendrée par l'onde excitatrice. En effet, l'autofocalisation d'un faisceau laser dans un milieu linéaire peut avoir lieu grâce à la courbure qu'il est susceptible d'induire à une interface. La courbure de l'interface engendrée agit à son tour sur la propagation du faisceau laser par un effet de lentille « liquide ». Cet effet de lentille « liquide » leur a permis d'en déduire le sens dans lequel se déforme l'interface liquide. Selon certains auteurs, cette expérience aurait pu permettre de mettre un terme à la controverse concernant l'expression du tenseur énergie–impulsion de la lumière dans la matière (polémique entre les formes tensorielles proposées par Abraham ou par Minkowski [58]).

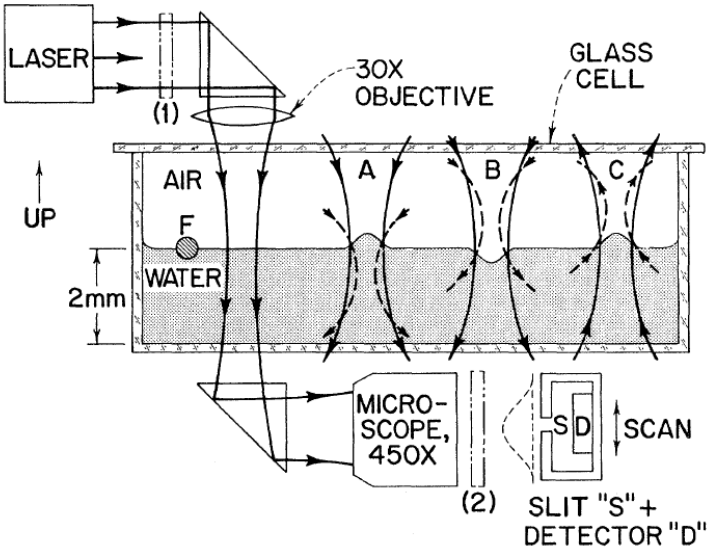


Fig. 2.1 – *Schéma de l'expérience réalisée par Ashkin et Dziedzic [57]. Propagation d'un faisceau laser Nd^{3+}–YAG doublé en fréquence ($\lambda_0 = 532$ nm), focalisé ($\omega_0 = 2.1$ µm) à l'interface entre l'eau et l'air.*

En effet, par cette expérience, Ashkin et Dziedzic pouvait s'attendre à observer deux comportements distincts : si la quantité de mouvement p portée par un photon dans un milieu d'indice n respecte le formalisme proposé par Abraham, c'est-à-dire $p = \frac{h\nu}{cn}$ (où $h\nu$ représente l'énergie et c la vitesse de la lumière dans le vide), alors la force résultante devrait être dirigée vers l'intérieur du liquide (depuis le milieu d'indice le plus faible vers celui d'indice le plus fort). En revanche, si la quantité de mouvement p portée par un photon dans un milieu d'indice n respecte le formalisme proposé par Minkowski, $p = \frac{h\nu n}{c}$, la force résultante serait alors dirigée vers l'extérieur du liquide, c'est–à–dire depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent. Les résultats qu'ils ont obtenu démontrent l'apparition d'une force résultante dirigée vers l'extérieur du fluide, c'est–à–dire depuis le milieu d'indice de réfraction le plus grand vers le milieu d'indice de réfraction le plus faible. Ce qui est en accord avec le formalisme proposé par Minkowski.

Malheureusement, l'étude du sens des déformations ne permit finalement pas de mettre un terme à la polémique concernant le tenseur énergie–impulsion. A. Casner [51] a réalisé dans son manuscrit de thèse une revue détaillée des deux formalismes du tenseur énergie–impulsion montrant qu'il n'existe visblement pas d'argument permettant de favoriser l'une

ou l'autre des expressions proposées par Minkowski ou Abraham.

Plus récemment, cette polémique centenaire semble se clarifier [59,60] en reconnaissant les deux formalismes du tenseur énergie–impulsion proposés comme corrects. En effet, la résolution du dilemme Abraham–Minkowski réside dans le fait que l'électromagnétisme reconnaît deux moments distincts, un moment cinétique (formalisme d'Abraham) et un autre canonique (formalisme proposé par Minkowski) [60].

Finalement, notre choix s'est porté sur le formalisme proposé par Minkowski. En effet, comme pour l'expérience de Ashkin et Dziedzic, nos expériences de déformations d'interfaces liquides exhibent elles aussi une déformation induite par la pression de radiation optique toujours dirigée depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent.

2.1.2 Déformation d'une interface liquide induite par la pression de radiation optique : approche qualitative

Pression de radiation électromagnétique à un angle d'incidence θ_i quelconque

Dans cette partie, nous allons développer de manière qualitative le calcul de la pression de radiation optique au niveau d'une interface séparant deux milieux diélectriques, d'indices de réfraction différents ($n_{i,t}$), suivant un angle d'incidence θ_i quelconque. La représentation utilisée pour le calcul de la pression de radiation dans cette partie générale est exposée figure 2.2.

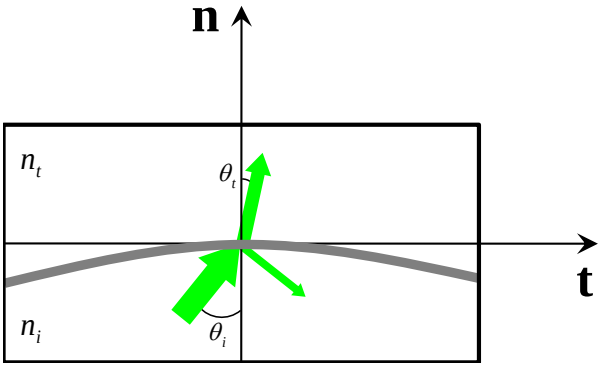


Fig. 2.2 – *Représentation schématique utilisée pour le calcul de la pression de radiation optique exercée par une onde électromagnétique d'angle d'incidence quelconque, focalisée à l'interface entre deux milieux diélectriques d'indices de réfraction n_i et n_t. θ_i et θ_t représentent respectivement l'angle d'incidence et de transmission de l'onde excitatrice.* ***t*** *et* ***n*** *correspondent aux directions tangente et normale au niveau où l'onde incidente intercepte l'interface liquide.*

Comme nous venons de l'introduire via l'expérience fondatrice de Ashkin et Dziedzic, si la fréquence optique de l'onde excitatrice est ν, le module de la quantité de mouvement d'un photon se propageant dans un milieu d'indice de réfraction n, s'écrit $p = nh\nu/c$ suivant le formalisme proposé par Minkowski.

L'interface liquide séparant les deux milieux diélectriques (d'indices de réfraction différents) représentant une discontinuité d'indice de réfraction, la quantité de mouvement portée par la lumière incidente n'est pas conservée lorsque l'onde excitatrice se propage d'un milieu diélectrique à l'autre. Cette discontinuité donne naissance à la pression de

radiation optique exercée au niveau de l'interface liquide de l'échantillon.

D'après la figure 2.2, on obtient au niveau de l'interface les propriétés suivantes : (i) un photon incident donne à l'interface une quantité de mouvement $n_i h\nu/c\,[\sin\theta_i \mathbf{t} + \cos\theta_i \mathbf{n}]$, (ii) un photon réfléchit par l'interface emporte la quantité de mouvement $n_i h\nu/c\,[\sin\theta_i \mathbf{t} - \cos\theta_i \mathbf{n}]$, (iii) un photon transmis emporte une quantité de mouvement $n_t h\nu/c\,[\sin\theta_t \mathbf{t} + \cos\theta_t \mathbf{n}]$.

La pression de radiation résultante est calculée en prenant en compte N photons par unité de surface et de temps, $R(\theta_i, \theta_t)$ et $T(\theta_i, \theta_t) = 1 - R(\theta_i, \theta_t)$ les coefficients de réflexion et de transmission de Fresnel.

La variation élémentaire de quantité de mouvement s'écrit :

$$\mathrm{d}\mathbf{Q} = \mathrm{d}\mathbf{Q}_{\parallel} + \mathrm{d}\mathbf{Q}_{\perp}, \tag{2.1}$$

où les indices $\parallel$ et $\perp$ correspondent respectivement au composantes dans les directions $\mathbf{t}$ et $\mathbf{n}$. Cette variation élémentaire de quantité de mouvement sur une portion d'interface de section S durant un laps de temps $\mathrm{d}t$ est donnée par :

$$\begin{aligned}\mathrm{d}\mathbf{Q} = \mathrm{d}\mathbf{Q}_{\parallel} + \mathrm{d}\mathbf{Q}_{\perp} = &\left[n_i \sin\theta_i - (R(\theta_i, \theta_t) n_i \sin\theta_i + T(\theta_i, \theta_t) n_t \sin\theta_t)\right] \frac{Nh\nu}{c} S\mathrm{d}t\mathbf{t} \\ &+ \left[n_i \cos\theta_i - (-R(\theta_i, \theta_t) n_i \cos\theta_i + T(\theta_i, \theta_t) n_t \cos\theta_t)\right] \frac{Nh\nu}{c} S\mathrm{d}t\mathbf{n}.\end{aligned} \tag{2.2}$$

D'après la loi de Snell–Descartes $n_i \sin\theta_i = n_t \sin\theta_t$, il vient que $\mathrm{d}\mathbf{Q}_{\parallel} = \overrightarrow{0}$. Ce qui indique qu'en absence de dissipation, il n'y a pas de transfert de quantité de mouvement dans la direction parallèle à l'interface. La variation élémentaire de quantité de mouvement se réduit donc à :

$$\mathrm{d}\mathbf{Q} = \mathrm{d}\mathbf{Q}_{\perp} = n_i \cos\theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan\theta_i}{\tan\theta_t} T(\theta_i, \theta_t)\right] \frac{Nh\nu}{c} S\mathrm{d}t\mathbf{n}. \tag{2.3}$$

L'intensité laser est définie classiquement comme $I = N_0 h\nu$, avec N_0 le nombre de photons par unité de temps à travers une section perpendiculaire à l'axe de propagation de l'onde incidente. Ainsi, lorsque l'onde incidente comporte un angle d'incidence quelconque θ_i au niveau de l'interface, on a : $N = N_0 \cos\theta_i$.

La pression de radiation optique, $\Pi_{rad} = \mathrm{d}\mathbf{Q}/S\mathrm{d}t$ agissant au niveau de l'interface liquide pour un angle d'incidence quelconque est donc donnée par [61] :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = n_i \cos^2\theta_i \left[1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan\theta_i}{\tan\theta_t} T(\theta_i, \theta_t)\right] \frac{I}{c}\mathbf{n}. \tag{2.4}$$

À l'aide de cette expression, nous pouvons constater que cette force par unité de surface est toujours dirigée perpendiculairement à l'interface liquide.

De plus, comme nous allons le voir brièvement dans la partie suivante à l'aide d'un cas expérimental à incidence normale, il est assez aisé de démontrer que l'action de la pression de radiation est toujours dirigée depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent.

Pression de radiation électromagnétique à incidence normale : cas expérimental des faibles déformations d'interface

Considérons, sur la figure 2.3, la propagation d'une onde électromagnétique de champ électrique $\overrightarrow{E}$ suivant l'axe z (de vecteur unitaire $\hat{k}_z$), focalisée à l'interface entre deux milieux diélectriques d'indices de réfraction n_1 et n_2 tels que $n_1 < n_2$ (la propagation de l'onde incidente s'effectue dans ce cas de façon ascendante, c'est–à–dire depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent). L'onde incidente est de rayon au col de faisceau ω_0, de fréquence ν, de puissance P et de longueur d'onde dans le vide λ_0. Le profil d'intensité du faisceau est considéré gaussien et s'écrit $I(r,z) \approx I(r) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\exp\left(-2\frac{r^2}{\omega_0^2}\right)$.

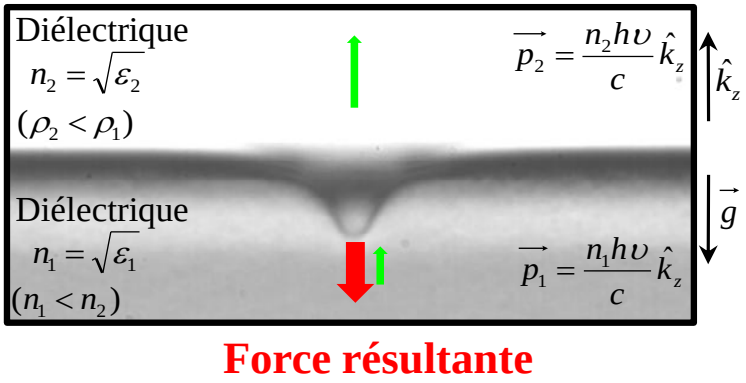


Fig. 2.3 – *Déformation d'une interface liquide induite les effets de la pression de radiation optique d'une onde électromagnétique focalisée, de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 4.85$ µm et de puissance $P = 198$ mW, se propageant du milieu d'indice optique le plus faible vers le milieu d'indice le plus élevé. Système utilisé : mélange eau salée – heptane – AOT en équilibre de Winsor III. Mise en coexistence de la phase aqueuse et de la phase huile (ces deux phases ne diffusent pas la lumière incidente).*

En considérant le cas expérimental présenté figure 2.3 (faisceau laser se propageant depuis le milieu d'indice de réfraction n_1 vers le milieu d'indice de réfraction n_2), la quantité de mouvement $\overrightarrow{p_i}$ d'un photon, proportionnelle à l'indice de réfraction n_i du milieu i ($i = 1, 2$) dans lequel il se propage, s'écrit (suivant le formalisme de Minkowski) : $\overrightarrow{p_i} = \frac{n_i h\nu}{c}\hat{k}_z$ (avec h, la constante de Planck, ν, la fréquence du laser et c la vitesse de la lumière dans le vide). Cette quantité de mouvement varie lorsque le photon est réfracté par l'interface séparant les deux milieux diélectriques. Pour un nombre de photons incidents par unité de temps et de surface N_0 traversant une surface élémentaire S (perpendiculaire à l'axe de propagation de l'onde incidente) pendant un intervalle de temps $\mathrm{d}t$, la conservation de la quantité de mouvement peut s'écrire :

$$\frac{n_1 h\nu}{c}\hat{k}_z N_0 S\mathrm{d}t = \left(T\frac{n_2 h\nu}{c}\hat{k}_z - R\frac{n_1 h\nu}{c}\hat{k}_z\right) N_0 S\mathrm{d}t + \mathrm{d}\overrightarrow{Q}, \tag{2.5}$$

où R et T sont les coefficients respectivement de réflexion et de transmission de Fresnel (avec $T = 1 - R$). En remplaçant les coefficients de Fresnel par leurs expressions dans le cas où l'interface reste suffisamment peu déformée pour pouvoir considérer que l'onde électromagnétique est en incidence normale ($\theta_i = 0$) : $R = \left(\frac{n_1-n_2}{n_1+n_2}\right)^2$ et $T = \frac{4n_1n_2}{(n_1+n_2)^2}$, on trouve que la quantité de mouvement reçue par l'interface par unité de temps et de surface

s'exprime :

$$\frac{1}{S}\frac{\mathrm{d}\overrightarrow{Q}}{\mathrm{d}t} = \frac{2n_1}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right) N_0 h\nu \hat{k}_z, \tag{2.6}$$

où $N_0 h\nu$ correspond exactement à l'intensité I du faisceau laser incident (à incidence normale). La pression de radiation exercée sur l'interface par le faisceau laser à incidence normale ($\theta_i = 0$), lorsque celui-ci se propage du milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent, s'écrit donc :

$$\Pi_{rad} = \Pi_{rad}\left(r, \theta_i = 0\right) = \frac{n_1}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)\frac{4P}{\pi\omega_0^2}\exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right). \tag{2.7}$$

Dans ce cas, la quantité de mouvement d'un photon incident se voit augmentée au passage de l'interface séparant le milieu 1 du milieu 2 car $n_2 > n_1$, le photon est donc accéléré. La déformation d'interface résultante n'est pas dirigée dans le sens de propagation du faisceau laser incident. Si on considère une propagation dans le sens inverse, il suffit d'intervertir les indices 1 et 2 dans l'expression 2.7 et de changer $\hat{k}_z$ en $-\hat{k}_z$ pour s'apercevoir que l'équation 2.7 reste inchangée à un facteur n_1/n_2 près. Ceci traduit l'indépendance du sens de la déformation induite par la pression de radiation d'une onde électromagnétique agissant à l'interface entre deux liquides diélectriques. Ainsi, quelque soit le sens de propagation de l'onde incidente, l'interface se déformera toujours depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent.

Nous venons d'aborder, de manière qualitative, l'action de la pression de radiation optique issue de l'interaction d'une onde électromagnétique focalisée au niveau d'une interface liquide séparant deux milieux diélectriques d'indices de réfraction différents. Dans la partie suivante, nous allons reprendre le calcul de la pression de radiation d'un point de vue plus formel à l'aide des forces électromagnétiques agissant à l'interface.

2.1.3 Déformation d'une interface liquide induite par la pression de radiation optique : approche quantitative

Les différents calculs présentés dans cette partie, nous permettant d'accéder à l'expression de la pression de radiation optique, à incidence quelconque, sont basés sur l'article de revue [62].

Force électromagnétique

La force électromagnétique totale par unité de volume s'exerçant dans un milieu diélectrique isotrope, non–conducteur et non–magnétique, s'écrit classiquement :

$$\overrightarrow{f} = -\frac{1}{2}\left|E\right|^2\overrightarrow{\nabla}\varepsilon + \frac{1}{2}\overrightarrow{\nabla}\left[\left|E\right|^2\rho\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\rho}\right)_S\right] + \frac{\varepsilon_r - 1}{c^2}\frac{\partial}{\partial t}\left(\overrightarrow{E}\times\overrightarrow{H}\right), \tag{2.8}$$

où $\overrightarrow{E}$ et $\overrightarrow{H}$ sont respectivement le champ électrique et le champ magnétique, ρ la masse volumique du fluide considéré, ε la permittivité diélectrique et $\varepsilon_r = \varepsilon/\varepsilon_0$ la permittivité diélectrique relative (ε_0 étant la permittivité du vide).

Les différents termes de l'expression 2.8 peuvent être interprétés de la façon suivante. Le dernier terme à droite est appelé terme d'Abraham. Ce terme n'est détectable que pour des conditions très particulières, à faible fréquence, mais en aucun cas aux fréquences optiques.

Le second terme est appelé terme d'électrostriction. Si on considère le fluide comme incompressible, le terme électrostrictif, s'exprimant comme une force volumique, n'aura aucune contribution à la déformation de l'interface. L'électrostriction n'a donc pas d'effet sur les déformations stationnaires d'interfaces liquides étudiées [63].

Enfin, le premier terme de l'expression 2.8, généralement appelé pression de radiation optique, est dû au changement de quantité de mouvement des photons lors d'un saut d'indice au passage d'un fluide à un autre. En effet, la traversée de l'interface séparant deux liquides entraîne une discontinuité des permittivités diélectriques. Les deux fluides étant considérés comme homogènes, la pression de radiation est inopérante dans chacun des deux fluides en volume mais, par contre, induit une contrainte à l'interface entre ces deux milieux diélectriques. Ainsi, on obtient finalement :

$$\overrightarrow{f} = -\frac{1}{2}\left|E\right|^2 \overrightarrow{\nabla}\varepsilon. \tag{2.9}$$

C'est le seul terme à prendre en compte pour une onde laser continue en présence de milieux isotropes séparés par une interface. La force est nulle partout sauf dans les régions inhomogènes et c'est à partir de son expression que l'on peut calculer la pression de radiation. La figure 2.4, caractéristique de nos expérimentations, définit les différentes variables intervenant dans le problème. La force par unité de surface, abusivement appelée pression de radiation, est obtenue en intégrant la composante normale de la force volumique à travers l'interface ; elle peut également être évaluée par le saut de contrainte normale du tenseur électromagnétique de Maxwell.

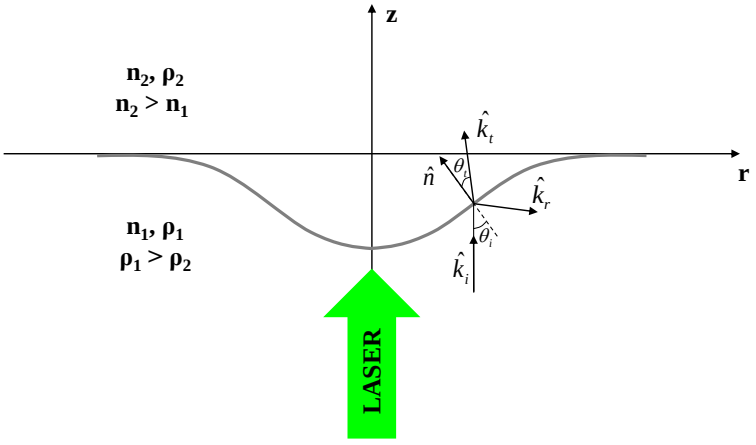


Fig. 2.4 – *Illustration du déplacement de l'interface liquide sous les effets de la pression de radiation optique. Définition des différentes notations utilisées dans le problème.*

Pression de radiation

Nous considérons une onde électromagnétique monchromatique, de champ électrique $\overrightarrow{E^{(i)}}(r)\exp(-i\omega t)$, se propageant depuis le milieu 1 vers le milieu 2 (*i.e.* depuis la phase liquide inférieure vers la phase liquide supérieure). La direction d'incidence du vecteur

d'onde $\overrightarrow{k}_i$ est choisie suivant z et donnée par le vecteur unitaire dans le milieu 1 telle que :

$$\overrightarrow{k}_i = (0, 0, 1)\,. \tag{2.10}$$

Lorsque cette onde incidente intercepte l'interface liquide, nous pouvons décomposer le champ électrique en une composante transmise $\overrightarrow{E^{(t)}}(r)$ et en une composante réfléchie $\overrightarrow{E^{(r)}}(r)$ se propageant respectivement suivant les directions $\overrightarrow{k}_t$ et $\overrightarrow{k}_r$. Nous considérons l'onde incidente comme une onde plane. Le plan d'incidence est formé par les vecteurs $\overrightarrow{k}_i$ et $\hat{n}$, où $\hat{n}$ représente la normale à l'interface.

Comme précédemment, lors de l'approche qualitative de la pression de radiation, l'angle d'incidence de l'onde excitatrice est noté θ_i alors que l'angle de transmission est θ_t (*cf.* figure 2.4). De plus, les composantes parallèle et perpendiculaire du champ électrique par rapport au plan d'incidence sont notées respectivement $\overrightarrow{E}_\parallel$ et $\overrightarrow{E}_\perp$.

On peut donc écrire :

$$\overrightarrow{E}^{(i)} = \overrightarrow{E}_\parallel + \overrightarrow{E}_\perp = \overrightarrow{E}_\parallel + \frac{\overrightarrow{D}_\perp}{\varepsilon_0 \varepsilon_r}. \tag{2.11}$$

Sachant que $\overrightarrow{E}_\parallel$ et $\overrightarrow{D}_\perp$ sont continus à l'interface. On en déduit :

$$\left(\overrightarrow{\nabla}\varepsilon_r\right)\varepsilon_0 \left|\overrightarrow{E}\right|^2 = \left(\overrightarrow{\nabla}\varepsilon_r\right)\varepsilon_0 \left|\overrightarrow{E}_\parallel\right|^2 - \frac{1}{\varepsilon_0}\left[\overrightarrow{\nabla}\left(\frac{1}{\varepsilon_r}\right)\right]\left|\overrightarrow{D}_\perp\right|^2. \tag{2.12}$$

De plus, par définition $\overrightarrow{\Pi}_{rad} = \int_1^2 f(\overrightarrow{r})\mathrm{d}\overrightarrow{r}$ (les bornes d'intégrations correspondent au milieu 1 et au milieu 2), il en résulte :

$$\overrightarrow{\Pi}_{rad} = -\frac{\varepsilon_0}{2}\int_1^2 \left|\overrightarrow{E}_\parallel\right|^2 \left(\overrightarrow{\nabla}\varepsilon_r\right)\mathrm{d}\overrightarrow{r} + \frac{1}{2\varepsilon_0}\int_1^2 \left|\overrightarrow{D}_\perp\right|^2 \overrightarrow{\nabla}\left(\frac{1}{\varepsilon_r}\right)\mathrm{d}\overrightarrow{r}. \tag{2.13}$$

En intégrant par parties et en tenant compte de la continuité de $\overrightarrow{E}_\parallel$ et $\overrightarrow{D}_\perp$ à l'interface, on trouve que :

$$\overrightarrow{\Pi}_{rad} = \left\{-\frac{\varepsilon_0}{2}\left(\varepsilon_{r2} - \varepsilon_{r1}\right)\left|\overrightarrow{E}_\parallel\right|^2 + \frac{\left|\overrightarrow{D}_\perp\right|^2}{2\varepsilon_0}\left(\frac{1}{\varepsilon_{r2}} - \frac{1}{\varepsilon_{r1}}\right)\right\}\hat{n}. \tag{2.14}$$

Enfin en utilisant $\overrightarrow{D}_\perp = \varepsilon_0\varepsilon_1\overrightarrow{E}_{1\perp}$, on a :

$$\overrightarrow{\Pi}_{rad} = \left\{\frac{\varepsilon_0}{2}\left(\varepsilon_{r1} - \varepsilon_{r2}\right)\left[\left|\overrightarrow{E}_\parallel\right|^2 + \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}\left|\overrightarrow{E}_{1\perp}\right|^2\right]\right\}\hat{n}. \tag{2.15}$$

En moyennant sur une période optique, on trouve finalement :

$$\overrightarrow{\Pi}_{rad} = \frac{\varepsilon_0}{4}\left(\varepsilon_{r1} - \varepsilon_{r2}\right)\left[\left|\overrightarrow{E}_\parallel\right|^2 + \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2}\left|\overrightarrow{E}_{1\perp}\right|^2\right]\hat{n}. \tag{2.16}$$

Parallèlement, l'intensité du faisceau incident peut s'écrire comme :

$$I = \varepsilon\nu\left\langle\left|E^{(i)}\right|^2\right\rangle = \varepsilon_0 n_1 c\left\langle\left|E^{(i)}\right|^2\right\rangle = \frac{1}{2}\varepsilon_0 n_1\left|E^{(i)}\right|^2, \tag{2.17}$$

où $\nu = c/n$ est la vitesse de la lumière dans le milieu.

En désignant par α l'angle entre $\overrightarrow{E^{(i)}}$ et le plan d'incidence nous pouvons écrire :

$$E_{\parallel}^{(i)} = E^{(i)} \cos\alpha, \quad E_{\perp}^{(i)} = E^{(i)} \sin\alpha. \tag{2.18}$$

Et la pression de radiation devient :

$$\overrightarrow{\Pi}_{rad} = -\frac{I}{2c}\frac{n_2^2 - n_1^2}{n_2}\frac{\cos\theta_i}{\cos\theta_t}\left[\left(\sin^2\theta_i + \cos^2\theta_t\right) T_{\parallel}\cos^2\alpha + T_{\perp}\sin^2\alpha\right]\hat{n}, \tag{2.19}$$

où les expressions des flux d'énergie transmis $T_{\parallel}$ et $T_{\perp}$ s'écrivent [62] :

$$T_{\parallel} = \frac{n_2}{n_1}\frac{\cos\theta_t}{\cos\theta_i}\left(\frac{E_{\parallel}^{(t)}}{E_{\parallel}^{(i)}}\right)^2 = \frac{\sin 2\theta_i \sin 2\theta_t}{\sin^2(\theta_i + \theta_t)\cos^2(\theta_i - \theta_t)}, \tag{2.20}$$

$$T_{\perp} = \frac{n_2}{n_1}\frac{\cos\theta_t}{\cos\theta_i}\left(\frac{E_{\perp}^{(t)}}{E_{\perp}^{(i)}}\right)^2 = \frac{\sin 2\theta_i \sin 2\theta_t}{\sin^2(\theta_i + \theta_t)}. \tag{2.21}$$

Enfin, lorsque $\overrightarrow{E^{(i)}} = \overrightarrow{E_{\parallel}^{(i)}}$ ou $\overrightarrow{E^{(i)}} = \overrightarrow{E_{\perp}^{(i)}}$ (*i.e.* lorsque $\alpha = 0$ ou $\alpha = \pi/2$), la pression de radiation optique peut se réécrire comme :

$$\overrightarrow{\Pi}_{rad} = \frac{n_1 I}{c}\cos^2\theta_i\left(1 + R(\theta_i, \theta_t) - \frac{\tan\theta_i}{\tan\theta_t}T(\theta_i, \theta_t)\right)\hat{n}, \tag{2.22}$$

où $R = 1 - T$. L'expression ainsi obtenue de la pression de radiation optique est évidemment tout à fait identique à celle obtenue lors de l'approche qualitative de ce calcul (équation 2.4). Elle montre à nouveau que la force surfacique est normale à l'interface et dirigée vers le liquide de moindre indice de réfraction.

Prise en compte de la géométrie expérimentale

Le type d'onde laser considéré dans ce travail étant gaussien TEM_{00}, la géométrie expérimentale peut être décrite par un système de coordonnées cylindriques (r, θ, z). Aucune variation n'est observable suivant la direction azimutale, de telle sorte que $\frac{\partial h}{\partial \theta} = 0$. Nous pouvons réécrire :

$$\cos\theta_i = \frac{1}{\sqrt{1 + h'(r)^2}}, \quad \sin\theta_i = \frac{h'(r)}{\sqrt{1 + h'(r)^2}}, \tag{2.23}$$

où $h'(r) = \frac{\partial h}{\partial r}$. En substituant ces nouvelles expressions dans la relation 2.19, on obtient :

$$\Pi_{rad} = -\frac{2n_1 I}{c}\frac{1 - n_{12}}{1 + n_{12}}\psi(h'(r), \alpha), \tag{2.24}$$

avec d'une part $n_{12} = n_1/n_2$, l'indice de réfraction relatif et $\psi(h'(r), \alpha)$, la fonction :

$$\begin{aligned}\psi(h'(r), \alpha) &= \frac{(1 + n_{12})^2}{\left[n_{12} + \sqrt{1 + (1 - n_{12}^2)\,h'(r)^2}\right]} \\ &\times \left\{\sin^2\alpha + \frac{1 + (3 - n_{12}^2)\,h'(r)^2 + (2 - n_{12}^2)\,h'(r)^4}{\left[n_{12}h'(r)^2 + \sqrt{1 + (1 - n_{12}^2)\,h'(r)^2}\right]}\cos^2\alpha\right\}.\end{aligned} \tag{2.25}$$

Lorsque l'interface est plane (horizontale), $h'(r) = 0$ et $\psi = 1$, l'expression de la pression de radiation devient simplement :

$$\Pi_{rad} = -\frac{n_1 I}{c}\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}. \tag{2.26}$$

L'une des caractéristiques de l'expression 2.25 est une faible dépendance vis–à–vis des variations de l'angle de la polarisation de l'onde incidente et ceci est d'autant vrai que l'indice de réfraction $n_{12} = n_1/n_2$ est proche de l'unité [51, 62] (ce qui est équivalent, lors de l'utilisation de fluides critiques comme nous le ferons au cours de cette thèse, à un écart à la température critique tendant vers zéro).

Enfin, si l'on considère une lumière incidente non–polarisée, nous pouvons remplacer la fonction $\psi\left(h'(r), \alpha\right)$ par sa valeur moyenne par rapport à α. Sachant que $\langle \sin^2 \alpha \rangle = \langle \cos^2 \alpha \rangle = 1/2$, la pression de radiation optique peut donc se réécrire comme :

$$\Pi_{rad} = -\frac{2n_1 I}{c}\left(1 - n_{12}^2\right)\frac{1 + \left(2 - n_{12}^2\right)h'(r)^2 + n_{12}h'(r)^2\sqrt{1 + \left(1 - n_{12}^2\right)h'(r)^2} + h'(r)^4}{\left[n_{12} + \sqrt{1 + \left(1 - n_{12}^2\right)h'(r)^2}\right]^2\left[n_{12}h'(r)^2 + \sqrt{1 + \left(1 - n_{12}^2\right)h'(r)^2}\right]^2}. \tag{2.27}$$

Variation de la pression de radiation optique en fonction de l'angle d'incidence θ_i de l'onde excitatrice se propageant de manière ascendante et descendante

L'intensité lumineuse du faisceau laser incident, de profil gaussien, est donnée par : $I\left(r, z\right) \approx I\left(r\right) = \frac{2P}{\pi\omega_0^2}\exp\left(-2\frac{r^2}{\omega_0^2}\right)$. Nous pouvons ainsi réécrire l'expression de la pression de radiation donnée par l'équation 2.22, pour une onde se propageant depuis le milieu i ($i = 1, 2$), telle que :

$$\Pi_{rad}(r, \theta_i, \theta_t) = \frac{n_i}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)\frac{4P}{\pi\omega_0^2}\cos^2(\theta_i)\left(1 + R - \frac{\tan\theta_i}{\tan\theta_t}T\right)\exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right). \tag{2.28}$$

À l'aide de cette expression, nous sommes en mesure de calculer les contributions de la pression de radiation optique à la déformation d'interface liquide en fonction de l'angle d'incidence θ_i et suivant le sens de propagation de l'onde excitatrice. Un exemple de ces contributions est présenté sur la figure 2.5 pour une émulsion quasi-critique en régime diphasique où $\delta = \frac{n_2 - n_1}{n_2}$ est une version un peu modifiée du constraste d'indice de réfraction relatif utilisé précédemment [64].

La figure 2.5 représente l'évolution de la pression de radiation optique pour un angle d'incidence θ_i, normalisée par la pression de radiation obtenue en incidence normale ($\theta_i = 0$) exprimée par la relation 2.7 et pour les deux sens de propagation (depuis le milieu d'indice de réfraction n_1 vers le milieu d'indice de réfraction n_2 puis inversement, avec $n_2 > n_1$).

Tout d'abord, nous pouvons remarquer sur les courbes présentées figure 2.5 que la pression de radiation, lorsque l'onde se propage depuis le milieu d'indice n_1 (*resp.* n_2), diminue (*resp.* augmente) lorsque l'angle d'incidence θ_i augmente. Pour le système utilisé figure 2.5, les pressions de radiation optique pour les deux sens de propagation proposés sont d'égales importances tant que $\theta_i < 50^\circ$. Ensuite, leurs comportements diffèrent.

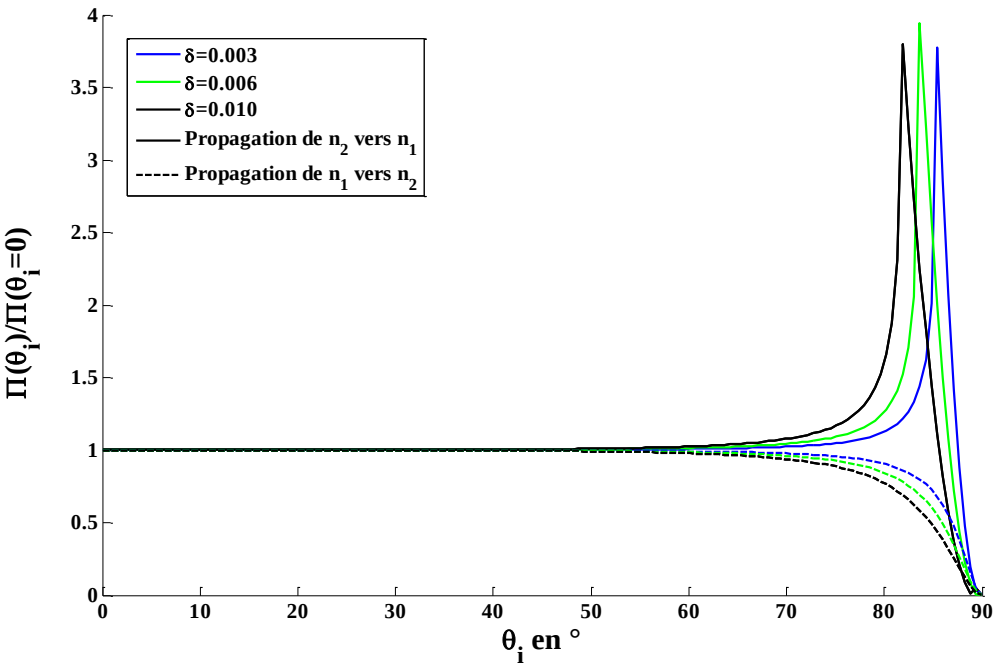


Fig. 2.5 – *Variation de la pression de radiation optique normalisée par sa valeur à incidence normale en fonction de l'angle d'incidence θ_i. Les deux sens de propagation sont représentés et les calculs sont réalisés pour une émulsion quasi-critique en configuration diphasique présentant différents contrastes d'indices de réfraction relatifs $\delta = \frac{n_2 - n_1}{n_2}$ ($\delta = 0.003$ correspond à $T - T_C = 1$ K, $\delta = 0.006$ correspond à $T - T_C = 10$ K et $\delta = 0.01$ correspond à $T - T_C = 50$ K (où T est la température et T_C, la température critique de l'échantillon)).*

Lorsque l'onde se propage depuis le milieu d'indice n_1 vers le milieu d'indice n_2, il apparaît une réflexion totale dont l'angle est défini comme : $\theta_{RT} = \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2}\right)$; il est de l'ordre de 80° pour ce système fluide. Lorsque $\theta_i = \theta_{RT}$, la pression de radiation est à peu près 4 fois plus grande qu'à incidence normale [63–65]. D'autre part, cette différence de comportement entre les deux types de propagations apparaît pour un angle d'incidence d'autant plus élevé que le contraste d'indice de réfraction entre les deux milieux est faible (*i.e.* lorsque $\delta \to 0$). Ceci illustre le fait que la pression de radiation, qui rappelons-le est due à la discontinuité de constante diélectrique entre les deux milieux, est moins sensible à l'angle d'incidence de l'onde électromagnétique lorsque les indices de réfraction des deux milieux tendent à s'égaliser.

Nous reviendrons tout au long de ce manuscrit sur cette particularité de la pression de radiation inhérente au sens de propagation de l'onde incidente lorsque nous étudierons le comportement de déformations d'interfaces liquides induites par deux faisceaux lasers contra-propageants. Nous verrons que, lorsque nous nous plaçons dans cette configuration expérimentale, considérer les contributions des pressions de radiation suivant la propagation de l'onde incidente s'avère être un argument pertinent pour expliquer les phénomènes observés.

2.1.4 Équations régissants l'équilibre de l'interface en absence d'écoulement

Comme nous l'avons déjà évoqué, les différentes contraintes présentées plus haut sont en mesure d'engendrer la déformation d'une interface liquide molle. Les forces capillaires ainsi que la gravité s'opposent à cette déformation.

Si l'on considère une interface liquide molle en absence d'écoulement, l'équilibre des forces surfaciques exercées sur cette interface s'écrit comme l'équilibre entre la pression de radiation d'une onde électromagnétique $\Pi_{rad}(r)$, les contraintes capillaires (pression de Laplace notée $\Pi_{Laplace}(r) = \sigma\kappa(r)$) et la gravité (poussée d'Archimède). Cet équilibre s'écrit tel que :

$$\Delta\rho g h(r) = \sigma\kappa(r) + \Pi_{rad}(r), \tag{2.29}$$

où $\Delta\rho = |\rho_1 - \rho_2|$ est le constraste de masse volumique entre les deux phases. $\kappa(r)$ est la courbure moyenne de l'interface et s'exprime :

$$\kappa(r) = \frac{1}{r}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}r}\left(\frac{rh'(r)}{\sqrt{1+h'(r)^2}}\right), \tag{2.30}$$

où $h'(r) = \frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}r}$.

Pour de faibles déformations, il est possible de considérer une approximation linéaire d'ordre 1 en $h'(r)$ et ainsi assimiler la courbure de l'interface au laplacien transverse de la hauteur $h(r)$, tel que [51] :

$$\kappa(r) \simeq \Delta_r h(r). \tag{2.31}$$

Pour de faibles courbures d'interface, l'équation 2.29 devient (en considérant l'expression de la pression de radiation optique en incidence normale donnée par la relation 2.7) [51] :

$$\Delta\rho g h(r) - \sigma\Delta_r h(r) = \frac{n_1}{c}\left(\frac{n_1-n_2}{n_1+n_2}\right)\frac{4P}{\pi\omega_0^2}\exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right). \tag{2.32}$$

Comparaison des effets capillaires à la gravité : introduction du nombre de Bond optique

Le nombre de Bond optique permet d'évaluer l'importance relative des effets gravitationnels par rapport aux effets capillaires (dus à la tension interfaciale). Il s'exprime de la façon suivante :

$$Bo = \frac{\text{Poussée d'Archimède}}{\text{Pression de Laplace}}. \tag{2.33}$$

La longueur carcatéristique du système étant le rayon au col du faisceau laser ω_0, le nombre de Bond optique s'écrit :

$$Bo = \frac{\Delta\rho g h}{\frac{\sigma h}{\omega_0^2}}. \tag{2.34}$$

Il est alors aisé d'en déduire une échelle caractéristique sur laquelle les effets gravitationnels seront comparés aux effets relatifs à la tension interfaciale : la longueur capillaire,

notée l_c et s'exprimant :

$$l_c = \sqrt{\frac{\sigma}{\Delta\rho g}}. \tag{2.35}$$

Le nombre de Bond optique devient :

$$Bo = \left(\frac{\omega_0}{l_c}\right)^2. \tag{2.36}$$

Ainsi lorsque $\omega_0 << l_c$, les effets relatifs à la tension interfaciale prédomineront alors que dans le cas inverse, $\omega_0 >> l_c$, les effets capillaires seront négligeables devant ceux de la gravité.

2.2 Contraintes exercées par la diffusion de la lumière

Au cours de la section précédente, nous avons étudié l'action de la pression de radiation optique issue de l'interaction d'une onde électromagnétique avec une interface liquide séparant deux milieux diélectriques d'indices de réfractions différents. Nous avons évalué cette force surfacique à la fois d'un point de vue corpusculaire et d'un point de vue ondulatoire. Dans cette nouvelle section, nous allons adopter la même démarche afin de mettre en exergue les contraintes visqueuses, agissant au niveau de l'interface liquide, résultants de la diffusion de l'onde incidente en volume.

2.2.1 Déformation d'une interface liquide molle induite par la diffusion de l'onde incidente en volume : approche qualitative

Considérons un milieu homogène non–absorbant d'indice n comportant des inhomogénéités d'indice de réfraction en volume n_s. L'onde incidente va intéragir avec le milieu environnant par le biais de diffusions élastiques sur ces inhomogénéités. Cette diffusion de lumière entraîne un transfert de quantité de mouvement entre la lumière et la matière environnante créant ainsi une force volumique $\overrightarrow{f_i^{scatt}}$ ($i = 1, 2$ correspondant au milieu étudié). Cette force volumique, que l'on nommera dans la suite force diffusive (*scattering force* en anglais) est dirigée dans le sens de propagation de l'onde incidente et conduit à l'établissement d'écoulements permanents en volume, parallèles à l'axe du faisceau laser. Lorsque le système fluide utilisé comporte une interface molle, les écoulements induits engendrent des contraintes visqueuses au niveau de l'interface, pouvant conduire à la déformation de celle–ci. La figure 2.6 est une image expérimentale permettant la visualisation directe de ces écoulements en volume générés par la diffusion de la lumière dans le milieu. Le système utilisé est un échantillon de Winsor (mélange eau salée – AOT – heptane) en équilibre de Winsor II présentant une phase micellaire de microémulsion eau dans huile qui diffuse la lumière en coexistence avec un excès de la phase aqueuse (non diffusante) (pour plus de détails, voir annexe A.1). La propagation de l'onde laser incidente s'effectue depuis le bas vers le haut et on peut observer les écoulements induits dans la phase micellaire de microémulsion (phase supérieure de l'échantillon diphasique présenté).

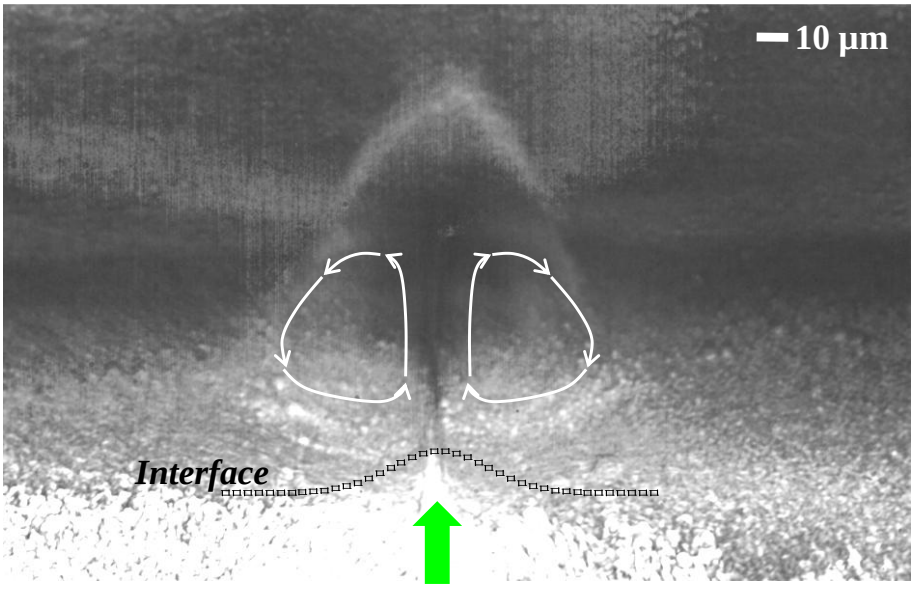


Fig. 2.6 – *Image expérimentale permettant la visualisation des écoulements induits par la diffusion de la lumière dans un échantillon de Winsor (mélange d'eau salée – AOT – heptane) en équilibre de Winsor II présentant une phase aqueuse (phase du bas : non diffusante) et une phase micellaire de microémulsion eau dans huile (phase du haut : diffusante). La concentration en sel est* $[NaCl] = 0.05$ mol/L, *la concentration en surfactant est* $[AOT] = 40.10^{-3}$ mol.L *et la tension interfaciale est de l'ordre de* $\sigma = 1 - 5.10^{-6}$ N/m. *Une fine couche de mousse est présente à l'interface entre les deux fluides permettant la visualisation des écoulements. L'interface est surlignée par les symbole carrés. La propagation de l'onde électromagnétique incidente s'effectue du bas vers le haut avec les caractéristiques : laser Nd–YAG de longueur d'onde dans le vide* $\lambda_0 = 532$ nm, $\omega_0 = 2.99$ µm, $P = 1.32$ W. *Les flèches schématisent le sens de l'écoulement induit. L'image présentée est le résultat de la superposition de plusieurs images issues d'une vidéo à une cadence de 100 images par seconde.*

L'établissement d'écoulements par le transfert de quantité de mouvement de la lumière au fluide environnant fut considéré théoriquement à la fin des années 1990 par Savchenko *et al.* [66]. Ils ont montré que lorsqu'un faisceau lumineux traverse un milieu inhomogène, de la « convection » (au sens d'écoulement circulaire) dans le liquide peut s'établir due au transfert de quantité de mouvement entre la lumière et la matière. Ils ont considéré qu'à la fois l'absorption ou la diffusion de l'onde incidente pouvaient être utilisées pour générer ces écoulements circulaires. Alors que l'absorption peut être présente dans des fluides classiques, la diffusion de la lumière nécessite la présence d'inhomogénéités spatiales d'indice de réfraction. Nous nous intéressons ici uniquement au transfert de quantité de mouvement lumière – matière dû à la diffusion élastique de la lumière, l'absorption étant négligeable dans les milieux turbides que nous considérons (annexe A). La figure 2.7 (a) illustre la diffusion de la lumière par un milieu turbide présentant des inhomogénéités d'indice de réfraction qui peuvent être considérées comme une collection de diffuseurs individuels.

Considérons une onde électromagnétique se propageant à travers ce milieu isotrope d'indice n présentant des inhomogénéités spatiales d'indice de réfraction $n_s \neq n$ distribuées alétoirement. Il en résulte une atténuation de l'onde incidente par ces diffuseurs individuels que l'on peut caractériser par la turbidité du milieu (représentant le coefficient

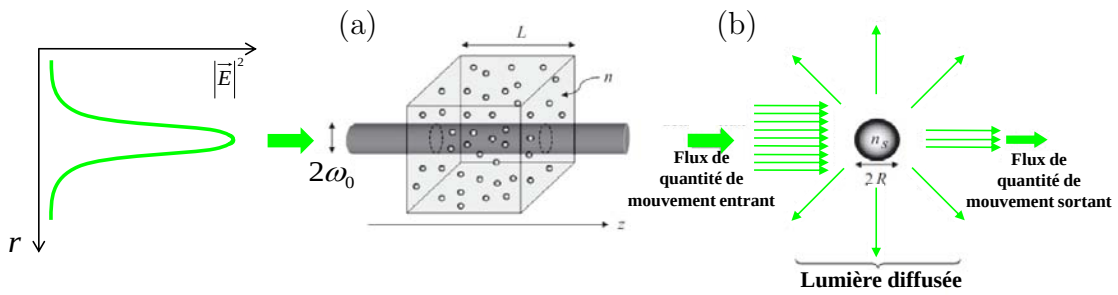


Fig. 2.7 – *(a) Illustration de la propagation d'une onde électromagnétique de col de faisceau ω_0 à travers un système fluide de largeur L, constitué d'une collection de diffuseurs d'indice de réfraction n_s distribués aléatoirement dans un milieu homogène d'indice de réfraction $n \neq n_s$. (b) Principe de la diffusion de la lumière par un diffuseur individuel de rayon R et d'indice de réfraction n_s. Image issue de [67].*

d'atténuation de l'intensité $I(z)$ du faisceau (*cf.* 2.17)) telle que [67] :

$$\tau = -\frac{1}{I(z)}\left(\frac{\mathrm{d}I(z)}{\mathrm{d}z}\right). \tag{2.37}$$

La force volumique résultante de cette diffusion de lumière dans la suspension présentée figure 2.7 (a) s'exprime donc en fonction de la turbidité du milieu telle que :

$$\overrightarrow{f^{scatt}}(\overrightarrow{r}, t) = \frac{\tau n}{c} < \overrightarrow{S} >, \tag{2.38}$$

où $< \overrightarrow{S} >$ représente la moyenne temporelle du vecteur de Poynting ($\overrightarrow{S} = I(r)\hat{z}$ avec $I(r)$, l'intensité du faisceau lumineux et $\hat{z}$ le vecteur unitaire de l'axe z de propagation).

Mise en mouvement du fluide

La vitesse moyenne de la suspension u est déterminée par l'équilibre entre le travail par unité de temps $\dot{\mathcal{W}}$ de cette force et le taux de dissipation visqueuse $\dot{\mathcal{D}}$ qui s'expriment respectivement, en considérant un écoulement à faible nombre de Reynolds [67] :

$$\dot{\mathcal{W}} \sim f^{scatt} u \omega_0^2 L, \tag{2.39}$$

$$\dot{\mathcal{D}} \sim L^3 \eta \left(\frac{u}{L}\right)^2, \tag{2.40}$$

où η est la viscosité dynamique de la suspension. Ainsi, en écrivant $\dot{\mathcal{W}} \sim \dot{\mathcal{D}}$, on trouve que la vitesse moyenne de la suspension s'écrit comme [67] :

$$u \sim \frac{\omega_0^2 f^{scatt}}{\eta}. \tag{2.41}$$

De manière à évaluer la mise en mouvement du fluide constitué de diffuseurs individuels sous l'action de la diffusion de la lumière, il convient de comparer cette vitesse moyenne de la suspension u à la vitesse de chaque diffuseur, notée u_s, parallèle à l'axe du faisceau laser. Cette dernière est déterminée par l'équilibre entre la force de diffusion $\overrightarrow{F^{scatt}}$ exercée

sur un diffuseur individuel et la force de traînée visqueuse $\overrightarrow{F_{Traînée}}$. Ces forces s'expriment respectivement :

$$\overrightarrow{F^{scatt}} = \frac{\Sigma n}{c} < \overrightarrow{S} >, \tag{2.42}$$

où Σ représente la section efficace de diffusion du diffuseur et peut être explicitée dans le régime de diffusion Rayleigh ($R << \lambda$, rayon du diffuseur très petit devant la longueur d'onde de l'onde incidente dans la suspension) par : $\Sigma = \frac{8}{3}\pi\,(kR)^4\,R^2\left(\frac{n_s^2-n^2}{n_s^2+2n^2}\right)^2$, où $k = 2\pi/\lambda$.

La force de traînée, quant à elle, s'écrit :

$$\overrightarrow{F_{Traînée}} = -6\pi\eta R\overrightarrow{u_s}. \tag{2.43}$$

Finalement, la vitesse relative de chaque diffuseur vaut [67] :

$$u_s \sim \frac{\Sigma n I}{c\eta R}, \tag{2.44}$$

(par souci de simplicité, les diffuseurs de rayon R sont considérés comme sphériques).

Le fluide est mis en mouvement dans sa globalité si $u_s << u$. Pour que cette relation soit vérifiée, il faut que la fraction volumique des diffuseurs, notée : $\Phi = \frac{4}{3}\pi N R^3$ (avec N, le nombre de diffuseurs par unité de volume), satisfasse à la condition :

$$\Phi >> \frac{R^2}{\omega_0^2}. \tag{2.45}$$

Cette condition doit être associée à l'hypothèse d'une faible atténuation de l'onde dans l'échantillon : $\tau L << 1$. Pour que ces deux conditions soient respectées, il vient que [67] :

$$(\Delta n)^2\left(\frac{R}{\omega_0}\right)^2\left(\frac{L}{R}\right)(kR)^4 << 1, \tag{2.46}$$

avec $\Delta n = n_s - n$, le contraste d'indice de réfraction entre les diffuseurs et le milieu environnant. Il est donc possible de trouver des conditions réalistes pour lesquelles la diffusion d'une onde lumineuse par un fluide turbide peut conduire à la mise en mouvement de ce fluide.

Expression de la force diffusive dans un milieu turbide

La première preuve indirecte de l'établissement d'un écoulement permanent déformant une interface molle, induit par la diffusion de la lumière dans un milieu turbide, fut réalisée par Schroll *et al.* [68]. Ils ont pu mettre en évidence que la diffusion de la lumière produisait une force en volume dirigée dans le sens de propagation de l'onde incidente. Le système utilisé est une phase micellaire de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre (voir annexe A.2). Ce système constitue une alternative intéressante à l'étude de ces phénomènes physiques car il présente deux phases liquides non–absorbantes séparées par une interface extrêmement déformable. La criticalité de cet échantillon exhibe des fluctuations spatiales et temporelles de la composition micellaire (*i.e.* de l'indice de réfraction). La tension interfaciale de l'échantillon ainsi que la longueur

de corrélation des fluctuations de densité sont modulables via un contrôle de l'écart de la température par rapport à la température critique de l'échantillon utilisé.

Si on considère une onde électromagnétique se propageant depuis le bas vers le haut (*i.e.* depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent), les contraintes visqueuses associées à la force diffusive et la recirculation du fluide résultant de la conservation de la masse entraînent la déformation de l'interface comme cela est illustré sur la figure 2.8.

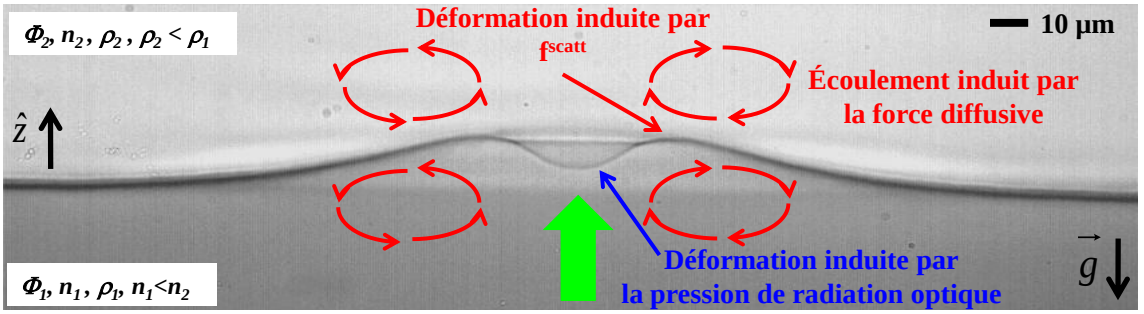


Fig. 2.8 – *Illustration de la déformation de l'interface molle, d'une phase micellaire de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre, induite par les contraintes visqueuses et la recirculation du fluide dues à la diffusion de la lumière. Le système est régulé en température tel que $T - T_C = 1$ K où T est la température et T_C, la température critique de l'échantillon. Lorsque le système est régulé à une température supérieure à cette température critique, l'échantillon se sépare en deux phases de concentrations micellaires différentes. Le faisceau laser incident est un Nd^{3+}–YAG de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm en propagation ascendante. Le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 9.8$ µm et la puissance est $P = 1$ W. Les « rouleaux » des écoulements induits sont représentés schématiquement.*

À partir de l'expression de l'intensité diffusée caluclée par Puglielli et Ford dans les années 1970 [69] en prenant en compte la théorie de la diffusion de la lumière par des fluctuations critiques établie par Ornstein et Zernike au début du XXème siècle, il est possible de calculer la force volumique de diffusion dans un mélange binaire quasi-critique. Cette force diffusive $\overrightarrow{f_i^{scatt}}$ s'écrit, dans le milieu $i = 1, 2$ [68] :

$$\overrightarrow{f_i^{scatt}} = D_i \chi_T I \hat{z}, \tag{2.47}$$

avec χ_T la susceptibilité osmotique isotherme de la microémulsion (détaillée en annexe A.2), I l'intensité du faisceau. D_i décrit l'interaction de la lumière incidente avec les fluctuations d'indice de réfraction du milieu i.

La section suivante explicite les différentes étapes permettant d'obtenir cette expression de la force diffusive.

2.2.2 Déformation d'une interface liquide molle induite par la diffusion de l'onde incidente en volume : approche quantitative

Au cours de cette section, nous allons déterminer l'expression de la force diffusive dans un système quasi–critique. Les différents calculs présentés par la suite sont inspirés

notamment de l'ouvrage de B. J. Berne et R. Pecora [70] traitant de la diffusion de la lumière. D'autre part l'ouvrage de H. E. Stanley [71] peut être consulté avec intérêt pour la partie traitant de l'approximation de Ornstein–Zernike.

Brève introduction

Considérons un fluide diélectrique et isotrope, de constante diélectrique moyenne $\langle \varepsilon(\overrightarrow{r}, t) \rangle = \varepsilon_l = \varepsilon_0 \varepsilon_r$ dans lequel se propage une onde plane incidente de la forme : $\overrightarrow{E}_i(\overrightarrow{r}, t) = \overrightarrow{n}_i E_0 \exp\left[i\left(\overrightarrow{k}_i \cdot \overrightarrow{r} - \omega_i t\right)\right]$ de polarisation $\overrightarrow{n}_i$ et de vecteur d'onde $\overrightarrow{k}_i = \frac{\omega_i}{c}\hat{k}_i$.

Le fluide étant considéré comme diffusant, la constante diélectrique locale comporte une partie fluctuante telle que :

$$\varepsilon(\overrightarrow{r}, t) = \varepsilon_l + \delta\varepsilon(\overrightarrow{r}, t). \tag{2.48}$$

On suppose de plus que le milieu diélectrique est non–absorbant, que la diffusion de l'onde incidente par les diffuseurs est élastique et que la concentration en diffuseurs est suffisamment faible de manière à négliger la diffusion multiple.

La géométrie de diffusion considérée est illustrée figure 2.9.

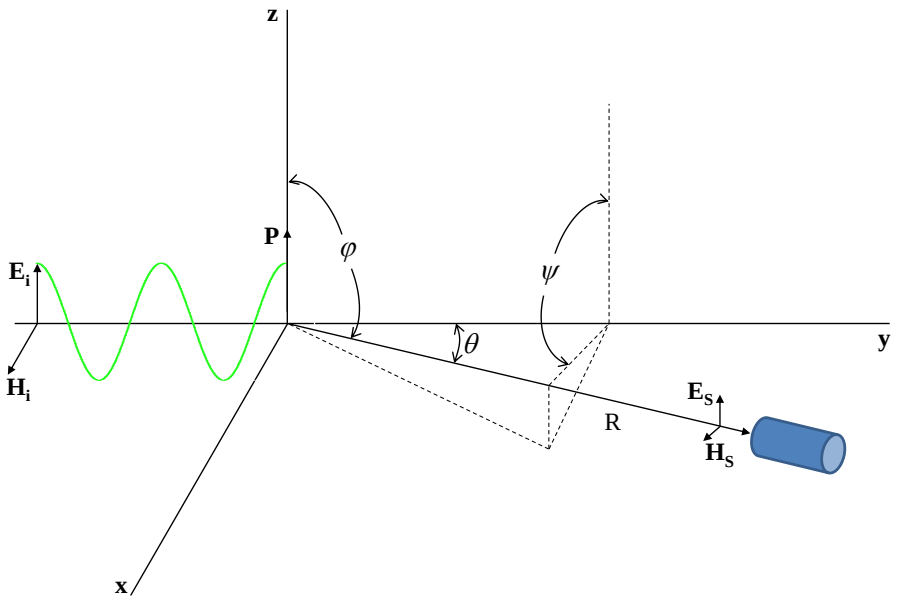


Fig. 2.9 – *Schéma représentant la géométrie de diffusion utilisée lors des calculs du champ diffusé.*

Expression du champ diffusé en diffusion simple

On se place dans le cas classique pour lequel le champ diffusé par les fluctuations $\delta\varepsilon$ est d'amplitude significativement plus faible que le champ incident. On considère également que l'onde incidente est plane et caractérisée par les vecteurs $\overrightarrow{E}_i$, $\overrightarrow{D}_i$ et $\overrightarrow{H}_i$. Pour sa part, le champ diffusé est caractérisé par $\overrightarrow{E}_S$, $\overrightarrow{D}_S$ et $\overrightarrow{H}_S$. Ainsi, on peut réécrire les champs en

tout point du milieu diffusant tels que : $\overrightarrow{E} = \overrightarrow{E}_i + \overrightarrow{E}_S$, $\overrightarrow{D} = \overrightarrow{D}_i + \overrightarrow{D}_S$ et $\overrightarrow{H} = \overrightarrow{H}_i + \overrightarrow{H}_S$. Comme $\left(\overrightarrow{E}, \overrightarrow{D}, \overrightarrow{H}\right)$ et $\left(\overrightarrow{E}_i, \overrightarrow{D}_i, \overrightarrow{H}_i\right)$ satisfont aux équations de Maxwell, il en est de même pour $\left(\overrightarrow{E}_S, \overrightarrow{D}_S, \overrightarrow{H}_S\right)$ de sorte que :

$$\overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{E}_S = -\frac{\partial \overrightarrow{B}_S}{\partial t} = -\mu_0 \frac{\partial \overrightarrow{H}_S}{\partial t}, \tag{2.49}$$

$$\overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{H}_S = \frac{\partial \overrightarrow{D}_S}{\partial t}, \tag{2.50}$$

$$\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{H}_S = 0, \tag{2.51}$$

$$\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{D}_S = 0, \tag{2.52}$$

avec de manière générique $\overrightarrow{D} = \varepsilon \overrightarrow{E}$ et $\overrightarrow{B} = \mu_0 \overrightarrow{H}$, le milieu étant non–magnétique. $\overrightarrow{H}_S$ peut être éliminé en prenant le rotationnel de la relation 2.49 et en substituant dans l'équation 2.50, tel que :

$$\overrightarrow{\nabla} \times \left(\overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{E}_S\right) = -\mu_0 \frac{\partial^2 \overrightarrow{D}_S}{\partial t^2}. \tag{2.53}$$

Par ailleurs, $\overrightarrow{E}$ et $\overrightarrow{D}$ sont reliés par :

$$\overrightarrow{D} = (\varepsilon_l + \delta\varepsilon)\left(\overrightarrow{E}_i + \overrightarrow{E}_S\right). \tag{2.54}$$

Sachant que $\overrightarrow{D}_i = \varepsilon_l \overrightarrow{E}_i$, on obtient :

$$\overrightarrow{D}_S = \varepsilon_l \overrightarrow{E}_S + \delta\varepsilon \overrightarrow{E}_i, \tag{2.55}$$

en négligeant le terme du deuxième ordre $\delta\varepsilon \overrightarrow{E}_S$ (hypothèse faite que : $\left|\overrightarrow{E}_S\right| << \left|\overrightarrow{E}_i\right|$).

L'équation 2.53 devient, sachant que $\overrightarrow{\nabla} \times \left(\overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{A}\right) = -\overrightarrow{\nabla}^2 \overrightarrow{A} + \overrightarrow{\nabla}\left(\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{A}\right)$:

$$\overrightarrow{\nabla}^2 \overrightarrow{D}_S - \varepsilon_l \mu_0 \frac{\partial^2 \overrightarrow{D}_S}{\partial t^2} = -\overrightarrow{\nabla} \times \left(\overrightarrow{\nabla} \times \left(\delta\varepsilon \overrightarrow{E}_i\right)\right), \tag{2.56}$$

où $\varepsilon_l \mu_0 = \varepsilon_r / c^2$.

Si l'on considère le vecteur de Hertz, noté $\overrightarrow{\Upsilon}$ et défini par $\overrightarrow{D}_S = \overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{\Upsilon}$, l'équation 2.56 peut se réduire à :

$$\overrightarrow{\nabla}^2 \overrightarrow{\Upsilon} - \varepsilon_l \mu_0 \frac{\partial^2 \overrightarrow{\Upsilon}}{\partial t^2} = -\delta\varepsilon \overrightarrow{E}_i, \tag{2.57}$$

dont la solution formelle est :

$$\overrightarrow{\Upsilon}(R, t) = \frac{1}{4\pi} \int \mathrm{d}^3 r \frac{\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{r}, t'\right)}{\left|\overrightarrow{R} - \overrightarrow{r}\right|} \overrightarrow{E}_i\left(\overrightarrow{r}, t'\right), \tag{2.58}$$

où t' est le temps retardé défini tel que : $t' = t - \frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{c}\left|\overrightarrow{R} - \overrightarrow{r}\right|$.

Si maintenant on substitue dans l'équation 2.58 l'expression du champ de l'onde plane incidente $\overrightarrow{E}_i(\overrightarrow{r},t)$, on en déduit l'expression du champ diffusé :

$$\overrightarrow{E}_S(R,t) = \overrightarrow{\nabla} \times \overrightarrow{\nabla} \times \left[\frac{E_0 \overrightarrow{n}_i}{4\pi\varepsilon_l} \int_V \mathrm{d}^3 r \frac{\delta\varepsilon(\overrightarrow{r},t')}{\left|\overrightarrow{R}-\overrightarrow{r}\right|} \exp\left[i\left(\overrightarrow{k}_i \cdot \overrightarrow{r} - \omega_i t'\right)\right] \right]. \tag{2.59}$$

Le détecteur étant placé à grande distance du volume diffusant, on peut considérer l'approximation de Born : $\left|\overrightarrow{R}-\overrightarrow{r}\right| \approx R - \overrightarrow{r}\cdot\hat{k}_f + \cdots$, où $\hat{k}_f$ est le vecteur unitaire dans la direction $\overrightarrow{R}$. Ainsi, le temps retardé peut s'écrire :

$$t' \approx t - \frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{c}\left(R - \overrightarrow{r}\cdot\hat{k}_f\right). \tag{2.60}$$

Enfin, en réalisant une décomposition de $\delta\varepsilon(\overrightarrow{r},t')$ en modes de Fourier sur un intervalle de temps T, on peut écrire :

$$\delta\varepsilon(\overrightarrow{r},t') = \sum_p \delta\varepsilon_p(\overrightarrow{r}) \exp(i\Omega_p t'), \tag{2.61}$$

où $\Omega_p = (2\pi/T)\,p$. La substitution des relations 2.60 et 2.61 dans l'expression du champ diffusé 2.59 et en définissant $\omega_f = \omega_i - \Omega_p$, $\overrightarrow{k}_p = \frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{c}\omega_f\hat{k}_f$ et $\overrightarrow{q}_p = \overrightarrow{k}_i - \overrightarrow{k}_p$, nous donne :

$$\begin{gathered}\overrightarrow{E}_S(R,t) = \frac{E_0}{4\pi\varepsilon_l R}\sum_p \exp\left[i\left(k_p R - \omega_i t\right)\right]\overrightarrow{k}_p \times \\ \left[\overrightarrow{k}_p \times \overrightarrow{n}_i \int_V \mathrm{d}^3 r \exp\left[i\left(\overrightarrow{k}_i - k_p\hat{k}_f\right)\cdot\overrightarrow{r}\right]\delta\varepsilon_p(\overrightarrow{r})\left(\exp(i\Omega_p t)\right)\right],\end{gathered} \tag{2.62}$$

où les termes d'ordre supérieur à $1/R$ sont négligés.

Comme les fréquences qui contribuent à $\delta\varepsilon(\overrightarrow{r},t')$ sont celles correspondant aux vibrations et rotations moléculaires du système (*i.e.* typiquement inférieures à 10^{13} s^{-1}), elles sont donc très inférieures à la fréquence de l'onde incidence ω_i de telle sorte que : $k_p \approx \frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{c}\omega_i = k_i \approx k_f$ ($k_p\hat{k}_f \approx k_i\hat{k}_f$). Ainsi, à cet ordre d'approximation, seuls $\delta\varepsilon_p(\overrightarrow{r})$ et Ω_p dépendent de l'indice p.

Le champ diffusé s'écrit finalement :

$$\overrightarrow{E}_S(R,t) = \frac{E_0}{4\pi\varepsilon_l R}\exp\left[i\left(k_f R - \omega_i t\right)\right]\overrightarrow{k}_f \times \left[\overrightarrow{k}_f \times \overrightarrow{n}_i \int_V \mathrm{d}^3 r \exp\left[i\left(\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{r}\right)\right]\delta\varepsilon(\overrightarrow{r},t)\right]. \tag{2.63}$$

Enfin, à cet ordre d'approximation, nous pouvons remarquer que le champ diffusé ne dépend plus du temps retardé mais simplement du temps réel.

Expression de l'intensité diffusée

L'expression du champ diffusé donnée équation 2.63 peut être simplifiée sachant que : $\overrightarrow{k}_f \times \overrightarrow{k}_f \times \overrightarrow{n}_i = \left(\overrightarrow{k}_f \cdot \overrightarrow{n}_i\right)\overrightarrow{k}_f - \left(\overrightarrow{k}_f \cdot \overrightarrow{k}_f\right)\overrightarrow{n}_i = k_i^2\left(\cos\varphi\hat{k}_f - \overrightarrow{n}_i\right)$, où φ correspond à l'angle entre la polarisation de l'onde incidente $\overrightarrow{n}_i$ et le vecteur d'onde diffusé $\hat{k}_f$.

De plus, si on défini la transformée de Fourier des fluctuations de la constante diélectrique telle que : $\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},t\right)=\int\limits_V \mathrm{d}^3r\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{r},t\right)\exp\left[i\left(\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{r}\right)\right]$, alors le champ diffusé peut se réécrire :

$$\overrightarrow{E}_S\left(R,t\right)=\frac{k_f^2E_0}{4\pi\varepsilon_lR}\exp\left[i\left(k_fR-\omega_it\right)\right]\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},t\right)\left(\cos\varphi\hat{k}_f-\overrightarrow{n}_i\right). \tag{2.64}$$

L'intensité diffusée est reliée à la fonction d'auto–corrélation du champ diffusé $\overrightarrow{E}_S$:

$$\left\langle\overrightarrow{E}_S^*\left(R,0\right)\cdot\overrightarrow{E}_S\left(R,t\right)\right\rangle=\frac{k_f^4\left|E_0\right|^2}{16\pi^2\varepsilon_l^2R^2}\left\langle\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},0\right)\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},t\right)\right\rangle\exp\left(-i\omega_it\right)\left|\cos\varphi\hat{k}_f-\overrightarrow{n}_i\right|^2, \tag{2.65}$$

avec $\langle A\rangle=\lim\limits_{T\to\infty}\frac{1}{T}\int_0^T A(t)\mathrm{d}t$.

De plus $\left|\cos\varphi\hat{k}_f-\overrightarrow{n}_i\right|^2=\cos^2\varphi+1-2\cos\varphi\hat{k}_f\cdot\overrightarrow{n}_i=1-\cos^2\varphi=\sin^2\varphi$.

Ainsi, la densité spectrale de la lumière diffusée mesurée par un détecteur est donnée par :

$$I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)\equiv\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty}\mathrm{d}t\exp\left(-i\omega_ft\right)\left\langle\overrightarrow{E}_S^*\left(R,0\right)\cdot\overrightarrow{E}_S\left(R,t\right)\right\rangle, \tag{2.66}$$

ou encore :

$$I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)=\left[\frac{I_0k_f^4\sin^2\varphi}{16\pi^2\varepsilon_l^2R^2}\right]\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty}\mathrm{d}t\left\langle\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},0\right)\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},t\right)\right\rangle\exp\left[-i\left(\omega_f-\omega_i\right)t\right], \tag{2.67}$$

où I_0 est l'intensité de l'onde incidente. Il apparaît donc que la densité spectrale de la lumière diffusée, mesurée par un détecteur, est directement proportionnelle à la densité spectrale des fluctuations de la constante diélectrique montrant l'importance de celles–ci :

$$I^S\left(\overrightarrow{q},\omega\right)=\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty}\mathrm{d}t\left\langle\delta\varepsilon^*\left(\overrightarrow{q},0\right)\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},t\right)\right\rangle\exp\left(-i\omega t\right). \tag{2.68}$$

L'intégration sur toutes les fréquences nous permet d'en déduire l'expression de l'intensité totale diffusée (sachant que $\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty}\exp\left(-i\omega t\right)\mathrm{d}\omega=\delta(t)$) :

$$I^S\left(\overrightarrow{q}\right)=\int_{-\infty}^{+\infty}I^S\left(\overrightarrow{q},\omega\right)\mathrm{d}\omega=\int_{-\infty}^{+\infty}\mathrm{d}t\delta(t)\left\langle\delta\varepsilon^*\left(\overrightarrow{q},0\right)\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q},t\right)\right\rangle=\left\langle\left|\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle. \tag{2.69}$$

Ainsi, l'intensité totale diffusée devient :

$$I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)=\left[\frac{I_0k_f^4\sin^2\varphi}{16\pi^2\varepsilon_l^2R^2}\right]\left\langle\left|\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle. \tag{2.70}$$

Nous allons par la suite évaluer $\left\langle\left|\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle$ représentant les propriétés du milieu diffusant. Si l'on suppose que la constante diélectrique ne dépend que de la densité, on peut écrire $\delta\varepsilon\approx\frac{\partial\varepsilon_l}{\partial\rho}\delta\rho$ et donc :

$$\left\langle\left|\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle=\left|\frac{\partial\varepsilon_l}{\partial\rho}\right|^2\left\langle\left|\delta\rho\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle, \tag{2.71}$$

où on peut définir le facteur de structure tel que : $S\left(\overrightarrow{q}\right)\equiv\left\langle\left|\delta\rho\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle$.

Utilisation de l'approximation de Ornstein–Zernike

Dans la présente partie, nous allons procéder au calcul de $\left\langle \left|\delta\varepsilon\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle$ tout en gardant en mémoire le fait que nous portons un intérêt particulier à la diffusion près d'un point critique (faisant apparaître le phénomène d'opalescence critique). Les différents calculs présentés sont toujours basés sur les travaux de B. J. Berne et R. Pecora [70].

La densité, qui représente ici le nombre de diffuseurs dans un volume voisin du point $\overrightarrow{r}$ au temps t, est définie comme :

$$\rho\left(\overrightarrow{r},t\right)=\sum_{i=1}^{N}\delta\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}_i(t)\right). \tag{2.72}$$

On en déduit son expression dans l'espace de Fourier :

$$\rho\left(\overrightarrow{q},t\right)=\sum_{i=1}^{N}\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{r}(t)\right). \tag{2.73}$$

Près d'un point critique, la corrélation des fluctuations de densité entre deux points distants de $|\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'|$ est décrite par la fonction de corrélation, notée $G\left(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}'\right)$ et définie par :

$$G\left(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}'\right)\equiv\left\langle\delta\rho\left(\overrightarrow{r}\right)\delta\rho\left(\overrightarrow{r}'\right)\right\rangle. \tag{2.74}$$

Lorsque la distance entre les deux points tend vers l'infini, les fluctuations de densité sont décorrélées et la fonction $G\left(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}'\right)$ tend à s'annuler.

De plus, lorsque le milieu considéré est uniforme, $G\left(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}'\right)$ doit être invariante par translation de telle sorte que : $G\left(\overrightarrow{r}+a,\overrightarrow{r}'+a\right)=G\left(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}'\right)=G\left(\overrightarrow{R}\right)$, avec $\overrightarrow{R}=\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'$.

Comme le facteur de structure s'exprime :

$$S\left(\overrightarrow{q}\right)\equiv\left\langle\left|\delta\rho\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2\right\rangle=\left\langle\sum_{i,j=1}^{N}\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\left(\overrightarrow{r}_i-\overrightarrow{r}_j\right)\right)\right\rangle, \tag{2.75}$$

et que $\delta\rho\left(\overrightarrow{q}\right)=\int\limits_V \mathrm{d}^3r\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{r}\right)\delta\rho\left(\overrightarrow{r}\right)$, on en déduit que le facteur de structure s'exprime de la façon suivante :

$$\begin{aligned}S\left(\overrightarrow{q}\right) &= \int\limits_V \mathrm{d}^3r'\int\limits_V \mathrm{d}^3r\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'\right)\right)\left\langle\delta\rho\left(\overrightarrow{r}\right)\delta\rho\left(\overrightarrow{r}'\right)\right\rangle\\ &= V\int\limits_V \mathrm{d}^3R\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}\right)G\left(\overrightarrow{R}\right).\end{aligned} \tag{2.76}$$

En l'absence de corrélation, les termes croisés (i,j) disparaissent dans l'expression **??** et on trouve :

$$\begin{aligned}S^0\left(\overrightarrow{q}\right) &= \left\langle\sum_{i=1}^{N}\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{0}\right)\right\rangle+\left\langle\sum_{i\neq j=1}^{N}\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\left(\overrightarrow{r}_i-\overrightarrow{r}_j\right)\right)\right\rangle\\ &= \langle N\rangle+2\left\langle\sum_{i<j=1}^{N}\cos\left[i\overrightarrow{q}\cdot\left(\overrightarrow{r}_i-\overrightarrow{r}_j\right)\right]\right\rangle\\ &= \langle N\rangle,\end{aligned} \tag{2.77}$$

où $\langle N \rangle$ est le nombre de diffuseurs dans le volume diffusant V. Ceci permet d'écrire l'expression :

$$\frac{S\left(\overrightarrow{q}\right)}{S^0\left(\overrightarrow{q}\right)} = \frac{1}{\rho}\int\limits_V \mathrm{d}^3R \exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}\right) G\left(\overrightarrow{R}\right), \tag{2.78}$$

qui est directement reliée à l'expression de l'intensité diffusée.

Cas des fluides « normaux »

Lorsqu'on utilise des fluides qualifiés de « normaux », la fonction de corrélation $G\left(\overrightarrow{R}\right)$ présente un rayon d'action de quelques tailles moléculaires (*i.e.* quelques dizaines d'Angströms), ce qui est infiniment petit devant la longueur d'onde optique. Dès lors, le facteur de phase $\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}\right)$ est une fonction lentement variable devant $G\left(\overrightarrow{R}\right)$ de sorte qu'il peut être remplacé par 1 et $\frac{S\left(\overrightarrow{q}\right)}{S^0\left(\overrightarrow{q}\right)} \approx \frac{1}{\rho}\int\limits_V \mathrm{d}^3R G\left(\overrightarrow{R}\right)$. Ce rapport devient indépendant de $\overrightarrow{q}$ et donc de l'angle de diffusion. Dans ce cas, sachant que d'une part :

$$\begin{aligned}\left\langle \delta N^2 \right\rangle &= \int\limits_V \mathrm{d}^3r' \int\limits_V \mathrm{d}^3r \left\langle \delta\rho\left(\overrightarrow{r}\right)\delta\rho\left(\overrightarrow{r}'\right)\right\rangle \\ &= V\int\limits_V \mathrm{d}^3R G\left(\overrightarrow{R}\right),\end{aligned} \tag{2.79}$$

et que d'autre part, un résultat classique de la physique statistique nous donne : $\langle \delta N^2 \rangle = \beta^{-1}V\rho^2\chi_T$. On peut ainsi en déduire que :

$$\frac{S\left(\overrightarrow{q}\right)}{S^0\left(\overrightarrow{q}\right)} \approx \beta^{-1}\rho\chi_T, \tag{2.80}$$

où $\beta = 1/k_BT$ et χ_T est la compressibilité isotherme définie par :

$$\chi_T = -\frac{1}{V}\left(\frac{\partial V}{\partial P}\right)_{T,N} = \frac{1}{\rho}\left(\frac{\partial \rho}{\partial P}\right)_{T,N} = \frac{1}{\rho^2}\left(\frac{\partial \rho}{\partial \mu_{\langle N\rangle}}\right)_{T,V}, \tag{2.81}$$

$\mu_{\langle N\rangle}$ est le potentiel chimique défini comme étant une énergie par diffuseur.

Si pour des fluides « normaux » la compressibilité isotherme χ_T est une fonction régulière, lorsqu'on s'approche d'un point critique, cette fonction devient divergente, l'intensité diffusée se met donc à croître de manière significative. Ceci est équivalent à considérer que le rayon d'action de la fonction de corrélation (*i.e.* la longueur de corrélation des fluctuations de densité) diverge également et permet d'atteindre des tailles caractéristiques de l'ordre de la longueur d'onde optique. Le milieu devient donc opalescent. De ce fait, nous ne pouvons plus négliger le terme de phase dans l'expression de $S\left(\overrightarrow{q}\right)/S^0\left(\overrightarrow{q}\right)$.

Cas des fluides quasi–critiques

Ornstein et Zernike ont été les premiers à proposer une approche pour les fluides critiques. Si on reprend l'expression de $S\left(\overrightarrow{q}\right)$, il apparaît que les termes $i = j$ ne sont pas

exclus de la sommation. Cela signifie que la fonction de corrélation $G\left(\overrightarrow{R}\right)$ contient des termes d'auto–corrélation entre différents diffuseurs. Sachant que :

$$\delta\rho\left(\overrightarrow{r},t\right)=\sum_{i=1}^{N}\delta\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}_i(t)\right)-\langle\rho\rangle\,, \tag{2.82}$$

représente les fluctuations de densité autour d'une valeur moyenne, on en déduit d'après l'équation 2.74 :

$$G\left(\overrightarrow{r},\overrightarrow{r}'\right)=\langle\rho\left(\overrightarrow{r}\right)\rho\left(\overrightarrow{r}'\right)\rangle-\rho^2, \tag{2.83}$$

avec $\langle\rho\rangle\equiv\rho$, ce qui nous permet d'écrire $G\left(\overrightarrow{R}\right)$ sous la forme :

$$G\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'\right)=\rho\delta\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'\right)+\rho^2\Gamma\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'\right). \tag{2.84}$$

On définit à présent la fonction de corrélation directe, notée $C\left(\overrightarrow{r}\right)$, par sa transformée de Fourier écrite sous la forme :

$$C\left(\overrightarrow{q}\right)\equiv\frac{\Gamma\left(\overrightarrow{q}\right)}{1+\rho\Gamma\left(\overrightarrow{q}\right)}, \tag{2.85}$$

où $\Gamma\left(\overrightarrow{q}\right)$ est la transformée de Fourier de la fonction spéciale $\Gamma\left(\overrightarrow{r}-\overrightarrow{r}'\right)$.

On en déduit que :

$$\frac{S\left(\overrightarrow{q}\right)}{S^0\left(\overrightarrow{q}\right)}=\frac{1}{\rho}G\left(\overrightarrow{q}\right)=1+\rho\Gamma\left(\overrightarrow{q}\right)=\frac{1}{1-\rho C\left(\overrightarrow{q}\right)}, \tag{2.86}$$

de sorte que nous devons maintenant déterminer la fonction de corrélation directe $C\left(\overrightarrow{q}\right)$.

On peut montrer assez simplement que $C\left(\overrightarrow{q}\right)$ est une fonction peu dépendante de la température. En effet, quand $T\to\infty$, les interactions moléculaires deviennent peu importantes et $S\left(\overrightarrow{q}\right)/S^0\left(\overrightarrow{q}\right)\to 1$, ce qui conduit à $C\left(\overrightarrow{q}\right)\to 0$ d'une part. D'autre part, quand $T\to T_C$, $\lim\limits_{q\to 0}S\left(\overrightarrow{q}\right)/S^0\left(\overrightarrow{q}\right)\to\infty$ et $\lim\limits_{q\to 0}C\left(\overrightarrow{q}\right)\to\rho^{-1}$. Ainsi, la fonction de corrélation directe demeure tout le temps bornée quelque soit l'écart à la température critique.

Si $C\left(\overrightarrow{q}\right)$ varie peu lorsque $T\to T_C$, il est raisonnable de considérer que des intégrales de la forme $\int\limits_V \mathrm{d}^3R R^l C\left(\overrightarrow{R}\right)$ restent finies. C'est l'hypolthèse effectuée par Ornstein et Zernike nous permettant de développer $C\left(\overrightarrow{q}\right)$ en puissances de $\overrightarrow{q}$. Ceci est réalisé en développant le terme de phase $\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}\right)$ de $C\left(\overrightarrow{q}\right)$ au voisinage de $q=0$.

On a :

$$C\left(\overrightarrow{q}\right)=\int\limits_V \mathrm{d}^3R\exp\left(i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}\right)C\left(\overrightarrow{R}\right)\approx\int\limits_V \mathrm{d}^3R\left[1+i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}-\frac{1}{2}\left(\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}\right)^2\right]C\left(\overrightarrow{R}\right). \tag{2.87}$$

En passant en coordonnées polaires avec $\overrightarrow{q}$ suivant $\hat{z}$, l'intégration angulaire de $i\overrightarrow{q}\cdot\overrightarrow{R}=iqR\cos\theta$ est nulle de sorte qu'il ne subsiste que les termes d'ordre zéro et d'ordre 2. Ainsi, $C\left(\overrightarrow{q}\right)\approx C_0-C_2q^2$, avec :

$$C_0=\int_0^\infty \mathrm{d}^3RC\left(\overrightarrow{R}\right)=4\pi\int_0^\infty \mathrm{d}RR^2C\left(\overrightarrow{R}\right), \tag{2.88}$$

$$C_2 = \int_0^\infty \mathrm{d}R \int_0^\pi \mathrm{d}\theta \int_0^{2\pi} \mathrm{d}\varphi R^2 \sin\theta \left[\frac{1}{2}R^2\cos^2\theta\right] C\left(\overrightarrow{R}\right) = \frac{2\pi}{3}\int_0^\infty \mathrm{d}R R^4 C\left(\overrightarrow{R}\right). \quad (2.89)$$

On en déduit :

$$\frac{S^0(q)}{S(q)} \approx 1 - \rho C(q) = 1 - \rho C_0 + \rho C_2 q^2 = \rho C_2 \left(\frac{1-\rho C_0}{\rho C_2} + q^2\right) \equiv R_0^2\left[q_0^2 + q^2\right], \quad (2.90)$$

avec $R_0^2 = \rho C_2$ et $q_0^2 = \frac{1-\rho C_0}{R_0^2}$.

Comme la fonction de corrélation directe $C(\overrightarrow{r})$ varie peu lorsque $T \to T_C$, il en est de même pour les intégrales C_0 et C_2 et *a fortiori* pour R_0 et q_0. On en déduit que $\lim_{q\to 0} S^0(q)/S(q) = R_0^2 q_0^2 = \beta(\rho\chi_T)^{-1}$. Il s'en suit que :

$$\frac{S(q)}{S^0(q)} = \beta^{-1}\rho\chi_T\left[\frac{1}{1+(q/q_0)^2}\right]. \quad (2.91)$$

Le résultat présenté équation 2.91 est celui de Ornstein–Zernike se basant sur trois hypothèses : (i) la fonction de corrélation directe $C(\overrightarrow{r})$ varie peu ; (ii) $C(\overrightarrow{q})$ peut être développée en puissances de $\overrightarrow{q}$; (iii) pour des petites valeurs de $\overrightarrow{q}$, les termes d'ordres supérieurs à 2 peuvent être négligés. Les hypothèses (ii) et (iii) stipulent donc que le calcul est réalisé pour des petits $\overrightarrow{q}$ et donc pour des grands $\overrightarrow{R}$. L'inversion de Fourier de l'expression précédente conduit pour des $\overrightarrow{R}$ grands à :

$$G\left(\overrightarrow{R}\right) \propto \frac{1}{R_0^2}\frac{\exp(-q_0 R)}{R}. \quad (2.92)$$

Dans ce cas, la quantité q_0^{-1} peut être interprétée comme étant la longueur caractéristique du système. Or la fonction $G\left(\overrightarrow{R}\right)$ étant la fonction de corrélation, il apparaît ainsi évident que cette longueur caractéristique n'est rien d'autre que la longueur de corrélation des fluctuations de densité que l'on défini :

$$\xi = q_0^{-1}. \quad (2.93)$$

Remarque 1 : Lorsque $T \to T_C$, $\lim_{q\to 0} C(\overrightarrow{q}) \to \rho^{-1}$ et sachant que $C(\overrightarrow{q}) \approx C_0 - C_2 q^2$, on en déduit que $C_0 = (1 - q_0^2 R_0^2)/\rho \to \rho^{-1}$ et donc $q_0 \to 0$, ce qui signifie que la longueur de corrélation diverge. De ce fait, $G\left(\overrightarrow{R}\right) \propto 1/R$ impliquant que la fonction de corrélation devient d'extension infinie.

Remarque 2 : Lorsque $T \to T_C$, on a donc $q_0 \to 0$ et $\chi_T \to \infty$ de telle sorte que le comportement lorentzien du facteur de structure $S(q)/S^0(q) = \beta^{-1}\rho\chi_T\left[1/\left(1+(q/q_0)^2\right)\right]$ devient de plus en plus « piqué » au voisinage de $q = 0$ signifiant que la lumière incidente est de plus en plus diffusée vers l'avant (*i.e.* à petit angle θ), alors que dans le cas des fluides « normaux », la diffusion est isotrope, car indépendante de q.

Remarque 3 : Néanmoins, certains éléments tendent à prouver que l'approche de Ornstein–Zernike n'est pas totalement satisfaisante dans son domaine d'application. En effet, selon l'expression $\lim_{q\to 0} S^0(q)/S(q) = R_0^2 q_0^2 = \beta(\rho\chi_T)^{-1}$, on en déduit que proche du point critique (sachant que R_0 demeure fini) : $\chi_T \sim q_0^{-2} \equiv \xi^2$. Ceci implique, au niveau des exposants critiques, $\gamma = 2\nu$, relation qui n'est pas totalement vérifiée très proche de T_C [72].

Expression de l'intensité diffusée dans l'approximation de Ornstein–Zernike

Nous avons obtenu l'intensité totale diffusée en I donnée par la relation 2.70 avec $\delta\varepsilon \approx \frac{\partial \varepsilon_l}{\partial \rho}\delta\rho$ et la relation 2.71.

Parallèlement, nous avons défini le facteur de structure tel que : $S\left(\overrightarrow{q}\right) \equiv \left\langle \left|\delta\rho\left(\overrightarrow{q}\right)\right|^2 \right\rangle$ et calculé $S\left(q\right)/S^0\left(q\right) = \beta^{-1}\rho\chi_T\left[1/\left(1+\left(q/q_0\right)^2\right)\right]$ avec $S^0\left(q\right) = \langle N\rangle$.

On en déduit que :

$$I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right) = \left[\frac{I_0 k_f^4 \sin^2\varphi}{16\pi^2\varepsilon_l^2 R^2}\right]\left|\frac{\partial\varepsilon_l}{\partial\rho}\right|^2 \beta^{-1}\rho\chi_T\left\langle N\right\rangle\left[\frac{1}{1+\left(q/q_0\right)^2}\right], \tag{2.94}$$

et donc sachant que $\rho = \langle N\rangle/V$ et que $\varepsilon_l = \varepsilon_0\varepsilon_r$, on a :

$$\begin{aligned}\frac{I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)}{I_0} &= \left[\frac{k_f^4\sin^2\varphi}{16\pi^2\varepsilon_l^2}\right]\left(\rho\frac{\partial\varepsilon_l}{\partial\rho}\right)^2 k_B T\chi_T\left[\frac{1}{1+\left(q/q_0\right)^2}\right]\frac{V}{R^2} \\ &= \left(\frac{\pi^2}{\lambda_0^4}\right)\left(\rho\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\rho}\right)^2 k_B T\chi_T\left[\frac{1}{1+\left(q/q_0\right)^2}\right]\frac{V}{R^2}\sin^2\varphi,\end{aligned} \tag{2.95}$$

où V est le volume de milieu diffusant et R la distance entre le milieu diffusant et le détecteur. L'expression 2.95 est obtenue en utilisant notamment le fait que $k_f = 2\pi\sqrt{\varepsilon_r}/\lambda_0 = 2\pi n/\lambda_0$.

Cette expression de l'intensité diffusée est identique à celle calculée par Puglielli et Ford [69] pour des corps purs au voisinage du point critique liquide – gaz. La seule différence consiste au fait que nous avons gardé apparent le terme V/R^2 pour que la quantité $I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)/I_0$ reste sans dimension.

Remarque 1 : Dans l'expression 2.95, $\rho = \langle N\rangle/V$ n'est pas une véritable masse volumique mais un nombre de diffuseurs par unité de volume. Ainsi, si l'on multiplie le facteur $\rho\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\rho}$ au numérateur et au dénominateur par la masse moléculaire des diffuseurs, nous obtenons bien une densité, de sorte que pour les corps purs on peut assimiler ρ à la densité dans l'expression 2.95. Pour les mélanges binaires, si l'on procède à la multiplcation au numérateur et au dénominateur du facteur $\rho\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\rho}$ par le volume des diffuseur v_i, alors $\rho v_i = \langle N\rangle v_i/V = \Phi$ où Φ est la fraction volumique des diffuseurs. Dans ce cas, on peut écrire : $\rho\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\rho} = \Phi\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\Phi}$.

Remarque 2 : La compressibilité isotherme d'un corps pur est défini par la relation 2.81. Dans un mélange binaire, la pression correspond à la pression osmotique, notée Π, exercée par le soluté sur le solvant. Afin de différencier les dénominations, la compressibilité osmotique est défini comme :

$$\kappa_T = -\frac{1}{V}\left(\frac{\partial V}{\partial\Pi}\right)_{T,N}. \tag{2.96}$$

Or $\Phi = \langle N\rangle v_i/V$ et donc $\kappa_T = -\Phi\frac{\partial}{\partial\Pi}\left(\frac{1}{\Phi}\right)_{T,N} = \frac{1}{\Phi}\left(\frac{\partial\Phi}{\partial\Pi}\right)_{T,N}$, qui est isomorphe à la deuxième égalité de la relation 2.81.

Si l'on considère à présent l'énergie libre d'un mélange binaire : $F = F(V, T, \langle N \rangle) = V f(T, \Phi)$. Par définition, on a :

$$\Pi = -\frac{\partial F}{\partial V} = -f - V\frac{\partial f}{\partial \Phi}\frac{\partial \Phi}{\partial V} = -f + \Phi\frac{\partial f}{\partial \Phi}, \tag{2.97}$$

et le potentiel chimique s'exprime comme :

$$\mu_{\langle N \rangle} = \frac{\partial F}{\partial \langle N \rangle} = V\frac{\partial f}{\partial \Phi}\frac{\partial \Phi}{\partial \langle N \rangle} = v_i\frac{\partial f}{\partial \Phi}. \tag{2.98}$$

On en déduit :

$$\Pi = -f + \Phi\frac{\mu_{\langle N \rangle}}{v_i} = -f + \Phi\mu, \tag{2.99}$$

où $\mu = \mu_{\langle N \rangle}/v_i$. Ainsi, $\frac{\partial \Phi}{\partial \Pi} = -\frac{\partial f}{\partial \Phi} + \frac{\mu_{\langle N \rangle}}{v_i} + \frac{\Phi}{v_i}\frac{\partial \mu_{\langle N \rangle}}{\partial \Phi} = \Phi\frac{\partial \mu}{\partial \Phi}$ et donc, on obtient :

$$\kappa_T = -\frac{1}{\Phi}\left(\frac{\partial \Phi}{\partial \Pi}\right)_{T,N} = \frac{1}{\Phi}\left(\frac{1}{\Phi}\frac{\partial \Phi}{\partial \mu}\right)_{T,N} = \frac{1}{\Phi^2}\left(\frac{\partial \Phi}{\partial \mu}\right)_{T,N}, \tag{2.100}$$

qui est également isomorphe à la troisième égalité de la relation 2.81 si l'on prend le soin de remplacer $\mu_{\langle N \rangle}$ par $\mu = \mu_{\langle N \rangle}/v_i$.

Finalement, l'expression de l'intensité diffusée pour un mélange binaire s'obtient simplement en prenant celle d'un corps pur et en remplaçant ρ par Φ, χ_T par κ_T et en gardant en mémoire que $\mu_{\langle N \rangle}$ est substitué par μ.

Nous obtenons donc l'expression de l'intensité diffusée dans l'approximation de Ornstein–Zernike :

$$\frac{I(\overrightarrow{q}, \omega_f, R)}{I_0} = \left(\frac{\pi^2}{\lambda_0^4}\right)\left(\Phi\frac{\partial \varepsilon_r}{\partial \Phi}\right)^2 k_B T \kappa_T \left[\frac{1}{1 + (q/q_0)^2}\right]\frac{V}{R^2}\sin^2\varphi, \tag{2.101}$$

étant le pendant de l'expression de Puglielli et Ford [69] pour les mélanges binaires près d'un point critique de démixtion liquide – liquide.

Calcul de la force diffusive d'après les travaux de thèse de R. D. Schroll

La fraction d'intensité diffusée dans un mélange binaire s'exprime donc suivant l'équation 2.101 avec $q = \left|\overrightarrow{k}_i - \overrightarrow{k}_f\right| = 2k_i\sin(\theta/2) = \left(4\pi\sqrt{\varepsilon_r}/\lambda_0\right)\sin(\theta/2)$ et $(q/q_0)^2 = (q\xi)^2 = \alpha(1 - \cos\theta)$, où $\alpha = 2\left(2\pi\sqrt{\varepsilon_r}\xi/\lambda_0\right)^2$.

θ est l'angle de diffusion et φ est l'angle entre la polarisation de l'onde incidente et la direction du vecteur d'onde diffusé. Ces deux angles permettent de définir la direction du vecteur d'onde diffusé, noté $\overrightarrow{k}_f$. Lors de ses travaux de thèse, R. D. Schroll mentionne que l'utilisation de l'angle φ est assez complexe et lui préfère l'utilisation de l'angle ψ représentant l'angle entre la polarisation de l'onde incidente et le plan de diffusion (*cf.* figure 2.9). La relation entre ces angles est :

$$\cos\varphi = \cos\psi\sin\theta. \tag{2.102}$$

On en déduit ainsi que :

$$\frac{I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)}{I_0} = A\kappa_T\left[\frac{1-\cos^2\psi\sin^2\theta}{1+\alpha\left(1-\cos\theta\right)}\right]\left(\frac{V}{R^2}\right), \tag{2.103}$$

avec $A = \left(\frac{\pi^2}{\lambda_0^4}\right)\left(\Phi\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\Phi}\right)^2 k_B T$.

Lorsqu'un photon incident portant une quantité de mouvement $\hbar k_i$ est diffusé élastiquement par un diffuseur du milieu avec un angle θ, sa quantité de mouvement dans la direction $\hat{k}_i$ décroît d'une quantité $\hbar k_i\left(1-\cos\theta\right)$. Cette perte de quantité de mouvement est transférée au milieu environnant donnant naissance à la force diffusive permettant de mettre en mouvement le fluide.

Ainsi, la valeur moyenne de la quantité de mouvement perdue par photon dans la direction $\hat{k}_i$ est donnée par l'intégration sur la surface d'une sphère de rayon R (correspondant à la distance élément diffusant – détecteur) de la fraction d'intensité perdue dans la direction $\hat{k}_i$ par le processus de diffusion élastique. Cette valeur moyenne sur la surface de rayon R, dont l'élément de surface est $R^2\mathrm{d}\psi\sin\theta\mathrm{d}\theta = R^2\mathrm{d}\Omega$, est donnée par :

$$\begin{aligned}
\Delta p_f &= \hbar k\int_0^{2\pi}\mathrm{d}\psi\int_{-1}^{+1}R^2\mathrm{d}\left(\cos\theta\right)\frac{I\left(\overrightarrow{q},\omega_f,R\right)}{I_0}\left(1-\cos\theta\right)\\
&= \hbar kAV\kappa_T\int_0^{2\pi}\mathrm{d}\psi\int_{-1}^{+1}\mathrm{d}\left(\cos\theta\right)\left[\frac{1-\cos^2\psi\sin^2\theta}{1+\alpha\left(1-\cos\theta\right)}\right]\left(1-\cos\theta\right)\\
&= \hbar kAV\kappa_T\pi\int_{-1}^{+1}\mathrm{d}\left(\cos\theta\right)\left[\frac{1+\cos^2\theta}{1+\alpha\left(1-\cos\theta\right)}\right]\left(1-\cos\theta\right).
\end{aligned} \tag{2.104}$$

En effectuant le changement de variable $u = 1+\alpha\left(1-\cos\theta\right)$, on obtient :

$$\Delta p_f = \hbar kAV\kappa_T\pi\int_1^{1+2\alpha}\frac{\mathrm{d}u}{u}\left(\frac{u^2-2u+1}{\alpha^2}-2\frac{u-1}{\alpha}+2\right)\frac{u-1}{\alpha}. \tag{2.105}$$

L'intégration de l'expression 2.105 donne :

$$\Delta p_f = \hbar kAV\kappa_T\pi g(\alpha), \tag{2.106}$$

avec $g(\alpha) = \frac{1}{\alpha^4}\left[\frac{8}{3}\alpha^3+2\alpha^2+2\alpha-\left(2\alpha^2+2\alpha+1\right)\ln\left(1+2\alpha\right)\right]$.

À partir de cette valeur moyenne de la quantité de mouvement perdue par photon sur la surface de rayon R (dont la dimension est une quantité de mouvement par unité de surface), nous pouvons en déduire la force diffusive par unité de volume exercée sur le fluide.

Soit N, le nombre de photons par unité de surface et de temps issus de l'onde laser incidente, la force diffusive par unité de volume a pour expression : $f^{scatt} = N\Delta p_f/V$. Sachant que l'intensité de l'onde incidente est défini par $I_0 = Nh\nu$, on en déduit finalement :

$$f^{scatt} = Nh\nu\frac{\sqrt{\varepsilon_r}}{c}A\kappa_T\pi g(\alpha). \tag{2.107}$$

Soit en remplaçant A par son expression : $A = \left(\frac{\pi^2}{\lambda_0^4}\right)\left(\Phi\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\Phi}\right)^2 k_B T$ et sachant que $I_0 = Nh\nu$, on obtient :

$$f^{scatt} \equiv \frac{nI_0}{c}\left(\frac{\pi^3}{\lambda_0^4}\right)\left(\Phi\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\Phi}\right)^2 k_B T\kappa_T g(\alpha). \tag{2.108}$$

En remplaçant la compressibilité osmotique κ_T par la susceptibilité du mélange χ_T ($\kappa_T = \frac{1}{\Phi^2}\chi_T$, en prenant garde qu'ici χ_T n'est pas la compressibilité isotherme).

La force diffusive par unité de volume appliquée sur un mélange liquide binaire diffusant s'exprime finalement par :

$$f^{scatt}(r) = \frac{nI_0(r)}{c}\left(\frac{\pi^3}{\lambda_0^4}\right)\left(\Phi\frac{\partial\varepsilon_r}{\partial\Phi}\right)^2 k_B T\kappa_T g(\alpha), \tag{2.109}$$

avec $I_0(r)$ l'intensité de l'onde gaussienne à la longueur d'onde dans le vide λ_0 et la fonction $g(\alpha) = \frac{1}{\alpha^4}\left[\frac{8}{3}\alpha^3 + 2\alpha^2 + 2\alpha - (2\alpha^2 + 2\alpha + 1)\ln(1 + 2\alpha)\right]$.

Cette expression est valable d'une part lorsque l'approximation de Ornstein–Zernike est vérifiée et d'autre part lorsque la diffusion élastique est simple.

2.2.3 Équations régissants l'écoulement au sein du fluide et conditions aux limites

Les écoulements observés sont considérés comme visqueux car caractérisés par un faible nombre de Reynolds : $Re_i = u_i L_i \rho_i/\eta_i \simeq 10^{-2}$, avec u_i la vitesse caractéristique de la suspension du milieu i, de l'ordre de $u_i \sim 10^{-4}$ m/s. L_i, ρ_i et η_i sont respectivement l'épaisseur, la masse volumique et la viscosité dynamique de la phase i. Les deux liquides de l'échantillon, considérés comme incompressibles, satisfont la loi de conservation de la masse et vérifient l'équation de Stokes ($Re << 1$) que l'on peut écrire respectivement (avec $i = 1, 2$) :

$$\overrightarrow{\nabla} \cdot \overrightarrow{u_i} = 0, \tag{2.110}$$

$$-\nabla p_i + \eta_i \Delta\overrightarrow{u_i} + \overrightarrow{f_i^{scatt}} = \overrightarrow{0}, \tag{2.111}$$

où $p_i = p_i' + \rho_i g z$ est un terme de pseudo–pression prenant en compte à la fois le champ de pression noté p_i' et la gravité.

La continuité de la vitesse à l'interface séparant les milieux 1 et 2 implique :

$$\overrightarrow{u_1} = \overrightarrow{u_2}. \tag{2.112}$$

On considèrera une condition de non–glissement aux parois telle que :

$$\overrightarrow{u_1} = \overrightarrow{0}; \quad \overrightarrow{u_2} = \overrightarrow{0}. \tag{2.113}$$

Et enfin, le mouvement de l'interface est décrit en utilisant une approche lagrangienne de la vitesse :

$$\frac{\mathrm{d}\overrightarrow{x}}{\mathrm{d}t} = \overrightarrow{u}(x). \tag{2.114}$$

2.3 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons pu évaluer les différentes contraintes pouvant être responsables de la déformation d'une interface liquide molle par une onde électromagnétique. Tout d'abord en absence d'écoulement, la pression de radiation électromagnétique de l'onde incidente engendre une contrainte au niveau de l'interface séparant deux milieux diélectriques de constante diélectrique différente. Il a été montré que la déformation de l'interface est indépendante du sens de propagation de l'onde incidente et que l'interface se déforme toujours depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu d'indice optique le plus faible.

Dans une seconde partie, nous avons mis en exergue, qu'en présence d'inhomogénéités spatiales et temporelles d'indice de réfraction dans le milieu considéré, le transfert de quantité de mouvement entre la lumière et la matière environnante conduit à une force diffusive en volume. Cette force diffusive permet la génération d'écoulements permanents au sein du fluide, le mettant en mouvement. Au voisinage d'une interface liquide molle, les contraintes visqueuses associées à la recirculation du fluide peuvent conduire à la déformation de l'interface dans le sens de propagation de l'onde électromagnétique incidente.

Les déformations d'interfaces observées au cours de ces travaux de thèse résultent donc d'une conjugaison de ces deux effets majeurs liés à l'interaction d'une onde électromagnétique avec les milieux diélectriques mis en coexistence. Le chapitre suivant sera entièrement consacré aux différentes techniques expérimentales utilisées au cours de cette thèse permettant d'étudier ces effets à l'aide de systèmes fluides particuliers (dont une revue détaillée est réalisée en annexe A).

Chapitre 3

Techniques Expérimentales

Lors des chapitres précédents, nous avons mis en évidence la possiblité de manipuler des fluides optiquement (manipulation de gouttes, déformations d'interfaces liquides...) et les différentes forces mises en jeu. Dans cette partie, nous allons détailler les différentes techniques expérimentales utilisées au cours de cette thèse. Nous présenterons tout d'abord le dispositif expérimental, ses fonctionnalités ainsi que sa modularité. Nous présenterons brièvement la modélisation numérique utilisée au cours de cette thèse afin de simuler les différents phénomènes physiques observés. Enfin, nous réaliserons un tour d'horizon des différents systèmes fluides que nous avons employé et leurs particularités.

3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté sur les figures 3.1 (a) et (b). La figure 3.1 (a) est une représentation schématique du montage exhibant le trajet optique de l'onde laser incidente et sa mise en forme par différents éléments optiques. La figure 3.1 (b) est une photographie de ce montage. Sur cette dernière sont visibles notamment le banc d'éclairage permettant d'illuminer l'échantillon ainsi que la chaîne d'acquisition des images de déformations d'interfaces liquides. L'échantillon est quant à lui enfermé dans une cellule de spectroscopie Hellma® elle-même placée dans un four qui permet de réguler, à l'aide d'une sonde platine Pt100 reliée à un régulateur P.I.D. (*Proportionnel, Intégral, Dérivé*), la température de l'échantillon.

3.1.1 Trajet optique de l'onde incidente

L'onde incidente utilisée est issue d'un faisceau laser Nd^{3+}–YAG (*Grenat d'Yttrium-Aluminium dopé au Néodyme*) doublé en fréquence permettant d'obtenir une longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm (dans le vert, VERDI-V5 produit par la société Coherent®) et présente un mode gaussien de type TEM_{00}. Le faisceau laser incident est polarisé linéairement.

Le faisceau rencontre tout d'abord une lame d'onde $\lambda/2$ qui permet, moyennant la rotation angulaire de celle-ci, de tourner la polarisation de l'onde incidente. L'onde est ensuite réfléchie sur le miroir diélectrique M_1 puis rencontre une lentille convergente de distance focale $f = 800$ mm qui, en combinaison avec la position du prisme P_1, permet de fixer la plage de variation du rayon au col du faisceau laser au niveau de l'échantillon.

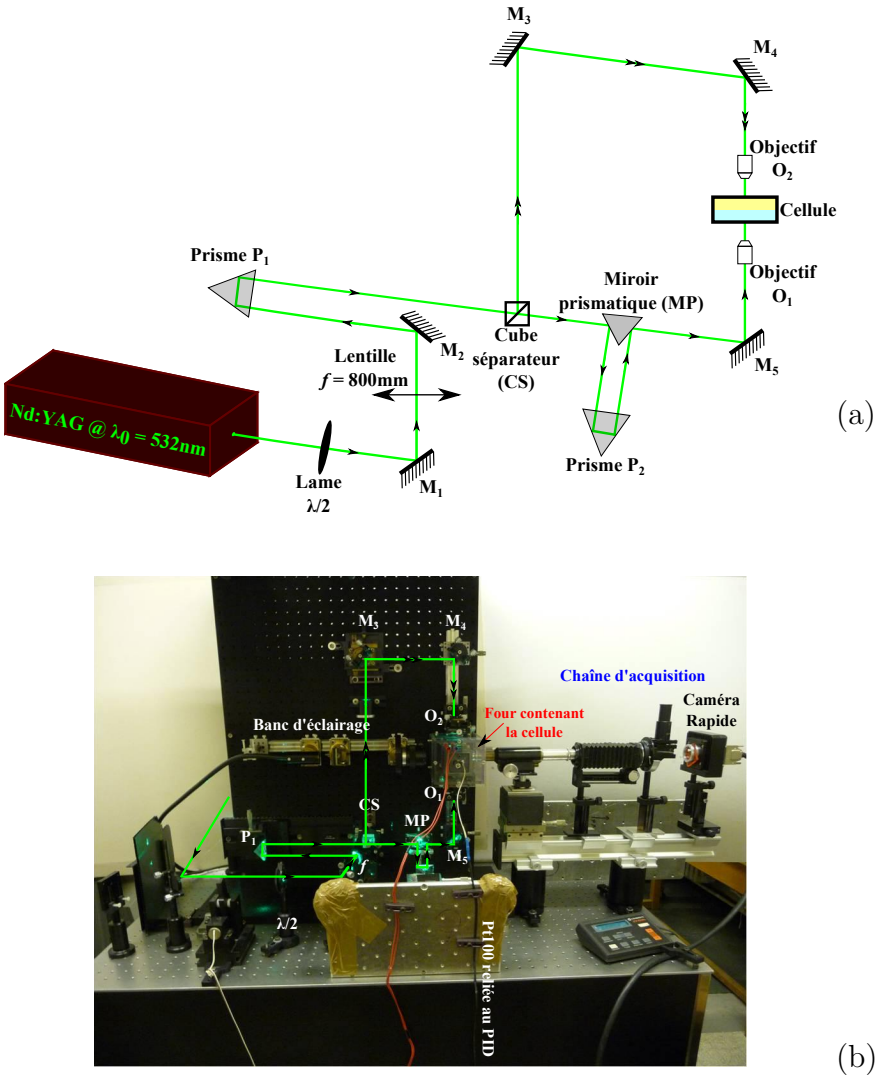


FIG. 3.1 – *(a) Représentation schématique du montage expérimental ainsi que le trajet optique de l'onde laser incidente. (b) Photographie du dispositif expérimental faisant apparaître à la fois le banc d'éclairage, le four contenant l'échantillon ainsi que la chaîne d'acquisition d'images. Le trajet optique du faisceau laser incident est représenté schématiquement.*

En sortie du prisme P_1, l'onde incidente arrive sur un cube séparateur (CS) qui a pour fonction d'orienter le faisceau dans la branche haute ou basse du dispositif expérimental. La polarisation initiale est linéaire verticale lorsque la lame $\lambda/2$ ne subit pas de rotation. Dans ce cas, le faisceau laser n'est pas dévié par le cube séparateur et parcourt la voie basse du dipositif expérimental. Le faisceau est donc transmis vers le miroir prismatique (MP) qui le réfléchit en direction du prisme P_2. Ce prisme a pour objet d'allonger le trajet optique de la partie basse du montage afin que les parties basse et haute du montage optique aient la même longueur de chemin optique. Ceci est d'un grand intérêt lorsque nous voudrons travailler à l'aide de deux faisceaux contra-propageants de même rayon au col du faisceau (comme nous le verrons par la suite). En effectuant une rotation de la lame $\lambda/2$ de 45°, la polarisation de l'onde incidente devient linéaire horizontale. Elle est donc déviée totalement par le cube séparateur (CS) et emprunte la voie haute du montage optique. Ensuite, le faisceau est réfléchit par les miroirs diélectriques M_3 et M_4.

Le faisceau arrivant par le bas (*resp.* haut) du montage est ensuite focalisé sur l'interface de l'échantillon à l'aide de l'objectif de microscope O_1 (*resp.* O_2). Les objectifs de focalisation O_1 et O_2 utilisés sont les mêmes, de grandissement X10 (ouverture numérique de $O.N. = 0.25$ et longue distance de travail $D.T. = 21$ mm) ou X20 ($O.N. = 0.35$, $D.T. = 21$ mm) de marque Olympus® montés sur des montures 5 axes pour assurer la perpendicularité du faisceau par rapport à l'interface. Le fait de travailler avec des objectifs identiques pour la voie basse et haute et d'avoir la même longueur de chemin optique pour les deux voies nous assurent une focalisation du faisceau incident identique sur l'interface quelque soit son origine.

3.1.2 Caractérisation du faisceau incident

Le faisceau laser arrivant perpendiculairement à l'interface de l'échantillon est caractérisé par une intensité $I(r, z)$. Le profil d'intensité de symétrie cylindrique s'écrit ainsi :

$$I(r, z) = \frac{2P}{\pi {\omega_0}^2} \exp\left(\frac{-2r^2}{\omega(z)^2}\right), \tag{3.1}$$

avec P et $\omega(z)$ respectivement la puissance et le rayon du faisceau laser incident.
Le rayon du faisceau laser est caractérisé à une position z donnée par la relation suivante :

$$\omega^2(z) = \omega_0^2 \left[1 + \left(\frac{\lambda_0 z}{\pi \omega_0^2}\right)^2\right], \tag{3.2}$$

où $\omega_0 = \omega(z = 0)$ est le rayon au col du faisceau laser.

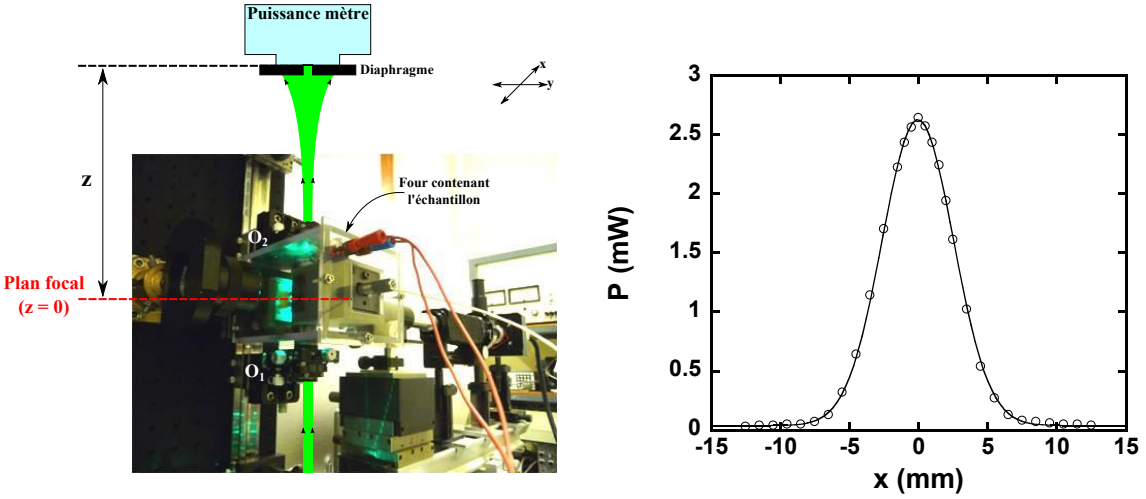
Cette relation peut se réécrire sous la forme d'un trinôme du second degré en ω_0^2 tel que :

$$\omega_0^4 - \omega^2(z)\omega_0^2 + \left(\frac{\lambda_0 z}{\pi}\right)^2 = 0, \tag{3.3}$$

dont la racine correspondant à un minimum de $\omega(z)$, c'est-à-dire au col, est

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{\omega^2(z)}{2} - \sqrt{\frac{\omega^4(z)}{4} - \left(\frac{\lambda_0 z}{\pi}\right)^2}}. \tag{3.4}$$

À l'aide d'un puissance mètre placé par exemple à une distance $z = 157.2$ mm du plan focal du faisceau laser, nous mesurons le profil d'intensité afin d'en extraire la valeur du rayon caractéristique $\omega(z)$. Le puissance mètre est fixé sur deux platines de translation permettant de parcourir les axes x et y sur l'axe du faisceau laser z (figure 3.2 (a)). Un balayage suivant l'axe y est réalisé afin de détecter le maximum d'intensité et ainsi dans le plan (x, z), nous pouvons mesurer le profil d'intensité suivant l'axe x (figure 3.2 (b)). Nous effectuons par la suite un ajustement de ce profil par une gaussienne de manière à trouver la valeur du rayon caractéristique $\omega(z)$. Enfin par la relation 3.4, nous pouvons déterminer la valeur du rayon au col du faisceau laser (*beam waist* en anglais) pour la position du prisme P_1 que nous avons fixé. Les rayons au col du faisceau laser varient de $\omega_0 = 2.99$ µm à $\omega_0 = 14.21$ µm pour un objectif de focalisation de grandissement X10



(a) (b)

FIG. 3.2 – *(a) Montage expérimental permettant la mesure du profil d'intensité du faisceau laser incident. (b) Profil d'intensité mesuré à l'aide d'un objectif de grandissement X10 à la position* $z = 157.2$ mm *par rapport au plan focal* ($z = 0$ mm)*, la postion* $x = 0$ *correspond à l'axe de propagation du faisceau laser.*

et de $\omega_0 = 1.41$ µm à $\omega_0 = 4.83$ µm pour l'objectif X20. Ainsi, un ordre de grandeur en cols de faisceau est accessible à la mesure. L'incertitude sur la mesure de ces rayons est de l'ordre de 5%.

Compte tenu du grand nombre d'éléments optiques de mise en forme du faisceau présents avant que celui-ci ne rencontre l'interface de l'échantillon, il est nécessaire de mesurer la perte d'intensité due à ces différents éléments. En effet, un étalonnage fut réalisé afin d'évaluer la transmission du faisceau incident au niveau de l'interface située au milieu de la cellule (contenant l'échantillon). Ce coefficient de transmission a été adapté, en utilisant un filtre sur la voie haute, de manière à ce qu'il soit identique quelque soit le chemin parcouru (voie basse ou haute). Ainsi, la puissance au niveau de l'interface est égale à :

$$P = 0.66 \times P_{Boitier}, \tag{3.5}$$

où $P_{Boitier}$ est la puissance que l'on fixe sur la boitier de commande du laser.
Lorsque nous travaillerons à l'aide de deux faisceaux contra-propageants, cet étalonnage se voit modifié par une dépendance angulaire induite par la lame $\lambda/2$. Dans ce cas, nous obtenons les relations suivantes :

$$P_{Bas} = 0.66 \times P_{Boitier} \times \cos^2(1.98(\theta_{\lambda/2} - 1)), \tag{3.6}$$

$$P_{Haut} = 0.66 \times P_{Boitier} \times \cos^2(1.99(\theta_{\lambda/2} - 46)), \tag{3.7}$$

où P_{Bas} (*resp.* P_{Haut}) représente la puissance laser transmise au niveau de l'interface de l'échantillon pour le faisceau laser se propageant sur la voie basse (*resp.* haute) du dispositif expérimental. La puissance maximale disponible est de $P = 3.3$ W avec une précision de $6.6.10^{-3}$ W (inhérente au boitier de commande du laser puisque nous n'utilisons pas d'autre système de variation de puissance tel que, par exemple, un autre couple {lame d'onde $\lambda/2$, prisme de Glan-Taylor}).

3.1.3 Contrôle thermique de l'échantillon

Tous les échantillons utilisés au cours de cette thèse nécessitent un contrôle précis en température notamment pour les échantillons critiques pour lesquels cela est indispensable à l'obtention d'un système diphasique, comme nous le verrons par la suite (pour plus de détails voir annexe A.2).

L'échantillon est enfermé dans une cellule de spectroscopie Hellma®, et placé dans le four du dipositif expérimental. Ce four permet la thermalisation de l'échantillon. Il est constitué d'un bloc de laiton dans lequel quatre résistances chauffantes sont disposées de manière à produire une température homogène à tout l'échantillon. Les quatres résistances sont asservies par un contrôleur P.I.D. (*Proportionnel, Intégral, Dérivé*). Ce contrôleur est relié à une sonde platine Pt100 qui permet d'évaluer la température au milieu du four (au niveau de l'échantillon) et ainsi d'ajuster la température fournie par les résistances chauffantes. Ce four est entouré de PVC et enfermé dans une boite en plexiglas dans laquelle une température ambiante (constante) est assurée à l'aide d'une circulation d'eau à une température contrôlée.

Le four et la boite en plexiglas l'entourant sont montés sur deux platines de translation permettant le déplacement de l'ensemble suivant les axes x et z.

3.1.4 Chaîne d'acquisition des images

Comme nous pouvons le voir sur la figure 3.1 (b), l'échantillon est éclairé perpendiculairement à la propagation du faisceau laser. L'illumination est réalisée à l'aide d'une lampe à vapeur de tungstène fibrée produisant une lumière blanche continue focalisée sur l'échantillon par l'intermédiaire d'un condenseur réglé en éclairage critique.

La chaîne d'acquisition des images se compose d'un objectif de microscope (de grandissement variable), d'un filtre orange coupant la diffusion du faisceau laser et enfin d'une caméra rapide reliée à un ordinateur.
Les objectifs de microscope utilisés pour la visualisation des déformations d'interfaces (d'extension radiale de l'ordre de la dizaine de micromètres) sont aussi caractérisés par une grande distance de travail (*D.T.*) pour des raisons d'encombrement. Leurs différentes caractérisitques sont résumées dans le tableau 3.1.

Objectif	**Ouverture numérique**	**Distance de travail** (mm)	**Distance focale** (mm)	**Profondeur de champ** (µm)
X10 Olympus	0.25	21	18.0	4.40
X20 Nachet	0.30	17	10.0	3.00
X50 Olympus	0.45	15	3.6	1.36

Tab. 3.1 – *Caractéristiques des différents objectifs de microscopes utilisés pour l'imagerie des déformations d'interfaces liquides.*

La caméra rapide utilisée comporte un pavé de type Cmos (*Complementary metal oxide semi-conductor*) de résolution maximale 1280×1024 pixels codant sur 256 niveaux de gris. Cette caméra permet d'explorer une plage de cadences d'acquisitions de 25 à

16000 images par seconde. Dans notre étude, nous n'avons pas utilisé de cadences trop élevées car d'une part il n'y en avait pas la nécessité, d'autre part, l'augmentation de la cadence d'acquisition entraîne une diminution de la taille du pavé. Nous avons en fait travaillé à des cadences de 25 à 1000 images par seconde. Un étalonnage a également été réalisé, pour les différents objectifs utilisés (présentés dans le tableau 3.1), en fonction de la position de la caméra sur le banc d'acquisition en imageant un micromètre de précision placé dans le plan du faisceau laser.

Les images enregistrées sont ensuite analysées numériquement à l'aide de différents logiciels de traitement comme ImageJ et MATLAB®.

3.1.5 Déformations obtenues suivant le sens de propagation

Le présent montage expérimental permet donc d'explorer différents types de déformations suivant le sens de propagation de l'onde incidente. En effet, il est possible de travailler avec un faisceau laser se propageant depuis la voie basse ou depuis la voie haute. Le cas écheant, nous pouvons utiliser deux faisceaux contra-propageants en jouant sur la position angulaire de la lame $\lambda/2$. Dans cette partie, nous présentons les différents types de déformations obtenus, sur l'interface d'un échantillon critique contrôlé en température, suivant le sens de propagation de l'onde incidente et les limitations techniques que nous pouvons rencontrer.

Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (faisceau ascendant)

Lorsque l'onde incidente se propage depuis la voie basse, la configuration du dispositif expérimental peut-être représentée schématiquement comme sur la figure 3.3 (a). L'angle de la lame $\lambda/2$ dans ce cas n'est pas modifié afin que l'onde incidente ne subisse aucune déviation par le cube séparateur (CS). La déformation de l'interface fluide de l'échantillon critique observée ressemble typiquement à celle présentée sur la figure 3.3 (b).

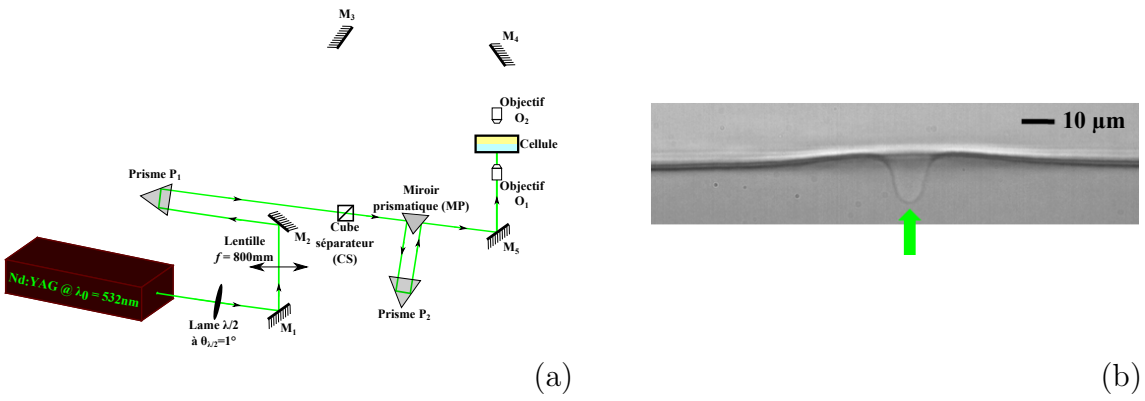
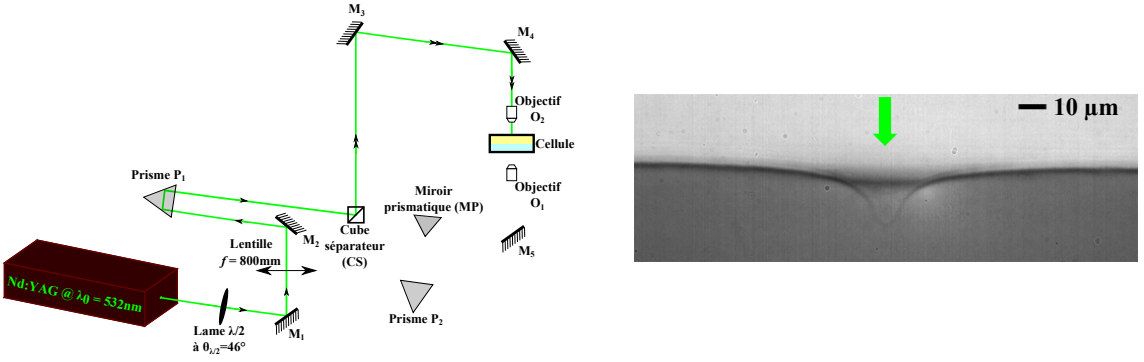


FIG. 3.3 – *(a) Dispositif expérimental configuré pour que l'onde incidente se propage depuis la voie basse (faisceau ascendant). (b) Image typique d'une déformation d'une interface liquide résultant de cette configuration expérimentale. Échantillon utilisé : microémulsion quasi-critique contrôlée en température ($T - T_C = 2$ K, $\omega_0 = 7.5$ µm et $P = 462$ mW).*

Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (faisceau descendant)

À présent lorsque la lame $\lambda/2$ subit une rotation de $(45 \pm 90)^\circ$, l'onde incidente est totalement diviée par le cube séparateur (CS) et emprunte la voie haute du dipositif expérimental pour intercepter l'interface de l'échantillon critique depuis le haut (faisceau descendant), comme cela est représenté schématiquement sur la figure 3.4 (a). Sur la figure 3.4 (b), nous pouvons voir l'allure typique des déformations d'interfaces liquides observées lorsque le montage est réglé dans cette configuration.



(a) (b)

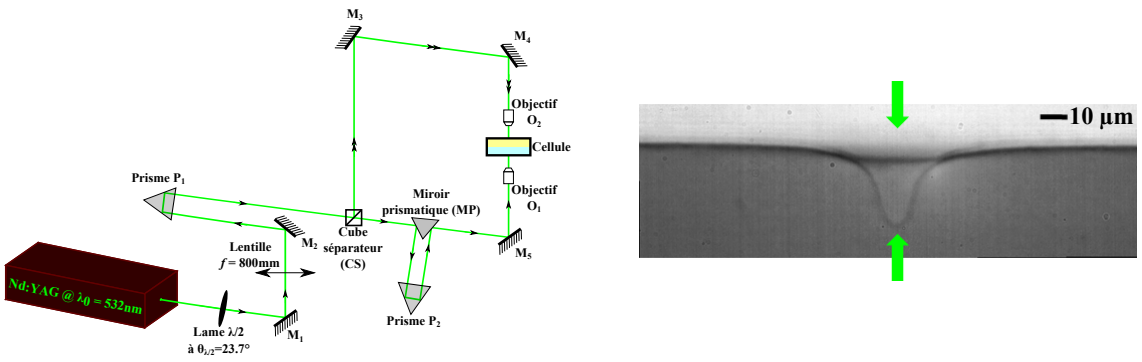
Fig. 3.4 – *(a) Dispositif expérimental configuré pour que l'onde incidente se propage depuis la voie haute (faisceau descendant). (b) Image typique d'une déformation d'une interface liquide résultant de cette configuration expérimentale. Échantillon utilisé : microémulsion quasi-critique contrôlée en température* ($T - T_C = 2$ K, $\omega_0 = 7.48$ µm *et* $P = 72.6$ mW*).*

Propagation de l'onde incidente en configuration double propagation

Finalement, lorsqu'on souhaite travailler avec deux faisceaux contra-propageants, il convient d'appliquer un angle de rotation à la lame $\lambda/2$ compris entre $(1\pm45)^\circ$ et $(46\pm45)^\circ$. En parcourant cette plage d'angles pour la lame $\lambda/2$, nous pouvons choisir quelle voie du montage expérimental nous favorisons. En particulier, nous nous intéresserons par la suite à des études réalisées en double propagation avec deux faisceaux contra-propageants délivrant la même puissance laser au niveau de l'interface de l'échantillon. Dans ce cas, il faut régler la lame $\lambda/2$ à $(23.7 \pm 45)^\circ$. Ce cas est présenté sur la figure 3.5 (a). Sur la figure 3.5 (b) est représenté l'image typique d'une déformation de l'interface d'un échantillon critique produite par l'action de deux faisceaux laser contra-propageants de même puissance laser au niveau de l'interface.

Visualisation des déformations d'interfaces : limitations

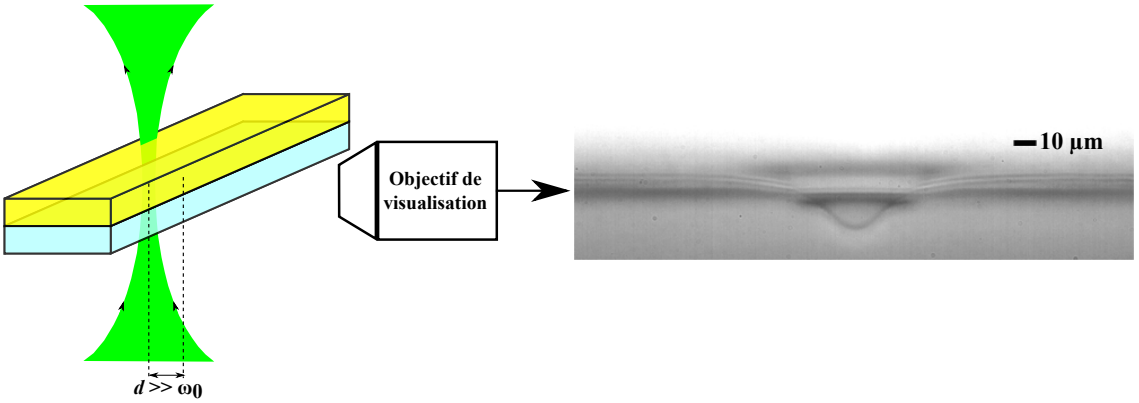
Les échantillons quasi-critiques utilisés, ainsi que les autres systèmes fluides dont on exposera les différentes caractéristiques par la suite, sont des milieux assez turbides. Cette particularité limite le champ de visualisation des déformations induites par l'onde incidente. En effet, la turbidité de l'échantillon implique que les déformations ne seront correctement visibles que près de la face de sortie de la cellule contenant cet échantillon. Par ailleurs, la distance de travail de l'objectif de microscope de visualisation est un second paramètre limitant.



(a) (b)

FIG. 3.5 – *(a) Dispositif expérimental en configuration double propagation où deux faisceaux laser interceptent l'interface de l'échantillon avec la même puissance. (b) Image typique de déformation d'une interface liquide résultant de cette configuration expérimentale. Échantillon utilisé : microémulsion quasi-critique contrôlée en température* ($T - T_C = 2$ K, $\omega_0 = 7.48$ µm *et* $P = 171.6$ mW*).*

La figure 3.6 (a) représente schématiquement la configuration expérimentale où le faisceau laser est placé à une grande distance ($d >> \omega_0$) de la face de sortie de la cellule contenant l'échantillon. Sur la figure 3.6 (b) est présenté l'image de la déformation d'interface obtenue avec cette configuration expérimentale (pour $d = 20\omega_0 = 199.2$ µm). Il apparaît alors évident que le ménisque n'est pas correctement résolu, ce qui rend l'exploitation de profil irréalisable.

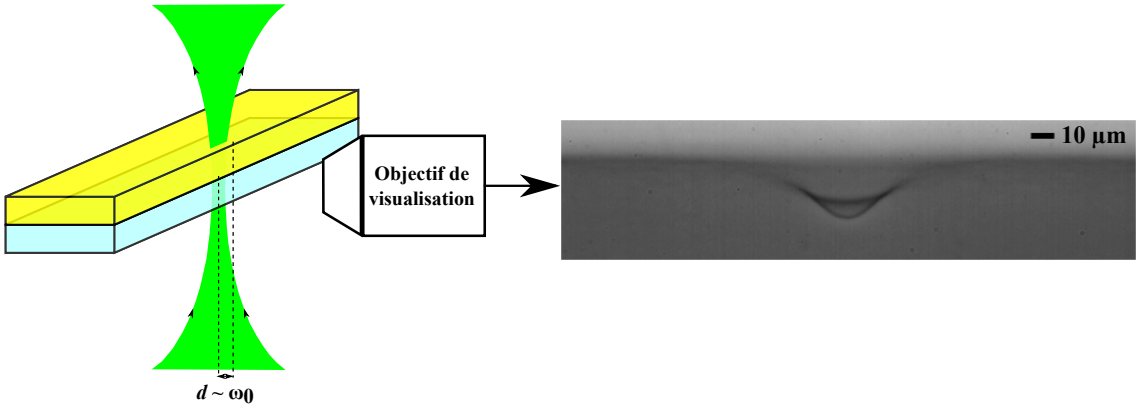


(a) (b)

FIG. 3.6 – *(a) Représentation schématique d'une configuration expérimentale où la distance d séparant le faisceau laser de la face de sortie de la cellule est grande. (b) Image expérimentale d'une déformation de l'interface d'un échantillon quasi-critique où la distance entre le faisceau laser et la face de sortie de la cellule est* $d = 20\omega_0 = 199.2$ µm.*(*$T - T_C = 1.5$ K, $\omega_0 = 9.96$ µm *et* $P = 770$ mW*, faisceau laser ascendant).*

D'autre part, si maintenant le dipositif expérimental est réglé de manière à ce que la distance entre le faisceau laser et la face de sortie de la cellule est petite ($d \sim \omega_0$), la déformation d'interface liquide est profondément affectée comme on peut le voir sur la figure 3.7 (b). En effet, la déformation du ménisque séparant les deux phases de l'échantillon adopte une courbure importante et intercepte le bord de la cellule.

Comme la forme du ménisque séparant les deux phases de l'échantillon résulte d'un



(a) (b)

Fig. 3.7 – *(a) Représentation schématique d'une configuration expérimentale où la distance d séparant le faisceau laser de la face de sortie de la cellule est de l'ordre du col du faisceau laser ω_0. (b) Image expérimentale d'une déformation de l'interface d'un échantillon quasi-critique où la distance entre le faisceau laser et la face de sortie de la cellule est $d = 2\omega_0 = 19.92$ µm.($T - T_C =$ 1.5 K, $\omega_0 = 9.96$ µm et $P = 770$ mW, faisceau laser ascendant).*

équilibre entre les forces capillaires (responsables de son existence) et la gravité (qui s'oppose à sa formation), nous pouvons estimer l'allure théorique de ce ménisque [73]. En termes de pressions, la pression de Laplace, sous le ménisque, est égale à la pression hydrostatique. Si on note z, la hauteur de l'interface par rapport à la tangente horizontale à l'interface loin de la paroi et $R^{-1}(z)$ la courbure en z, on peut écrire :

$$\frac{\sigma}{R(z)} = -\Delta\rho g z, \tag{3.8}$$

avec σ, la tension interfaciale et $\Delta\rho$ la différence de densité entre les deux liquides. L'équation 3.8 peut se simplifier telle que :

$$-R(z)z = l_c^2, \tag{3.9}$$

faisant apparaître la seule longueur caractéristique de notre problème à savoir la longueur capillaire l_c définie au chapitre 2 comme :

$$l_c = \sqrt{\frac{\sigma}{\Delta\rho g}}. \tag{3.10}$$

On peut écrire la courbure du ménisque comme $\frac{1}{R} = -\frac{\mathrm{d}\theta}{\mathrm{d}s}$ où θ est l'angle que fait la tangente en chaque point du ménisque avec la verticale comme on peut le voir sur la figure 3.8 (a) (s correspond à la coordonnée curviligne le long de la courbe méridienne). En coordonées cartésiennes, cette courbure peut se réécrire dans le plan (x, z) :

$$\frac{1}{R} = -\frac{\frac{\mathrm{d}^2 z}{\mathrm{d}x^2}}{\left(1 + \left(\frac{\mathrm{d}z}{\mathrm{d}x}\right)^2\right)^{3/2}}. \tag{3.11}$$

Nous obtenons une équation différentielle de second ordre pour le profil du ménisque $z(x)$. Nous avons donc besoin de deux conditions aux limites. On intègre une première

fois l'équation 3.11 en utilisant comme condition aux limites $\frac{\mathrm{d}z}{\mathrm{d}x} = z = 0$ quand on fait tendre x vers l'infini, ce qui donne :

$$\frac{1}{\left(1+\left(\frac{\mathrm{d}z}{\mathrm{d}x}\right)^2\right)^{1/2}} = 1 - \frac{z^2}{2l_c^2}. \tag{3.12}$$

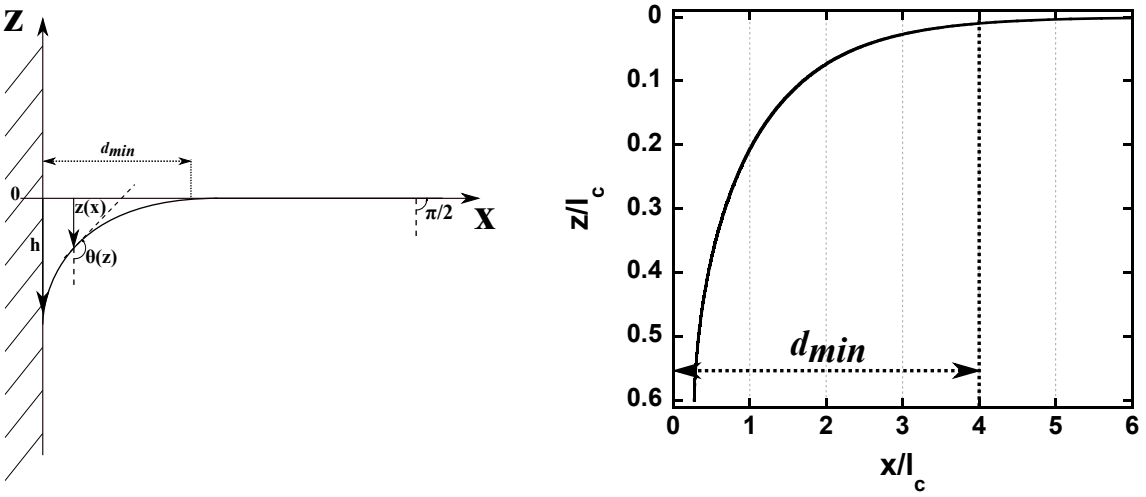
Enfin, le profil théorique du ménisque est obtenu en intégrant l'équation 3.12 en considérant comme condition aux limites qu'en $x = x_0 = 0$, $z = h$ (où h est la hauteur maximale atteinte lorsque le liquide est totalement mouillant). Dans ce cas, on trouve que :

$$x - x_0 = l_c \arg\cos\left(\frac{2l_c}{z}\right) - 2l_c\left(1 - \frac{z^2}{4l_c^2}\right)^{1/2}, \tag{3.13}$$

remarquons que cette condition de mouillage total est vérifiée pour nos systèmes critiques.

On peut réécrire ce profil par rapport à la longueur caractéristique du problème, la longueur capillaire, tel que :

$$\frac{x}{l_c} = \arg\cos\left(\frac{2l_c}{z}\right) - 2\left(1 - \frac{z^2}{4l_c^2}\right)^{1/2}. \tag{3.14}$$



(a) (b)

FIG. 3.8 – *(a) Allure du ménisque proche d'une paroi. d_{min} représente la distance minimale entre la paroi de sortie de la cellule et le faisceau laser. (b) Profil théorique du ménisque issu de la formule 3.14 représentant l'évolution de la hauteur du fluide normalisée à la longueur capillaire en fonction de la coordonnée x normalisée à la longueur capillaire.*

Sur les figures 3.8 (a) et (b), d_{min} correspond à la distance minimale entre le faisceau laser et la paroi de sortie de la cellule nécessaire pour ne plus ressentir les effets de proximité de la paroi sur les déformations d'interfaces liquides induites par le laser. Cette distance minimale correspond théoriquement à $4 \times l_c$. Pour les systèmes fluides utilisés au cours de cette thèse, cette longueur capillaire peut varier entre $l_c \simeq 20$ µm (pour les systèmes critiques) et $l_c \simeq 40$ µm (pour les autres systèmes utilisés). La distance minimale varie donc entre $d_{min} = 4 \times l_c \simeq 80$ µm et $d_{min} \simeq 160$ µm. Dans la suite de nos travaux,

nous avons donc pris soin de placer le faisceau laser au-delà de cette distance minimale de visualisation d_{min} tout en évitant de se placer trop loin dans la cellule afin d'éviter les problèmes de détection visuelle de l'interface dus à la turbidité du milieu utilisé.

3.2 Modélisation numérique des déformations d'interfaces liquides observées

Tout au long de cette thèse, nous avons réalisé différentes simulations numériques permettant la modélisation (quantitative ou qualitative) des phénomènes étudiés. Un programme numérique, développé au sein de notre équipe par H. Chraïbi, prend en compte les mêmes paramètres que ceux utilisés en expérience tels que le col du faisceau ω_0, le contraste d'indice Δn entre les deux phases mises en contact, la tension interfaciale σ ou encore la puissance P du faisceau laser incident. À l'aide de ces différents paramètres, il est possible de calculer la pression de radiation optique, la pression de Laplace, la poussée d'Archimède ainsi que la contrainte à l'interface associée à l'écoulement généré en volume par la diffusion de la lumière dans le milieu (toutes ces contraintes sont décrites dans le chapitre 2). Ce type de simulation numérique nous permettra d'étudier séparemment les différents couplages onde laser – fluides et notamment d'évaluer l'influence de la force diffusive sur les différents phénomènes observés.

La géométrie utilisée pour cette modélisation numérique est présentée sur la figure 3.9. On considère deux couches fluides horizontales d'épaisseurs respectives L_1 et L_2 et de rayon R_0, donnant lieu à des volumes cylindriques respectifs V_1 et V_2. Ces deux volumes fluides sont séparés par une interface S_I initiallement au repos. L'interface est illuminée par un faisceau laser considéré de symétrie cylindrique selon l'axe de propagation et de profil d'intensité gaussien radialement. Les deux liquides étant diffusant et d'indice de réfraction différent, l'interface est soumise à la fois à la pression de radiation optique ainsi qu'à la contrainte due aux écoulements en volume engendrés par la force diffusive. Les contraintes capillaires et la gravité s'opposent à ces déformations.

Le système étant considéré comme axisymétrique le long de l'axe z (axe du faisceau laser incident), nous choisissons un système de coordonnées cylindriques (e_r, e_Θ, e_z) afin de décrire l'interaction laser – fluide, d'origine O correspondant à l'intersection de l'axe du faisceau laser avec l'interface initiallement horizontale en $z = 0$.

L'équation d'équilibre de l'interface soumise aux différentes contraintes (pression de radiation, contraintes interfaciales, gravité et contraintes liées à la force diffusive) est résolue par l'intermédiaire d'une méthode des éléments de frontière BEM (*Boundary Element Method*). Une présentation détaillée de cette méthode numérique est décrite dans la référence [74].

La plupart des simulations présentées dans ce manuscrit a été réalisé en considérant la géométrie présentée figure 3.9 avec un rayon $R_0 = 40 \times \omega_0$ (où ω_0 est le rayon au col du faisceau laser) et des hauteurs de fluides égales telles que $L_1 = L_2 = 30 \times \omega_0$. Ces paramètres ont pu prendre des valeurs différentes pour quelques simulations particulières comme l'ajustement numérique de profils expérimentaux de déformations stationnaires où cette fois, $R_0 = 50 \times \omega_0$ et $L_1 = L_2 = 15 \times \omega_0$. Dans tous les cas, le nombre de

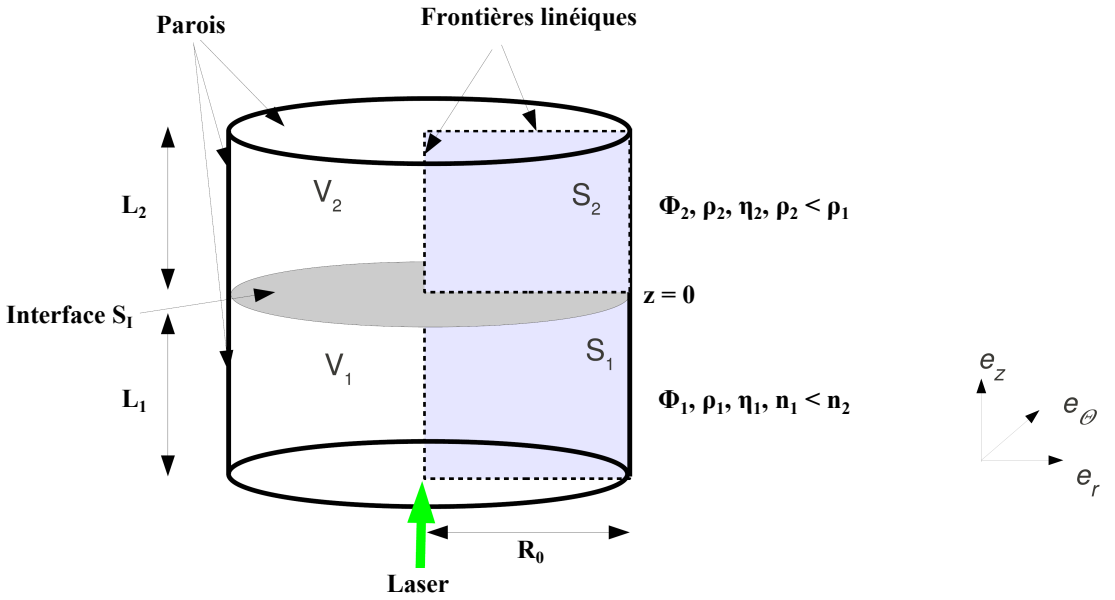


FIG. 3.9 – *Géométrie utilisée pour la modélisation numérique de déformations d'interfaces liquides par laser. Configuration présentée : onde électromagnétique incidente se propageant du milieu le moins réfringent vers le plus réfringent.*

points situés sur l'interface (permettant de la décrire spatialement) ainsi que le nombre d'itérations (décrivant l'évolution temporelle de la déformation d'interface) ont été fixés respectivement à 65 points et 1000 itérations, sauf mention particulière de notre part. La répartition des points sur l'interface n'est pas homogène, mais soumise à un coefficient de raffinement permettant de mieux décrire la déformation proche de l'axe du faisceau laser où les variations de la courbure sont importantes ($r = 0$) comme cela est illustré sur la figure 3.10.

En effet, la longueur du segment d'interface i (plus proche des parois) est 1.04 fois plus grande que celle du segment $i + 1$ (plus proche de l'axe du faisceau laser). Par cette technique, nous pouvons obtenir une très bonne description de l'interface déformée sur tout le domaine d'étude (correspondant à la largeur de la « cellule modélisée, » R_0). Le choix de ces paramètres numériques (nombre de points sur l'interface, taille des volumes ou encore coefficient de raffinement) s'avère décisif pour la bonne convergence du code numérique. Effectivement, un trop grand nombre de points le long de l'interface entraîne des problèmes de résolution numérique et l'apparition de formes non physiques en bout de déformation. En outre, il s'agit de choisir judicieusement les paramètres de tailles et d'itérations afin d'obtenir des temps de calculs raisonnables.

La géométrie expérimentale n'est pas cylindrique (3.6 (a)), il s'agit d'une cellule rectangulaire de hauteur 2 mm, de profondeur 10 mm et de largeur 40 mm. Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.1.5, le faisceau laser n'est pas placé au milieu de la cellule mais à une position par rapport à la face de sortie de la cellule comprise entre une valeur maximale et minimale afin d'assurer une visualisation correcte et de s'affranchir de tout effet de confinement. Il en va de même en simulation numérique où l'effet du confinement peut influencer l'allure de la déformation d'interface étudiée. Expérimentalement, la déformation d'interface est observée à une distance de l'ordre d'une centaine de micromètres par rapport à la paroi de sortie de la cellule, ordre de grandeur qui est également respecté

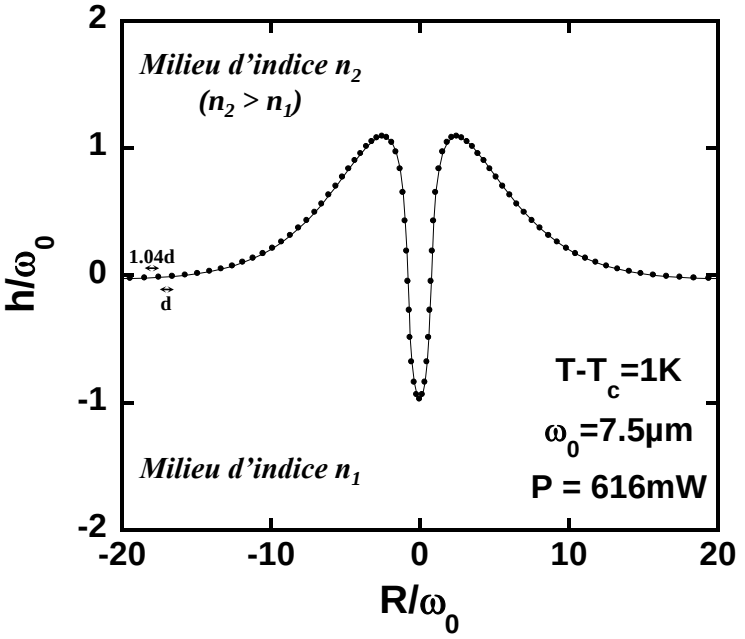


Fig. 3.10 – *Exemple de profil numérique de déformation stationnaire lorsque le faisceau laser se propage du milieu le moins réfringent vers le plus réfringent. Les données utilisées correspondent à une microémulsion quasi-critique dans les conditions :* $T - T_C = 1K$, $\omega_0 = 7.5$ µm *et* $P =$ 616 mW. *Une illustration du raffinement des points sur l'interface est présentée.*

lors des simulations numériques.

Une déformation simulée numériquement avec ce modèle est considérée comme stationnaire lorsque sa hauteur reste constante au bout d'un certain laps de temps (équivalent à une centaine de fois un temps caractéristique égal à $\tau = \frac{L_1 \eta_1}{\sigma}$ [74]) (figure 3.11). L'apparition d'une instabilité physique se traduit par contre numériquement par la divergence de la hauteur de déformation au cours du temps comme cela est présenté sur la figure 3.12.

Les exemples d'évolutions temporelles d'une déformation d'interface simulée présentés sur les figures 3.11 et 3.12 sont réalisées pour une configuration expérimentale où l'onde incidente se propage du milieu le plus réfringent vers le moins réfringent. Plus précisément, il s'agit dans cet exemple de déterminer le seuil d'instabilité de jet induit par l'action à la fois de la pression de radiation optique et des contraintes dues aux écoulements en volume générés par la force diffusive (les deux effets agissant dans le même sens). Pour étudier numériquement ce phénomène à seuil et en déterminer le seuil numérique que l'on comparera avec le seuil (en puissance) obtenu expérimentalement, nous nous basons sur l'analyse de la dynamique obtenue numériquement présentée sur les figures 3.11 et 3.12. En effet, par l'observation de ces dynamiques particulières associée à une méthode de dichotomie, nous sommes en mesure de déterminer le seuil d'instabilité (en puissance) prédit numériquement. Ce seuil correspondra donc à la dernière puissance laser, notée P_{seuil}, pour laquelle l'évolution temporelle de la déformation d'interface liquide exhibe une hauteur de déformation constante au bout du temps de l'expérience numérique. Pour une puissance $(P_{seuil} + \epsilon)$, nous observerons une divergence de la hauteur de déformation au cours du temps (figure 3.12). La détemination de cette puissance seuil peut être obtenue avec une très grande précision. Toutefois, une très grande précision (de l'ordre de 0.1 mW

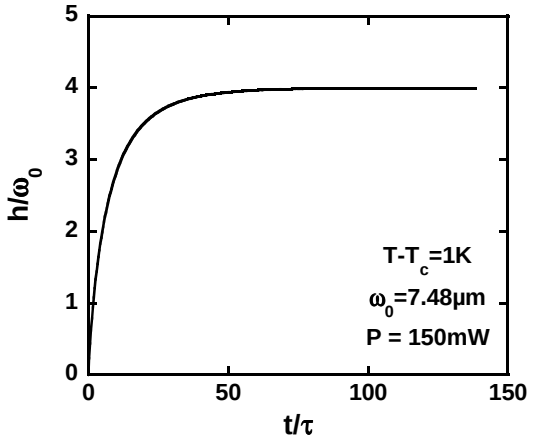


FIG. 3.11 – *Simulation numérique de l'évolution temporelle d'une déformation d'interface liquide stationnaire. Propagation du faisceau laser de la phase la plus réfringente vers la phase la moins réfringente. Les données utilisées correspondent à une microémulsion quasi-critique dans les conditions :* $T - T_C = 1K$, $\omega_0 = 7.48$ µm *et* $P = 150$ mW.

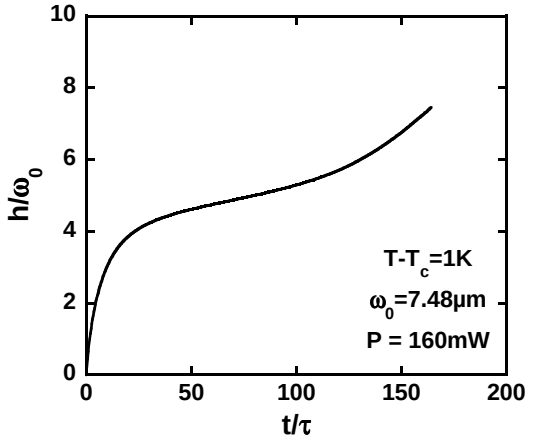


FIG. 3.12 – *Simulation numérique de l'évolution temporelle d'une déformation d'interface liquide instationnaire. Propagation du faisceau laser de la phase la plus réfringente vers la phase la moins réfringente. Les données utilisées correspondent à une microémulsion quasi-critique dans les conditions :* $T - T_C = 1K$, $\omega_0 = 7.48$ µm *et* $P = 160$ mW.

par exemple) entraîne un grand nombre de calculs et donc un temps important nécessaire à l'obtention de ce seuil. Ceci n'est pas raisonnable d'autant plus que la précision sur la détermination de la puissance laser expérimentalement est de l'ordre de 6 mW. Pour cette raison, lors de ces études numériques de seuil en puissance, nous avons choisi une précision en puissance de l'ordre de 1 mW à 10 mW selon les cas.

3.3 Systèmes fluides utilisés

Dans cette partie, nous faisons la revue des différents systèmes fluides utilisés au cours de cette thèse. Il s'agit de faire un tour d'horizon et de résumer leurs différentes caractéristiques. Une présentation détaillée de ces systèmes est donnée en annexe A.

La particularité commune à tous les systèmes utilisés dans ces travaux est la nécessité de bénéficier d'interfaces fluides extrêmement déformables, c'est–à–dire présentant une tension interfaciale très basse. Ceci est indispensable compte tenu de l'amplitude des forces optiques (très faibles) mises en jeu dans ces expériences.

La deuxième particularité a consisté à choisir des systèmes qui présentent également une modularité de la turbidité, permettant le contrôle de la force diffusive. Deux grands types de systèmes fluides ont été utilisés. D'une part, les phases de Winsor qui nous permettent de s'affranchir de cette force diffusive ou d'en contrôler l'existence dans l'une ou l'autre des deux phases en coexistence de l'échantillon. D'autre part, nous avons considéré

des fluides critiques appelés microémulsions quasi-critiques proche d'une transition de phase du second ordre. Ces derniers, par leur contrôle en température, apportent une grande modularité de l'amplitude de cette force diffusive (présente dans les deux phases de l'échantillon). Ainsi, le contrôle thermique permet à la fois de jouer sur l'amplitude de la force diffusive mais aussi et surtout de faire varier considérablement la tension interfaciale. De ce fait, les effets dus à la pression de radiation de l'onde incidente ainsi que les effets en volumes induits par la force diffusive seront exacerbés.

3.3.1 Phases de Winsor

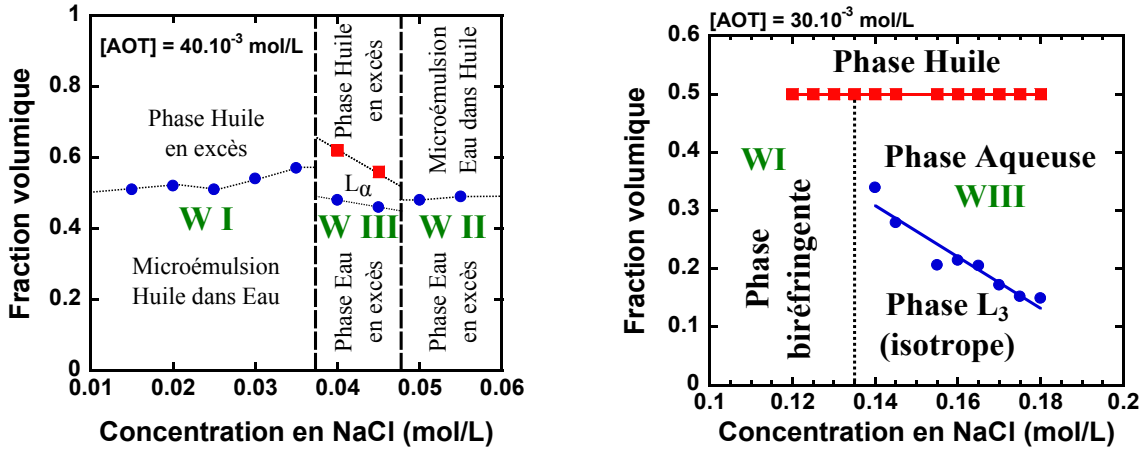
Les phases de Winsor, décrites dans les années 1940 par P. A. Winsor [75], sont des mélanges liquides composés d'eau salée, d'un surfactant (AOT) et d'huile. Lorsque le surfactant est ionique (ce qui est notre cas), la variation de la salinité engendre la naissance de différents équilibres de phases de Winsor. En effet, pour de faibles concentrations en sel, on rencontre un régime diphasique, dit équilibre de Winsor I où une microémulsion composée de micelles d'huile dans l'eau est en équilibre avec une phase en excès d'huile. Lorsque la salinité est forte, un régime diphasique est également présent, nommé cette fois-ci équilibre de Winsor II pour lequel une micorémulsion composée de micelles d'eau dans l'huile est en équilibre avec une phase en excès d'eau. Enfin, pour des salinités intermédiaires, un nouveau régime apparaît comportant trois phases en coexistence : une phase riche en surfactant avec de part et d'autre de celle-ci un excès de la phase huile et de la phase aqueuse. Ce dernier régime, nommé équilibre de Winsor III, étant celui qui présente les plus faibles tensions interfaciales [76–80], nous allons exclusivement nous focaliser sur cet équilibre.

Système diphasique de référence : phases transparentes et isotropes

Ce système de référence a la particularité de ne pas comporter de phase diffusante, ainsi seule la pression de radiation optique de l'onde incidente aura un effet sur l'interface de l'échantillon (annexe A.1.3).

Les phases de Winsor utilisées pour ce système de référence sont réalisées à l'aide d'un mélange d'eau salée, d'AOT et d'un alcane court, le n-heptane (plus l'alcane est court et plus la tension interfaciale peut–être faible). Une fois à l'équilibre, les échantillons en régime de Winsor III présentent donc trois phases en coexistence. La phase intermédiaire est une phase lamellaire L_α constituée de presque autant d'huile que d'eau et contenant tout le surfactant en excès par rapport à la concentration micellaire critique (c.m.c.). Elle est biréfringente et constituée de films d'huile et d'eau séparés par des monocouches de surfactant. De part et d'autre de cette phase L_α, est présent un excès de la phase aqueuse et un excès de la phase huile. Ces excès de phases servent à réaliser le système de référence voulu (transparent et isotrope), il convient de prélever ces deux parties de l'échantillon tri–phasique. La mise en coexistence de ces deux phases nous permettra d'obtenir des échantillons diphasiques constitués d'eau salée et d'heptane exhibant une tension interfaciale extrêmement basse (σ de l'ordre de 10^{-6} N/m). Le diagramme de phases expérimental est représenté sur la figure 3.13 (a).

Un lot de cellules de spectroscopie Hellma® de trajet optique $e = 2$ mm est rempli avec le même volume de chaque phase (eau et heptane). Le remplissage est un moment délicat car il est nécessaire d'éviter toute perturbation de l'équilibre existant entre les



(a) (b)

FIG. 3.13 – *(a) Diagramme de phases en fonction de la salinité des phases de Winsor réalisées avec un mélange (eau salée–AOT–heptane) à une température de 25°C. (b) Diagramme de phases en fonction de la salinité des phases de Winsor réalisées avec un mélange (eau salée–AOT–dodécane) à 20°C.*

deux phases. Les cellules sont ensuite scellées et thermostatées à 25°C dans le four du dispositif expérimental régulé en température à l'aide du P.I.D. (comme nous l'avons vu plus haut).

Système diphasique présentant une phase transparente et une phase diffusante

Les phases de Winsor considérées dans cette partie sont réalisées à l'aide d'un mélange d'eau salée, d'un surfactant et d'une huile dont la chaîne carbonée est plus longue que précédemment. L'huile utilisée est le n-dodécane comportant 12 atomes de carbone. Les diagrammes de phases issus de ces huiles plus longues sont beaucoup plus complexes que ceux concernant les huiles plus courtes (annexe A.1.4). À nouveau, un régime de Winsor III est présent lorsque l'on fait varier la salinité, comme on peut le voir sur la figure 3.13 (b) représentant le diagramme de phases expérimental. Les propriétés de ce régime de Winsor III sont également différentes de celles des phases de Winsor réalisées avec le mélange (eau salée–AOT–heptane). Ainsi, pour un domaine de salinité défini, le régime de Winsor III présente la coexistence d'une phase L_3 (appelée également *phase éponge*) qui est diffusante et est constituée de bicouches d'AOT ayant incorporé très peu d'huile, d'une phase aqueuse et d'une phase d'huile. Ce sont les deux premières phases que nous considérerons par la suite. La tension interfaciale entre la phase L_3 et la phase aqueuse est extrêmement faible et, à notre connaissance, n'a pas été mesurée. La phase diffusante sera donc cette phase L_3 et la phase transparente correspondra à la phase aqueuse.

La phase riche en surfactant est la phase L_3 qui est isotrope mais devient biréfringente sous écoulement. Comme nous pouvons le remarquer sur le diagramme de phases présenté sur la figure 3.13 (b), le volume de la phase diffusante L_3 est d'autant plus important que la salinité est basse (jusqu'à un certain seuil où ce régime de Winsor III disparaît). Ainsi, la tension interfaciale eau salée–L_3 sera d'autant plus faible que la salinité est basse et l'effet induit sur l'interface par la force diffusive sera d'autant plus efficace. C'est pour cela que nous avons choisi des échantillons se situant dans le régime de Winsor III à faible

salinité afin d'exacerber les effets étudiés.

De façon similaire aux phases de Winsor constituées du mélange (eau salée–AOT–heptane), nous procédons au prélèvement des phases L_3 et aqueuse pour, par la suite, produire un lot de cellules de spectroscopie Hellma® de trajet optique $e = 2$ mm rempli avec le même volume de chaque phase (phase aqueuse et phase L_3). Enfin, la phase L_3 étant plus dense que la phase aqueuse, cette dernière se situera au–dessus de la première. De même, les cellules sont scellées puis thermalisées cette fois–ci à 20°C dans le four du dispositif expérimental.

3.3.2 Phases micellaires de microémulsion

Toujours dans l'optique de produire des systèmes fluides présentant de très faibles tensions interfaciales, les phases micellaires de microémulsion quasi–critique au voisinage d'une transition de phase du second ordre sont une alternative intéressante. En effet, dans ces systèmes, la tension interfaciale σ tend vers zéro à l'approche d'un point critique selon la loi de puissance :

$$\sigma = \sigma_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C} \right)^{2\nu}, \tag{3.15}$$

où σ_0 est l'amplitude critique de la tension interfaciale, $(T - T_C)$ l'écart de la température de l'échantillon T à sa température critique T_C et $\nu = 0.63$, l'exposant critique (dépendant de la classe d'universalité ($d = 3$, $n = 1$) du modèle d'Ising (annexe A.2)).
On remarque immédiatement avec l'expression 3.15 que l'on possède un contrôle total sur l'amplitude de la tension interfaciale de l'échantillon en jouant sur l'écart à la température critique. Ce contrôle nous permet ainsi d'atteindre des tensions interfaciales extrêmement basses, de l'ordre de 10^{-6} N/m à 10^{-8} N/m.

La microémulsion quasi–critique utilisée est un mélange quaternaire constitué d'un surfactant (SDS), d'un co–surfactant (n–Butanol–1), d'huile (Toluène) et d'eau ultra-pure [51]. La phase majoritaire étant l'huile ($\sim 70\%$ de la concentration massique totale du mélange), nous obtenons une phase composée de micelles inverses d'eau dans l'huile en suspension dans une phase continue d'huile. La préparation de ces échantillons quasi–critiques ainsi que toutes les propriétés physiques sont détaillés en annexe A.

Une fois l'échantillon critique trouvé, nous remplissons un lot de cellules que l'on scelle puis que l'on thermalise dans le four du dipositif expérimental. Ces échantillons ont la particularité de présenter une seule phase homogène et isotrope lorsque le système est thermalisé à une température inférieure à sa température critique. Au–delà de cette température critique, le système subit une démixtion et se sépare en deux phases de concentrations en micelles différentes (celle « riche » en micelles d'eau dans l'huile se trouvant sous une autre appauvrie en micelles comme nous pouvons le voir sur le diagramme de phases présenté sur la figure 3.14). Nous allons donc thermaliser ces échantillons à une température supérieure à leur température critique afin d'obtenir les caractéristiques souhaitées. D'autre part, il s'agira de travailler pour des écarts à la température critique faibles (de $(T - T_C) \to 0$ à $(T - T_C) = 2$ K) de manière à ce que la tension interfaciale soit très basse et que les effets optiques recherchés soient exacerbés, notamment ceux résultant de la force diffusive.

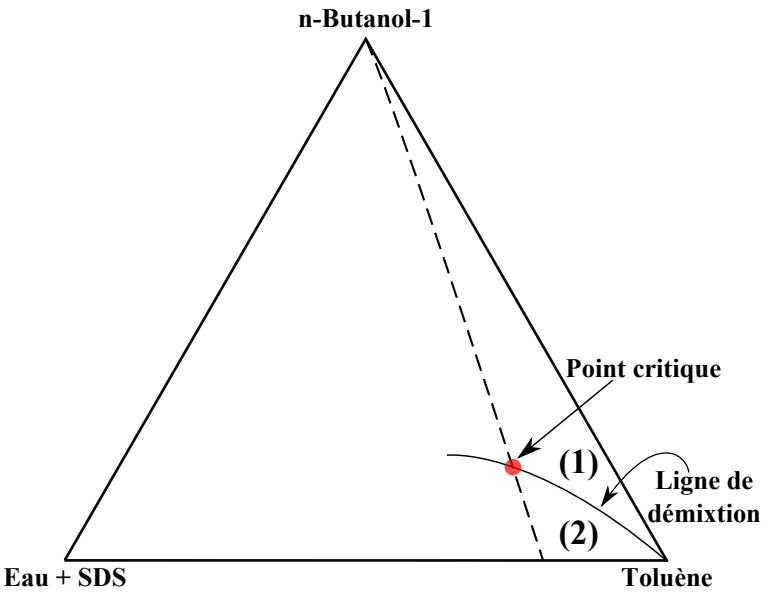


FIG. 3.14 – *Diagramme de phases du mélange quaternaire Eau - SDS - n-Butanol-1 - Toluène. (1) Région monophasique. (2) Région diphasique. Le système choisi correspond à* $Eau/SDS = 2.16$ *en concentration massique.*

Chapitre 4

Déformations d'interfaces liquides séparant deux fluides transparents et isotropes

Au cours du chapitre 2, nous avons introduit les différentes contraintes non – résonnantes intervanant dans l'interaction d'une onde électromagnétique avec un échantillon fluide diphasique non–absorbant présentant une interface molle. Ces contraintes peuvent être à l'origine de déformations d'interfaces liquides lorsque la tension interfaciale est faible. Nous avons tout d'abord identifié l'action de la pression de radiation optique, agissant à l'interface entre les deux phases liquides, résultant du contraste d'indice de réfraction existant entre ces deux phases. D'autre part, nous avons établi que lorsque le système fluide diffuse élastiquement la lumière incidente, le transfert de quantité de mouvement de l'onde incidente dans le milieu dans lequel elle se propage induit une force volumique donnant naissance à l'établissement d'écoulements permanents au sein du fluide. Les écoulements ainsi créés parallèlement à l'axe de propagation de l'onde incidente peuvent également conduire à la déformation de l'interface liquide, comme nous l'étudierons expérimentalement dans les chapitres suivants.

Nous avons choisi de commencer cette étude expérimentale des déformations d'interfaces liquides sous l'action d'une onde laser, par un système dit de « référence » ne diffusant pas la lumière incidente. Lors de ce chapitre, nous allons présenter les différents résultats expérimentaux obtenus lorsque seuls les effets de la pression de radiation optique participent à la déformation de l'interface liquide considérée. Nous étudierons les réponses du système fluide à l'excitation pour différentes configurations expérimentales, permettant de mettre en exergue une multitude de morphologies d'interfaces et de comportements. Nous commencerons par étudier une configuration expérimentale où le faisceau incident se propage de manière ascendante (*i.e.* depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent). Dans un deuxième temps, nous utiliserons un faisceau se propageant de façon descendante. Nous conclurons ce chapitre expérimental par l'étude de ce même système soumis à l'action de deux faisceaux lasers contra–propageants focalisés au niveau de l'interface liquide de l'échantillon afin d'établir une référence de comportement pour les prochains chapitres expérimentaux où ces trois configurations expérimentales seront également étudiées.

4.1 Système fluide utilisé : phases de Winsor à base de n–heptane en équilibre de Winsor III

Ce système fluide particulier, dont les caractéristiques et la réalisation sont décrits en annexe A, correspond à un mélange d'eau salée, d'AOT et de n–heptane. L'ajustement de la salinité permet d'obtenir un échantillon comportant trois phases (système en équilibre de Winsor III) : une phase intermédiaire intégrant la quasi–totalité du surfactant est ainsi obtenue avec de part et d'autre de celle–ci, une phase en excès d'eau salée (la plus dense) et une phase en excès d'huile (la plus légère). Ces deux dernières phases sont donc transparentes et isotropes. Le choix de ce type de système repose exclusivement sur le critère de faible tension interfaciale entre deux phases non–diffusantes. En effet, ce système nous permet d'atteindre des tensions interfaciales très basses (typiquement de l'ordre de $\sigma \sim 10^{-6}$ N/m). Ainsi, nous pouvons étudier les déformations d'interfaces liquides, séparant une phase d'eau salée (dont la concentration en sel est de $[NaCl] = 0.040$ mol/L ou $[NaCl] = 0.045$ mol/L suivant les échantillons utilisés dans ce chapitre) et une phase d'huile, pour des puissances laser largement accessibles expérimentalement ($P < 3.3$ W).

4.2 Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (faisceau laser ascendant)

Au cours de cette section, nous allons présenter les différents résultats expérimentaux obtenus lorsqu'une onde incidente, issue d'un laser Nd^{3+}–YAG (de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm), intercepte l'interface liquide de l'échantillon de façon ascendante (*i.e.* se propageant depuis le milieu le moins réfringent, l'eau, vers le plus réfringent, le n–heptane).

4.2.1 Évolution de la hauteur de déformation et morphologies typiques adoptées par l'interface liquide en fonction de la puissance laser

Lorsque le dispositif expérimental est réglé de telle manière que le faisceau incident se propage depuis la voie basse du montage optique, différentes morphologies de déformations d'interfaces sont accessibles par l'intermédiaire d'une variation de la puissance laser P appliquée au niveau de l'interface liquide. Les images expérimentales de quelques déformations typiques pour différentes puissances sont reportées sur la figure 4.1. L'évolution correspondante de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance croissante est représentée figure 4.2. La hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, correspond à l'altitude maximale atteinte par l'interface déformée par rapport à l'interface au repos (en absence de source excitatrice). h_{max} est représentée schématiquement sur l'une des images expérimentales présentées figure 4.1.

D'après la figure 4.1, nous pouvons évaluer de manière visuelle l'évolution de la morphologie adoptée par l'interface liquide déformée lorsque la puissance laser augmente. Lorsque P est assez faible (typiquement pour $P < 300$ mW dans l'exemple présenté figures 4.1 et 4.2), l'interface liquide présente une « simple bosse » de déformation typique

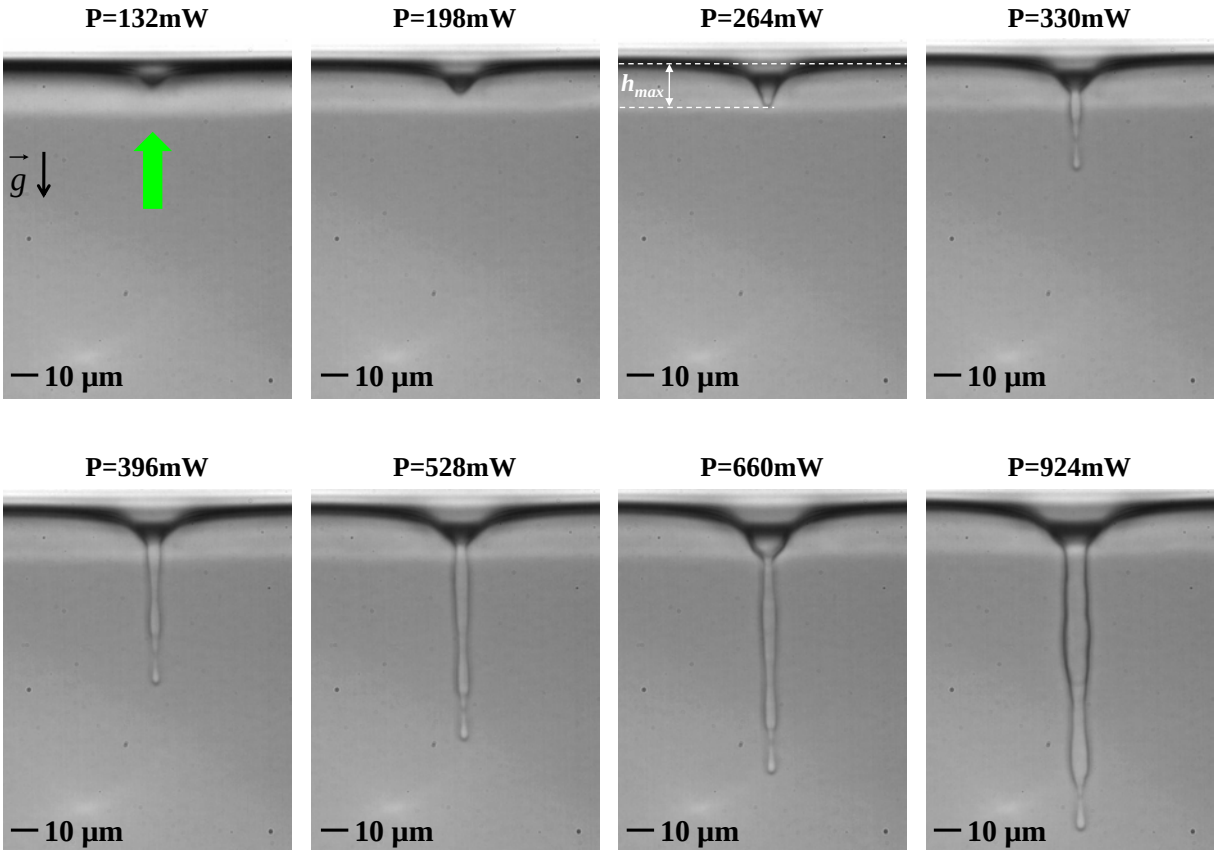


Fig. 4.1 – *Images expérimentales typiques de l'évolution en fonction de la puissance laser de la déformation de l'interface liquide d'un échantillon composé de phases de Winsor (mélange eau salée – AOT – heptane) en équilibre de Winsor III. Le faisceau laser incident se propage de façon ascendante et le rayon au col du faisceau positionné sur l'interface au repos, est* $\omega_0 = 2.99$ µm. *La puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide est reportée sur chaque image. Les déformations observées résultent uniquement de l'action de la pression de radiation optique au niveau de l'interface liquide, cette dernière représentant une discontinuité d'indice de réfraction entre la phase aqueuse et la phase huile.*

de l'action de la pression de radiation optique à basse puissance. Ces formes assez basiques se rapprochent de celles observées par A. Casner lors de ses travaux de thèse [51] sous l'action d'une onde laser continue (Argon ionisé Ar^+ de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 514.5$ nm) focalisée à l'interface d'un échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre (voir annexe A). Ce système fluide particulier, également utilisé dans ce travail, présente (au–delà d'une certaine température) deux phases en équilibre, de concentrations micellaires différentes, diffusants l'onde incidente. La diffusion dans le milieu engendre l'apparition d'une force volumique générant des écoulements permanents en volume comme nous l'avons montré au chapitre 2. Enfin, les contraintes visqueuses exercées par ces écoulements au voisinage de l'interface liquide très molle peuvent également conduire à la déformation de celle–ci. Ainsi, lors des études réalisées par A. Casner, à la fois les effets de la pression de radiation optique et le couplage diffusif en volume participaient à la déformation de l'interface (même si ces derniers effets n'avaient pas été pris en compte car non identifiés à l'époque). Nous reviendrons sur ce système fluide au chapitre 7 où nous évaluerons

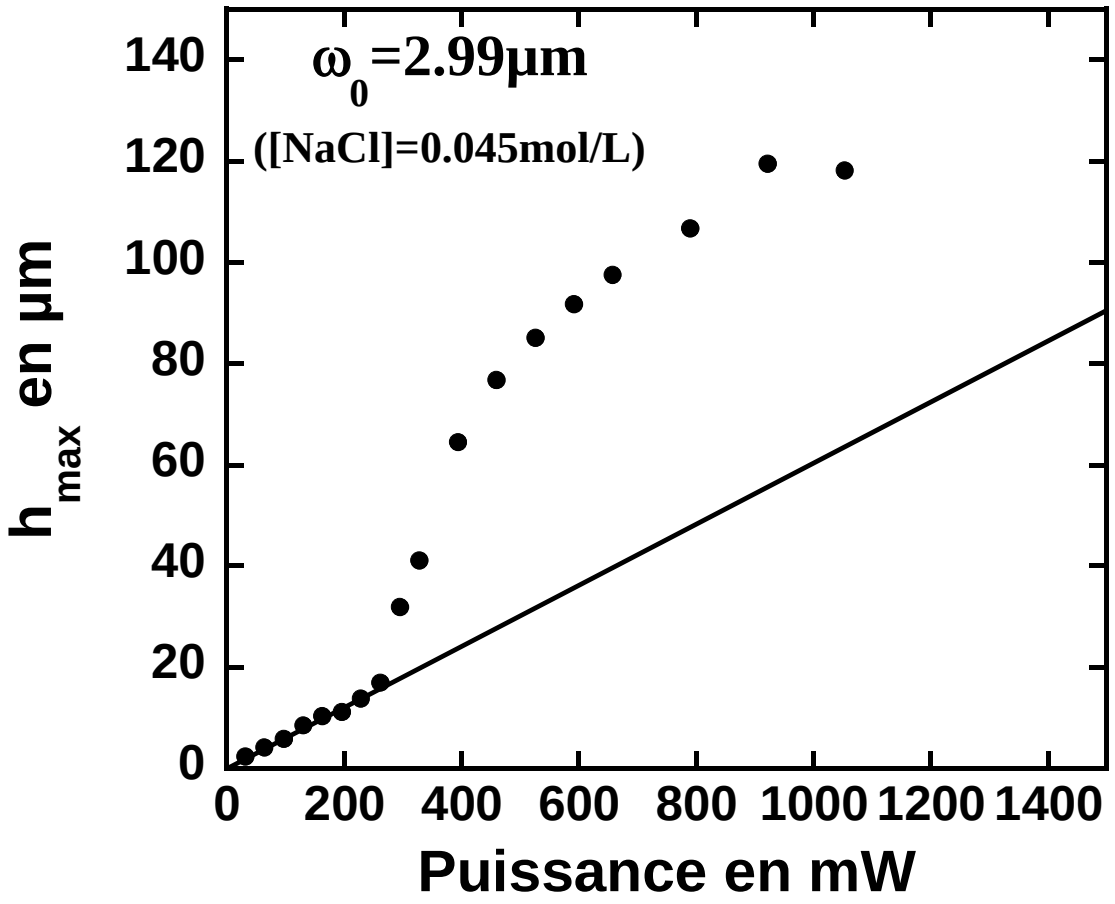


Fig. 4.2 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, en fonction de la puissance laser P (cette évolution correspond aux images présentées figure 4.1). L'échantillon diphasique utilisé est composé d'une phase d'eau salée (de concentration $[NaCl] = 0.045$ mol/L) et d'une phase d'huile issues d'un mélange (eau salée – AOT – heptane) en équilibre de Winsor III. Le faisceau laser incident se propage de façon ascendante et le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 2.99$ µm. Le trait plein correspond à une régression linéaire des points expérimentaux aux plus basses puissances.*

l'influence de la force diffusive lors des déformations et instabilités d'interfaces liquides mises en évidence. À l'aide du système fluide utilisé dans le présent chapitre, nous pouvons ainsi étudier uniquement l'influence des effets dus à la pression de radiation optique en s'affranchissant de tout autre effet.

Lors de ses travaux, A. Casner a donc montré l'existence de ces morphologies d'interfaces liquides sous l'action de la pression de radiation d'une onde laser pour des puissances laser modérées [51]. Ces morphologies sont caractéristiques d'un régime particulier de déformation identifé comme régime linéaire de déformation pour lequel la pente locale de l'interface déformée par rapport à l'interface au repos reste assez faible devant l'unité et la hauteur maximale de déformation se comporte linéairement lorsque P augmente. Nous confirmons ici ce régime linéaire de déformation lorsque seuls les effets relatifs à la pression de radiation optique sont présents. Comme on peut le remarquer sur la figure 4.2, h_{max} se comporte linéairement avec la puissance croissante tant que $P \lesssim 300$ mW, comme en atteste la régression linéaire effectuée sur les points expérimentaux correspondants aux

basses puissances de l'exemple présenté ici.

Lorsque la puissance laser augmente fortement, nous observons un changement brutal de l'évolution de la hauteur maximale de déformation (dans l'exemple présenté figure 4.2, pour $P \gtrsim 300$ mW). En effet, si l'on effectue une corrélation entre le graphique représentant l'évolution de $h_{max}(P)$ (figure 4.2) et les images expérimentales correspondantes présentées figure 4.1, nous voyons que pour ces puissances élevées, des morphologies stables beaucoup plus complexes apparaissent. La complexification et l'amplitude de ces déformations s'accentuent à mesure que P augmente.

Cette complexification des morphologies adoptées par l'interface déformée sous l'action de la pression de radiation d'une onde incidente se propageant de manière ascendante a aussi été observée par A. Casner même si les morphologies étaient quelque peu différentes, faisant apparaître des formes en « tétine ». L'évolution de h_{max} en fonction de P dévie fortement du comportement linéaire observé aux faibles puissances et un régime non–linéaire de déformation est atteint. Une étude approfondie de ces déformations complexes sous l'action cette fois de la pression de radiation d'une onde acoustique focalisée au niveau d'une interface liquide a été réalisé par N. Bertin lors de ses travaux de thèse [32]. Il a réalisé une tentative d'analogie entre les résultats obtenus en acoustique et en optique en invoquant notamment un couplage entre la propagation de l'onde incidente modifiée par la présence de la déformation et l'ajustement de la déformation d'interface à la modification de l'onde incidente [32].

La figure 4.3 représente l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser pour les différents rayons au col du faisceau, ω_0, utilisés au cours de notre étude.

Comme nous venons de l'expliciter, nous retrouvons de façon commune à toutes les évolutions présentées figure 4.3 un comportement linéaire de la hauteur maximale de la déformation en fonction de la puissance croissante lorsque celle–ci est relativement modérée. Au–delà d'une certaine puissance, notée P_{inst}, propre à chaque rayon au col du faisceau, la déformation d'interface devient non–stationnaire (sauf pour le plus grand ω_0 utilisé). D'une part, la déformation d'interface peut exhiber une forme complexe dont l'amplitude fluctue énormément au cours du temps (ce phénomène est observé typiquement pour $\omega_0 = 2.99$ µm et $\omega_0 = 4.85$ µm). La figure 4.4 (a) illustre cette fluctuation temporelle de l'amplitude de la déformation pour $\omega_0 = 2.99$ µm et $P = 1320$ mW. D'autre part, l'interface déformée peut « hésiter » entre deux morphologies différentes : simple bosse de déformation ou forme plus complexe apparentée à une « tétine ». Cette « hésitation » observée pour $\omega_0 = 7.48$ µm est également illustrée par la série d'images expérimentales figure 4.4 (b) issue d'une acquisition dynamique à une cadence de 25 images par seconde. L'instationnarité de l'interface liquide sous l'action d'une onde incidente de puissance relativement élevée n'a par contre pas été observé pour $\omega_0 = 10.31$ µm correspondant au plus grand rayon au col du faisceau utilisé dans nos expériences avec ce système fluide. L'évolution de l'interface déformée demeure néanmoins particulière. Au–delà du régime linéaire de déformation, jusqu'à une puissance de l'ordre de $P \sim 1450$ mW, la hauteur maximale de l'interface déformée sature. Lors de cette évolution, une simple bosse de déformation est adoptée par l'interface liquide et à mesure que la puissance laser augmente, cette bosse de déformation ne s'allonge pas mais son extension radiale augmente et le

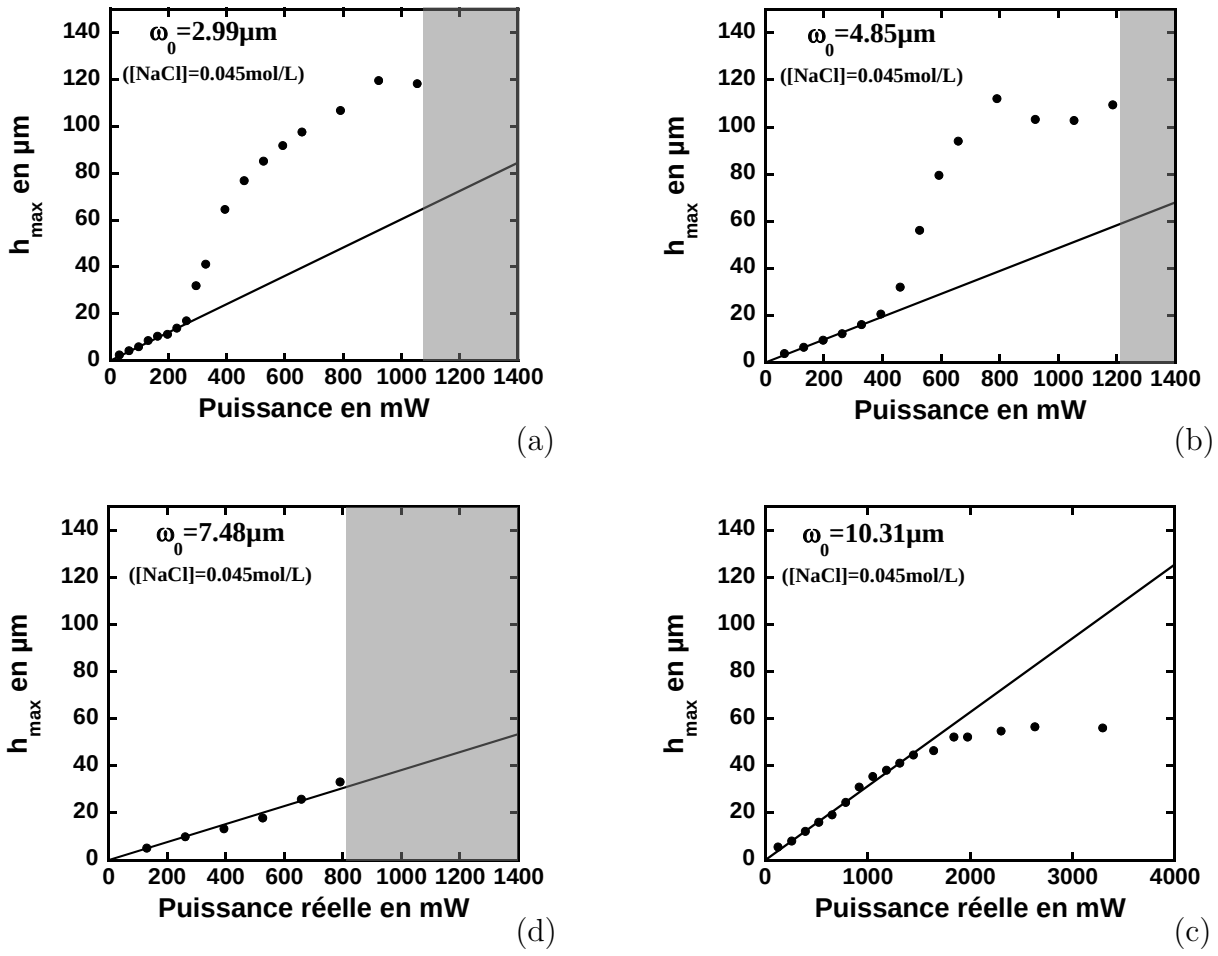


Fig. 4.3 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, h_{max}, en fonction de la puissance laser P pour différentes valeurs de ω_0. L'échantillon diphasique utilisé est composé d'une phase d'eau salée (de concentration $[NaCl] = 0.045$ mol/L) et d'une phase d'huile issues d'un mélange (eau salée – AOT – heptane) en équilibre de Winsor III. Le faisceau laser incident se propage de façon ascendante. Le trait plein sur chaque graphique correspond à une régression linéaire des points expérimentaux aux plus basses puissances. D'autre part, la partie grisée sur tous les graphiques, sauf pour $\omega_0 = 10.31$ µm, représente schématiquement la zone (à partir d'un certaine puissance notée P_{inst}) dans laquelle la déformation d'interface liquide observée est non–stationnaire. (a) $\omega_0 = 2.99$ µm, $P_{inst} = 1182$ mW. (b) $\omega_0 = 4.85$ µm, $P_{inst} = 1320$ mW. (c) $\omega_0 = 7.48$ µm, $P_{inst} = 792$ mW. (d) $\omega_0 = 10.31$ µm. (L'échelle utilisée en ordonnée est identique pour tous les graphiques afin, notamment, de visualiser les différences obtenues au niveau de l'amplitude des déformations liquides engendrées.)*

bout de la déformation se complexifie, comme cela est présenté sur la figure 4.4 (c).

Après avoir effectué un tour d'horizon des différentes morphologies adoptées par l'interface liquide en fonction de la puissance laser et du rayon au col du faisceau, intéressons–nous tout d'abord à la caractérisation du régime linéaire de déformation.

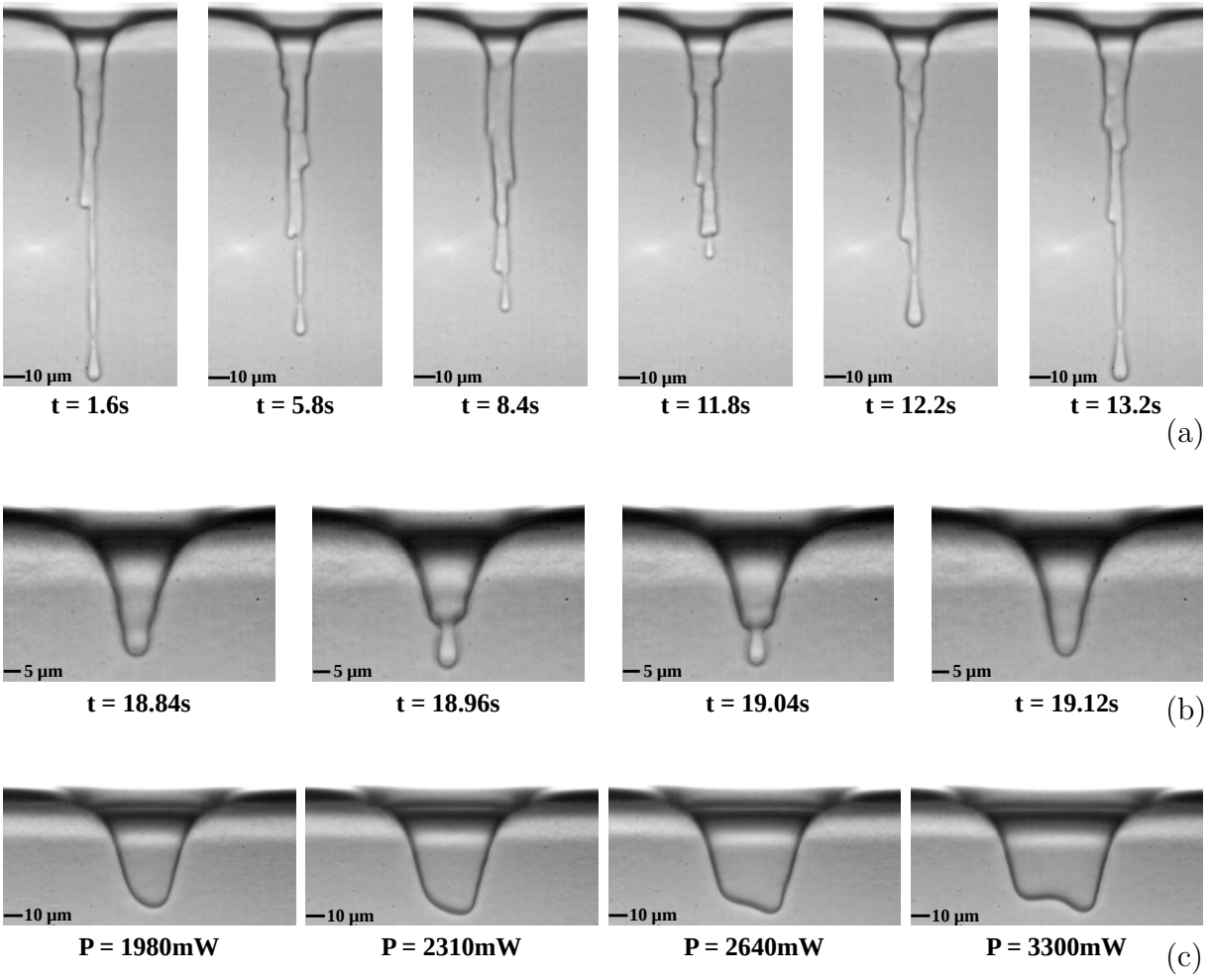


Fig. 4.4 – *(a) Fluctuations de l'amplitude de la forme complexe adoptée par la déformation d'interface liquide lorsque* $P = 1320$ mW $> P_{inst}$. *Le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 2.99$ µm. *(b) Mise en évidence de l'« hésitation » de la déformation d'interface liquide entre la morphologie simple bosse de déformation et une déformation de type « tétine ».* $\omega_0 = 7.48$ µm *et* $P = 924$ mW $> P_{inst}$. *(c) Observation de la saturation de la hauteur maximale de déformation et de l'augmentation de son extension radiale obtenue à forte puissance laser pour* $\omega_0 = 10.31$ µm. *Le faisceau laser se propage depuis la voie basse du dispositif expérimental et intercepte l'interface liquide de manière ascendante.*

4.2.2 Régime linéaire de déformation

La caractéristique commune aux résultats présentés précédemment est l'existence d'un régime linéaire de déformation lorsque la puissance appliquée au niveau de l'interface liquide est relativement modérée. Nous avons regroupé sur la figure 4.5 les résultats obtenus pour les différents ω_0 que nous avons utilisé au cours de nos expériences. Une certaine hiérarchie semble être identifiable.

Si l'on se place à une puissance laser fixe, la hauteur maximale de déformation diminue à mesure que le rayon au col du faisceau augmente.

Le modèle physique développé au cours des travaux de thèse de A. Casner [51], décrivant le régime linéaire de déformation induit par les effets de la pression de radiation

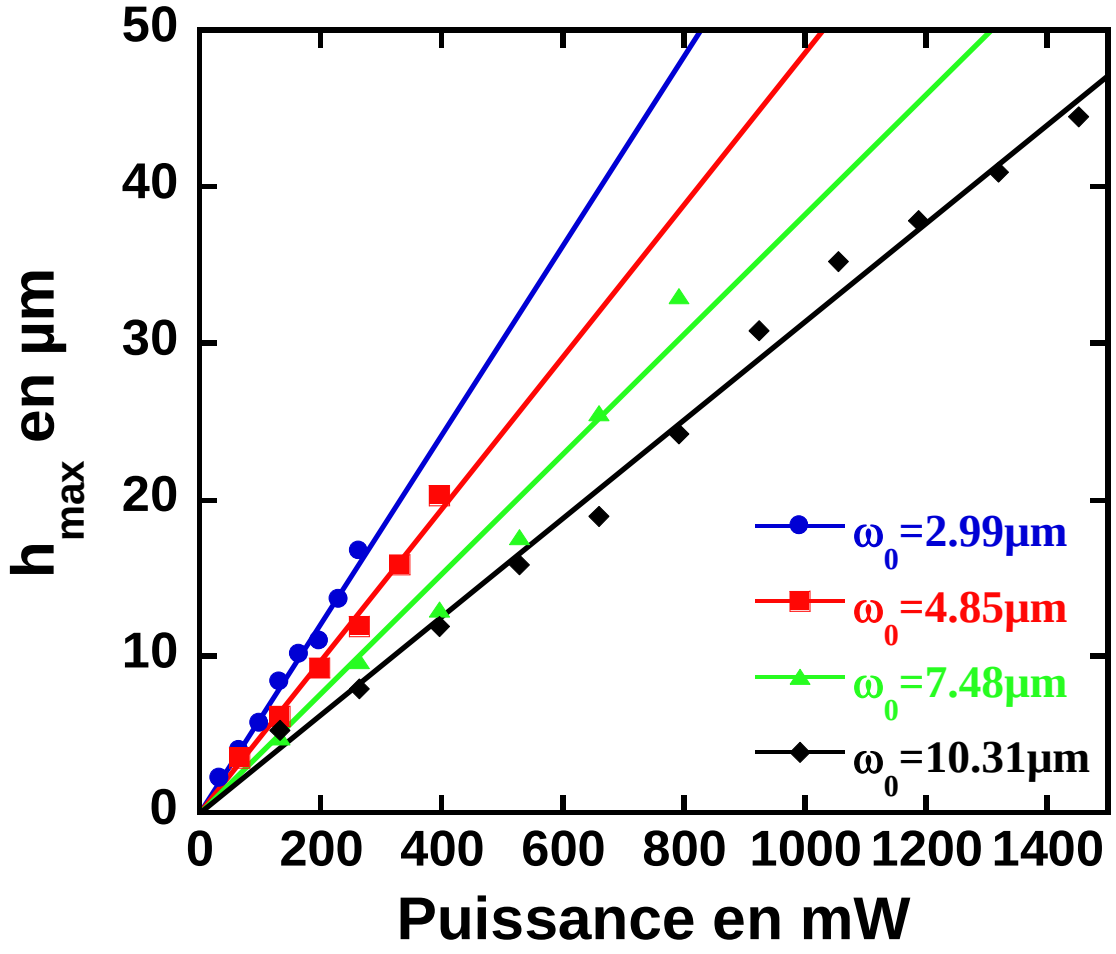


Fig. 4.5 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser dans le régime linéaire de déformation. Les résultats expérimentaux de chaque ω_0 sont représentés et reportés sur le graphique. Les traits pleins correspondent à une régression linéaire effectuée sur les données expérimentales de chaque ω_0. Le faisceau incident se propage de manière ascendante.*

optique, prend en compte cette dépendance particulière vis–à–vis du rayon au col du faisceau. En effet, comme nous l'avons décrit au cours de la section 2.1, l'équation d'équilibre de l'interface soumise uniquement à l'action de la pression de radiation optique, dans le régime linéaire de déformation ($\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}r} \ll 1$), s'écrit :

$$\Delta\rho g h(r) - \sigma \Delta_r h(r) = \frac{n_1}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)\frac{4P}{\pi\omega_0^2}\exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right), \tag{4.1}$$

où $\Delta\rho = (\rho_1 - \rho_2)$ est le constraste de masse volumique entre les deux phases de l'échantillon diphasique, $\Delta_r h(r) \sim \kappa(r)$ avec $\kappa(r)$ la courbure moyenne de la déformation.

La résolution analytique de l'équation 4.1 par l'intermédiaire d'une transformée de Fourier–Bessel nous permet d'obtenir le profil de la déformation stationnaire en fonction de son extension radiale lorsque l'onde incidente se propage depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent (ce qui est notre cas ici où le faisceau est

ascendant) [51] :

$$h(r) = \frac{2n_1}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)\frac{P}{2\pi}\int_0^{+\infty} J_0(kR)kdk\frac{\exp\left(\frac{-\omega_0^2 k^2}{8}\right)}{\Delta\rho g + \sigma k^2}, \tag{4.2}$$

où J_0 est la fonction de Bessel d'ordre zéro.

La hauteur maximale atteinte par la déformation de l'interface liquide correspond à l'altitude en $r = 0$ et vaut [51] :

$$h(r=0) = \frac{2n_1}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)\frac{I}{\Delta\rho g}\frac{\omega_0^2}{8l_c^2}\exp\left(\frac{\omega_0^2}{8l_c^2}\right)E_1\left(\frac{\omega_0^2}{8l_c^2}\right), \tag{4.3}$$

avec I l'intensité du faisceau laser, $l_c = \sqrt{\frac{\sigma}{\Delta\rho g}}$ la longueur capillaire et E_1, la fonction exponentielle intégrale définie comme $\int_0^{+\infty}\frac{\exp(-\mu x)}{x+\beta}dx = \exp(\beta\mu)\,E_1(\beta\mu)$. On peut enfin remarquer que le nombre de Bond, défini comme le rapport des effets gravitationnels aux effets capillaires ($Bo = (\omega_0/l_c)^2$), apparaît tout naturellement dans l'expression 4.3 et on peut donc réécrire cette relation en fonction de Bo, telle que :

$$h(r=0) = \frac{2n_1}{c}\left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2}\right)\frac{I}{\Delta\rho g}\frac{Bo}{8}\exp\left(\frac{Bo}{8}\right)E_1\left(\frac{Bo}{8}\right). \tag{4.4}$$

À l'aide de la relation 4.2, nous avons d'une part ajusté les profils expérimentaux des déformations stationnaires obtenues dans le cadre de ce chapitre expérimental. Quelques exemples sont regroupés sur la figure 4.6 pour $\omega_0 = 2.99$ µm et $\omega_0 = 4.85$ µm à différentes puissances laser appartenant au régime linéaire de déformation identifié précédemment.

L'ajustement fructueux des profils expérimentaux par le calcul analytique de la relation 4.2 permet d'en déduire la tension interfaciale, comme nous le verrons lors de la section suivante et permet de valider le modèle physique, développé au cours de la thèse de A. Casner [51]. Afin de parfaire cette validation, nous avons réalisé la modélisation de l'évolution de la hauteur maximale de déformation (en $r = 0$, relation 4.4) en fonction de P, toujours dans le régime linéaire, et nous l'avons confronté aux résultats expérimentaux (figure 4.7).

Sans surprise, la modélisation de l'évolution de $h_{max}(P)$ caluclée à partir de l'expression 4.4 est en très bon accord avec les résultats expérimentaux présentés dans cette section où uniquement les effets de la pression de radiation optique participent à la déformation de l'interface liquide.

À l'aide des résultats présentés ci–dessus, nous apportons donc une réponse quantitative au modèle physique développé par A. Casner [51] dans le régime linéaire de déformation, lorsque le système fluide utilisé ne diffuse pas la lumière incidente, la pression de radiation étant la seule contrainte liée à la déformation de l'interface liquide de l'échantillon. Nous allons montrer également, dans la section suivante, que cette validation peut nous conduire à la détermination de tensions interfaciales (toutes choses étant connues par ailleurs) dans le domaine difficile des très faibles tensions.

Au–delà de ce régime linéaire de déformation, la complexification des morphologies adoptées par l'interface liquide déformée n'est plus décrite par ce modèle physique car la courbure de l'interface ne peut plus être approximée au premier ordre par son expression

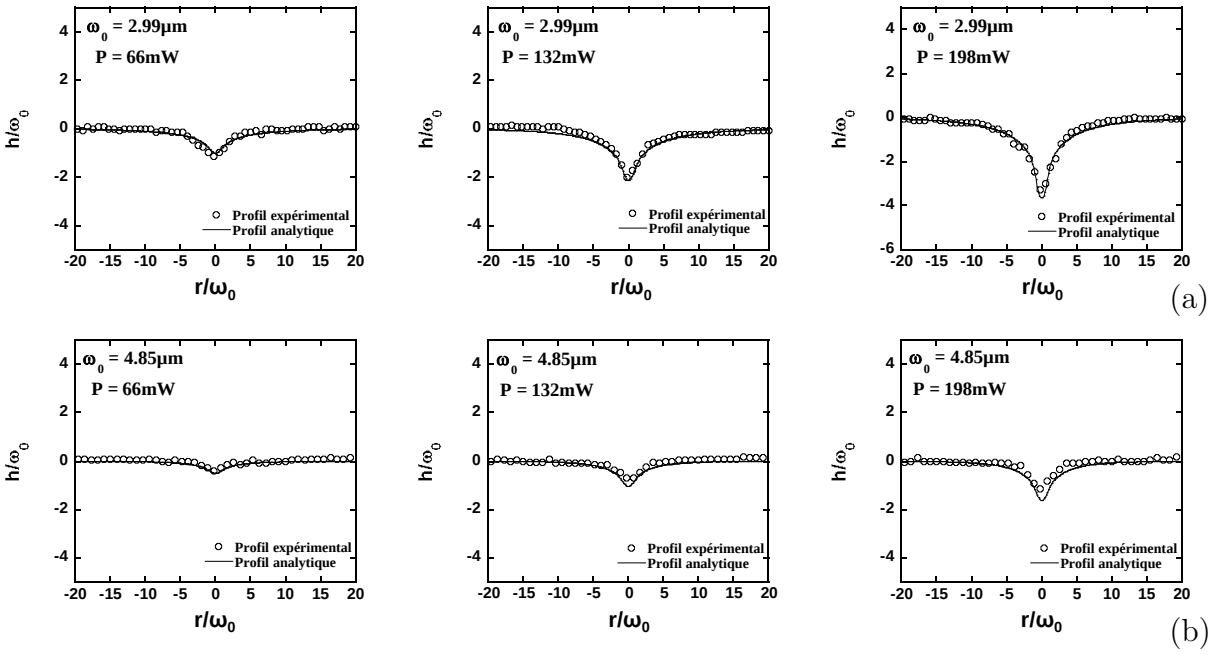


Fig. 4.6 – *Ajustements des profils expérimentaux des déformations stationnaires dans le régime linéaire de déformation par la relation analytique 4.2. Le faisceau incident se propage de manière ascendante et les rayons au col du faisceau représentés sont : (a)* $\omega_0 = 2.99$ µm *et (b)* $\omega_0 = 4.85$ µm. *(Les différentes puissances laser sont reportées sur chaque graphique et les profils sont adimensionnés à* ω_0*.)*

linéaire $\kappa(r) \sim \Delta_r h(r)$. Les fortes courbures de l'interface liquide déformée pour des puissances laser élevées nécessitent normalement la prise en compte de l'expression complète de la courbure de l'interface telle que :

$$\kappa(r) = \frac{1}{r}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}r}\left(\frac{rh'(r)}{\sqrt{1+h'(r)^2}}\right), \tag{4.5}$$

où $h'(r)$ est la dérivée première de la hauteur de déformation par rapport à l'extension radiale r, mais également un couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation au–delà du présent propos.

4.2.3 Méthode sans contact permettant la détermination de tensions interfaciales faibles

Lors de cette section, nous allons présenter une application directe du modèle physique présenté précédemment pour le régime linéaire de déformation consistant en une mesure sans contact de très faibles tensions interfaciales. Le modèle physique proposé par A. Casner dans sa thèse [51] prend en compte différentes propriétés du milieu telles que le contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides, le contraste de masse volumique ou encore la tension interfaciale. En effet, l'expression régissant le profil de déformation d'interface liquide stationnaire induite (formule 4.2) et *a fortiori* la hauteur maximale de déformation sur l'axe (expression 4.3) font apparaître la longueur capillaire,

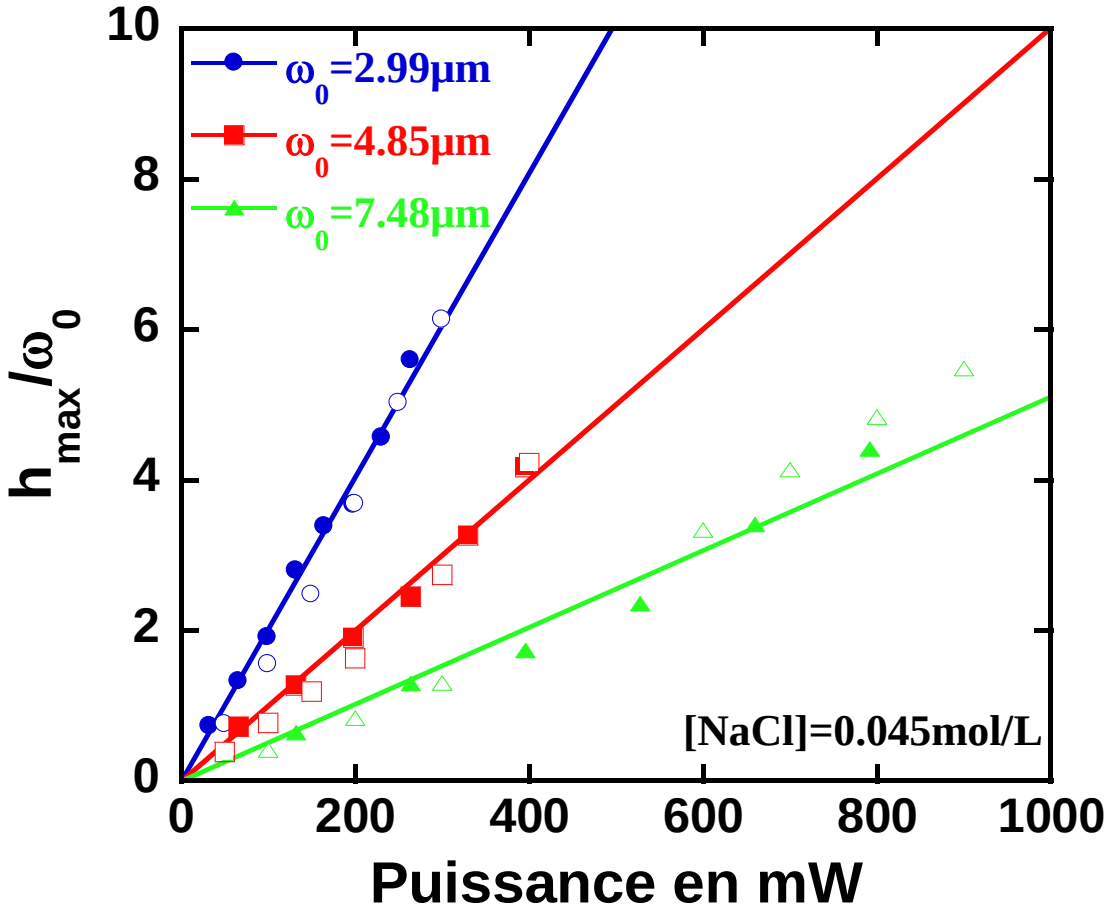


Fig. 4.7 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation normalisée par ω_0 en fonction de la puissance. Comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux issus du calcul analytique de la relation 4.4. Le faisceau incident se propage de façon ascendante et ne sont modélisées que les données expérimentales appartenant au régime linéaire de déformation. Les symboles pleins représentent les résultats expérimentaux alors que les symboles creux correspondent aux résultats calculés avec 4.4.*

elle–même étant reliée à la tension interfaciale σ.

Ainsi, à la fois par l'intermédiaire d'ajustements de profils stationnaires expérimentaux par la formule 4.2 et par l'ajustement de partie linéaire de $h_{max}(P)$ par l'expression 4.3, nous sommes en mesure d'en déduire la tension interfaciale, toute autre donnée étant connue par ailleurs. Nous avons donc réalisé cette mesure pour le système fluide présenté dans ce chapitre. La figure 4.8 présente quelques exemples d'ajustements de profils expérimentaux de déformations d'interfaces liquides stationnaires dans le régime linéaire, pour différents ω_0.

Le seul paramètre ajustable étant la tension interfaciale σ, nous le faisons varier de manière à trouver la valeur de σ pour laquelle l'ajustement des profils expérimentaux est le plus satisfaisant, pour différents ω_0 et différentes puissances (en restant toujours dans le régime linéaire de déformation). Dans l'exemple présenté figure 4.8, cette méthode nous donne : $\sigma = 1.4.10^{-6}$ N/m.

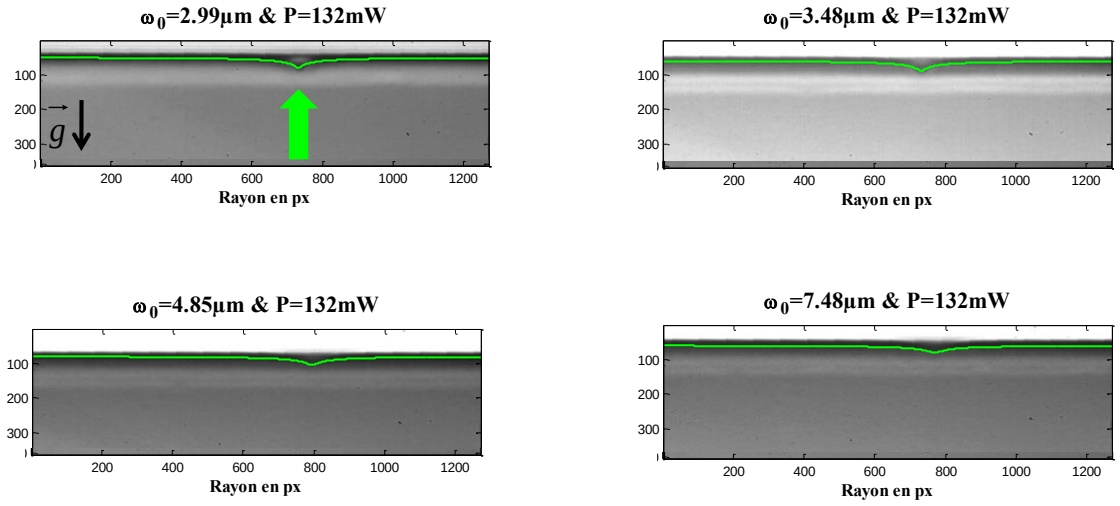


Fig. 4.8 – *Ajustements de profils expérimentaux de déformations stationnaires dans le régime linéaire par l'expression 4.2 afin de déterminer la tension interfaciale. Le système fluide est transparent, constitué d'une phase aqueuse ($[NaCl] = 0.045$ mol/L) et d'une phase d'heptane. L'onde incidente, de puissance $P = 132$ mW, se propage de façon ascendante.*

Afin d'appuyer la détermination précédente, nous avons réalisé cette mesure à partir de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser, également pour différents ω_0. Toujours dans le cadre du régime linéaire de déformation, la pente de la régression linéaire obtenue nous conduit directement à la détermination de la tension interfaciale (*cf.* formule 4.3). Dans ce cas, la tension interfaciale obtenue pour un rayon au col du faisceau peut différer légèrement de celle obtenue pour un autre ω_0. Il convient donc de déterminer une tension interfaciale moyenne.

Pour ce faire, nous calculons le nombre de Bond ($Bo = (\omega_0/l_c)^2$) pour chaque ω_0, correspondant à une tension interfaciale différente. Ensuite nous traçons l'évolution du nombre de Bond en fonction du carré de ω_0. Ceci est représenté figure 4.9 correspondant à l'exemple présenté plus haut (figure 4.8).

La pente de la régression linéaire effectuée sur les résultats expérimentaux (figure 4.9) est directement proportionnelle à l'inverse du carré de la longueur capillaire telle que :

$$\frac{\mathrm{d}Bo}{\mathrm{d}\omega_0^2} = \frac{1}{l_c^2} = \frac{\Delta\rho g}{\sigma}, \tag{4.6}$$

où $\Delta\rho$ est le contraste de masse volumique entre l'eau salée et l'heptane.

Après application numérique, on trouve :

$$\sigma = 1.38.10^{-6} \text{ N/m}, \tag{4.7}$$

ce qui est bien en accord avec la tension interfaciale déduite de l'ajustement des profils expérimentaux présenté plus haut.

Nous venons ainsi de prouver la pertinence de notre modèle physique, dans le régime linéaire de déformation, pour la détermination sans contact de très faibles tensions interfaciales (de l'ordre de 10^{-6} N/m).

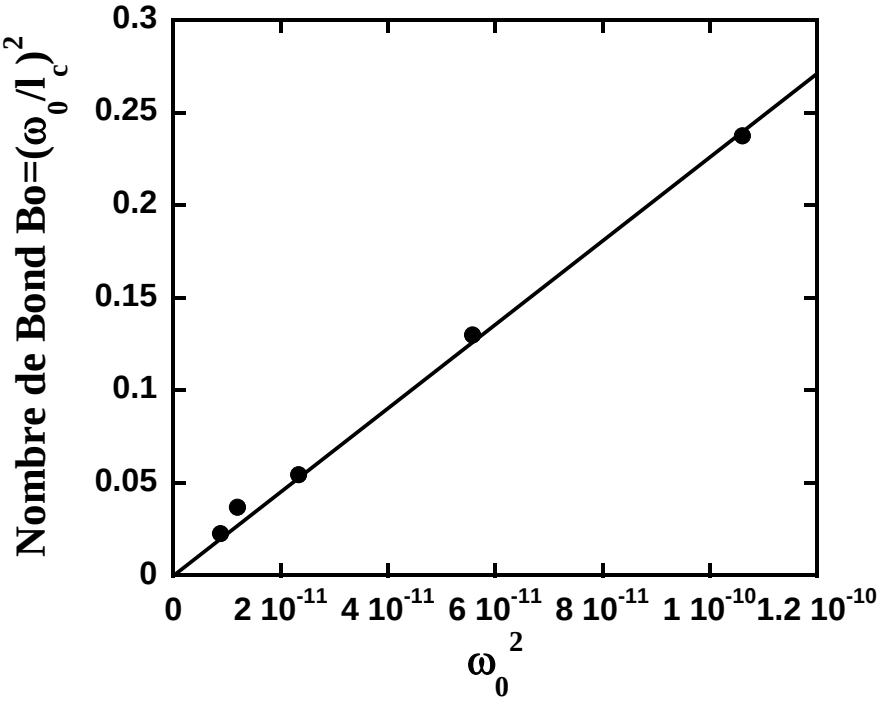


Fig. 4.9 – *Évolution du nombre de Bond optique en fonction de ω_0^2. La pente de la régression linéaire effectuée sur les résultats expérimentaux nous permet d'en déduire la tension interfaciale moyenne de l'échantillon fluide transparent utilisé.*

4.2.4 Régime non–linéaire de déformation : comparaison expérience – simulation numérique

Comme nous l'avons étudié précédemment, au–delà du régime linéaire de déformation, le comportement de la hauteur maximale de la déformation d'interface induite dévie en un régime non–linéaire de déformation. Tout comme pour le régime linéaire de déformation, nous avons effectué des simulations numériques au–delà de ce régime afin de décrire les déformations d'interfaces engendrées à plus forte puissance laser.

La figure 4.10 présente une comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques obtenus lors de l'évolution de $h_{max}(P)$. Différents rayons au col du faisceau sont utilisés, les symboles représentent les résultats expérimentaux et les traits pleins, les résultats issus de la simulation numérique.

D'après la figure 4.10, nous confirmons la description quantitative du régime linéaire de déformation. En revanche, au–delà de ce régime, les comportements issus de la simulation numérique diffèrent fortement de ceux observés expérimentalement (au moins pour les deux plus petits ω_0). Cette différence est notamment flagrante en terme d'amplitude des objets liquides créés.

Rappelons que la modélisation numérique utilisée ici est basée sur une résolution par méthode des différences finies de l'équation 2.29. Les paramètres physiques pris en compte lors de la simulation sont donc le contraste d'indice de réfraction, le contraste de masse volumique, la tension interfaciale, le rayon au col du faisceau et la puissance laser incidente.

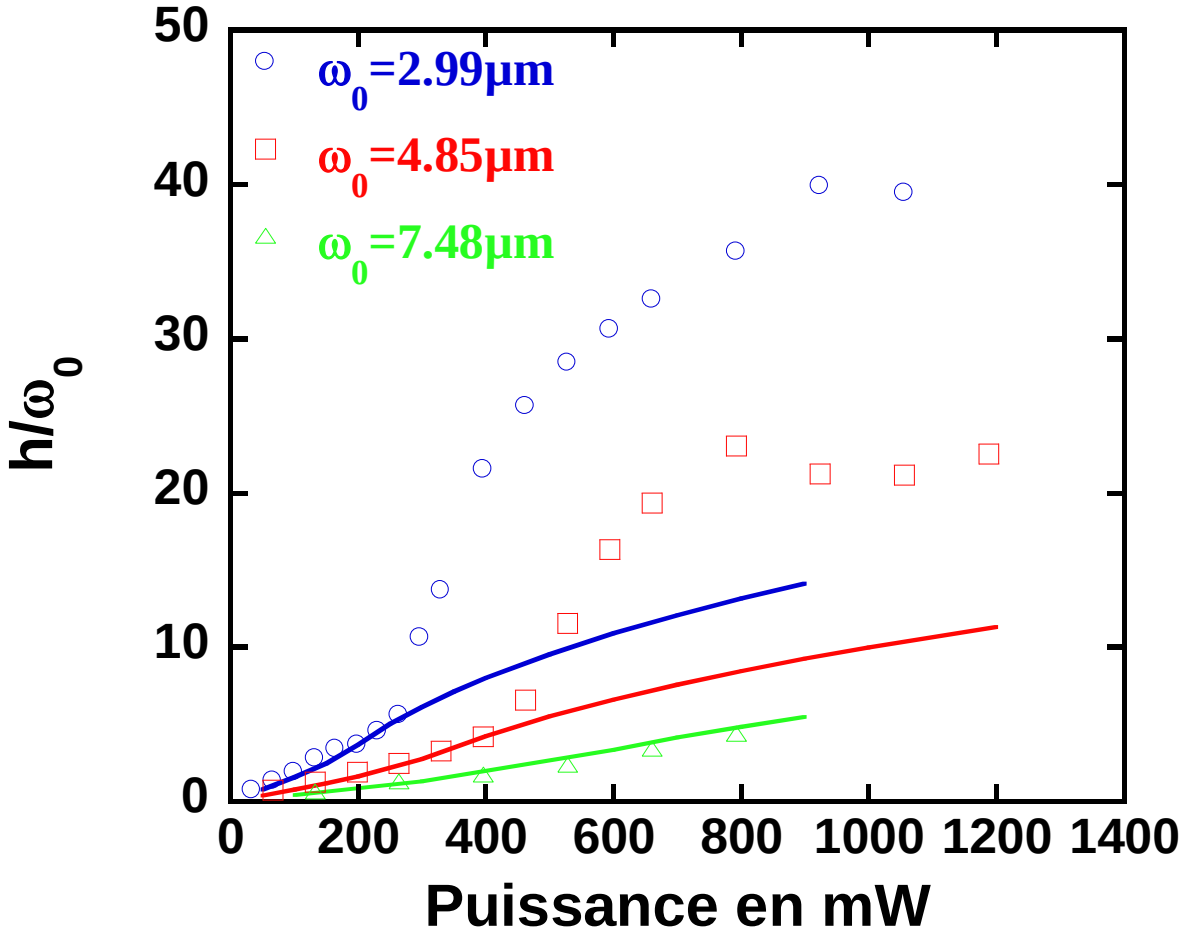


Fig. 4.10 – *Comparaison entre résultats expérimentaux et numériques pour l'évolution de la hauteur maximale de déformation, normalisée à ω_0, en fonction de la puissance laser, depuis le régime linéaire de déformation et au–delà. Les différents ω_0 utilisés sont reportés sur le graphique. Les symboles correspondent aux résultats expérimentaux et les traits pleins aux résultats numériques. L'onde incidente se propage de manière ascendante.*

Ainsi, la différence d'amplitude observée est probablement une signature directe d'un phénomène déjà évoqué plus avant, à savoir le couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface liquide induite, cette dernière agissant à son tour sur la propagation de l'onde. Ce couplage pourrait ainsi provoquer un allongement des objets liquides créés ainsi qu'une complexification de ceux–ci comme cela a été présenté précédemment.

4.2.5 Bilan

Au cours de cette section, nous avons présenté différents résultats obtenus dans le cadre de la propagation d'une onde incidente ascendante interceptant l'interface liquide issue de la mise en coexistence d'une phase d'eau salée et d'une phase d'heptane. Ces deux phases sont obtenues suite à la réalisation d'un mélange d'eau salée, d'AOT et d'heptane en équilibre de Winsor III, exhibant de très faibles tensions interfaciales (voir annexe A). Ces deux phases liquides en équilibre ne diffusent pas l'onde incidente. En revanche, le

contraste d'indice de réfraction existant entre les deux phases de l'échantillon diphasique implique l'action de la pression de radiation optique lorsque l'onde incidente intercepte l'interface liquide, cette dernière représentant une discontinuité d'indice de réfraction. Dans cette section, la propagation de l'onde incidente étant dirigée vers le haut, c'est–à–dire depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent. Comme nous l'avons étudié section 2.1, la déformation d'interface liquide résultant de l'action de la pression de radiation optique est toujours dirigée depuis le milieu d'indice de réfraction le plus grand vers celui d'indice optique le plus faible. Les déformations observées sont donc dirigées dans le sens opposé au sens de propagation de l'onde excitatrice.

Nous avons tout d'abord effectué un tour d'horizon des différentes morphologies, plus ou moins complexes, adoptées par l'interface liquide déformée en fonction de la puissance laser appliquée au niveau de l'interface. Nous avons vu que pour des puissances laser relativement modérées, la déformation d'interface est apparentée à une « simple bosse » de déformation dont la hauteur maximale se comporte linéairement en fonction de la puissance croissante. C'est le régime linéaire de déformation que nous avons caractérisé, notamment par l'intermédiaire d'un modèle physique décrivant de manière analytique les faibles déformations observées [51]. L'ajustement à la fois des profils de déformations stationnaires et des évolutions des hauteurs de déformations nous a permis d'illustrer ce modèle physique dans le régime linéaire de déformation et de montrer sa pertinence dans la mesure sans contact de faibles tensions interfaciales.

Au–delà de ce régime linéaire de déformation, la complexification des déformations d'interfaces obtenues à forte puissance ne nous permet plus d'utiliser ce modèle physique. En revanche, nous avons décrit qualitativement les différentes morphologies obtenues à forte puissance et les différences observées lors d'une variation du rayon au col du faisceau, ω_0. Pour certains d'entre eux, il apparaît à très forte puissance une instationnarité de la déformation d'interface. Nous pouvons observer soit une importante fluctuation de l'amplitude de la déformation obtenue, ou alors l'« hésitation » de la déformation d'interface liquide entre deux morphologies distinctes : « simple bosse » de déformation ou « tétine liquide ».

Dans la section suivante, nous allons adopter une configuration expérimentale différente où l'onde incidente se propagera de manière descendante. L'interface liquide sera donc interceptée depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent.

4.3 Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (faisceau laser descendant)

Au cours de cette nouvelle section, nous allons présenter les différents résultats expérimentaux obtenus lorsque le montage optique est configuré de telle manière que l'onde incidente intercepte l'interface liquide de l'échantillon diphasique transparent de façon descendante. L'onde excitatrice se propage donc depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent. Ainsi, comme nous l'avons vu au chapitre 2, la déformation d'interface due à l'action de la pression de radiation de l'onde incidente au niveau de l'interface liquide sera dirigée dans le sens de propagation de l'onde incidente.

De nombreux travaux ont été réalisés par le passé dans cette configuration expérimentale à commencer par ceux de A. Casner au cours de sa thèse [51, 63, 81–83]. Ces travaux, concernant l'interaction d'une onde électromagnétique continue au niveau d'une interface liquide issue d'un système composé de phases micellaires de microémulsion (qui sera étudié expérimentalement dans cette thèse au chapitre 7) exhibant à la fois les contraintes exercées par la pression de radiation optique et les effets relatifs à la force diffusive, ont permis de mettre en évidence l'existence d'une instabilité d'interface pour une puissance laser suffisante. En effet, il a été montré que l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser comporte différents régimes de déformations. Suite, à nouveau, à un régime linéaire de déformation où la hauteur maximale de déformation se comporte linéairement avec P, h_{max} dévie de ce comportement linéaire et devient non–linéaire jusqu'à un certain seuil en puissance au–delà duquel elle s'allonge brutalement. L'interface liquide se déstabilise et forme un jet liquide émettant des gouttes dans le sens de propagation de l'onde incidente. A. Casner avait avancé l'hypothèse que cette instabilité de jet résultait d'un effet optique lié à la réflexion totale de l'onde incidente dans la déformation d'interface induite. Cependant, comme nous le verrons plus avant, l'instabilité se produit avant que cette réflexion totale ne soit atteinte. On pourrait donc penser que l'origine de l'instabilité observée est plutôt hydrodynamique, ou un mélange des deux effets. Nous proposons ici d'étudier la question dans le cas d'un système non–diffusant afin de s'affranchir totalement des effets de la force diffusive.

Nous commencerons par étudier l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance P afin de décrire les différents régimes de déformations en absence de force diffusive. Puis nous réponderons à la question : en absence de force diffusive, l'instabilité d'interface liquide, dans cette configuration expérimentale, est–elle toujours observée ?

4.3.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser

Nous reportons sur la figure 4.11 les différentes morphologies de déformations d'interfaces liquides lorsque la puissance laser augmente progressivement.

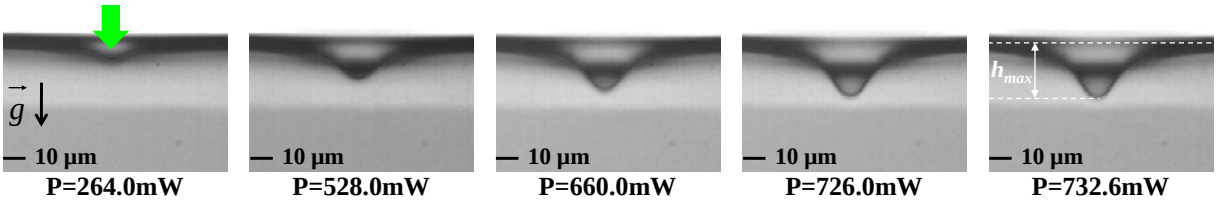


Fig. 4.11 – *Évolution typique de la morphologie adoptée par l'interface liquide déformée en fonction de la puissance laser croissante. Le faisceau incident, de rayon au col du faisceau* $\omega_0 = 7.48$ µm, *se propage de façon descendante. Les différentes puissances laser sont reportées sur chaque image. La dernière image, à droite, correspond à la déformation d'interface stationnaire obtenue au seuil d'instabilité.*

Comme cela est représenté schématiquement sur l'une des images expérimentales figure 4.11, la hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, correspond à l'altitude maximale atteinte par la déformation d'interface liquide par rapport à l'interface au repos (*i.e.*

en absence de toute excitation). Lors de ce scénario, on observe la conservation d'une morphologie de type « simple bosse » de déformation qui tend à s'allonger légèrement à mesure que P augmente. L'évolution correspondante de la hauteur maximale de déformation est donnée par la figure 4.12 (a) pour $\omega_0 = 7.48$ µm.

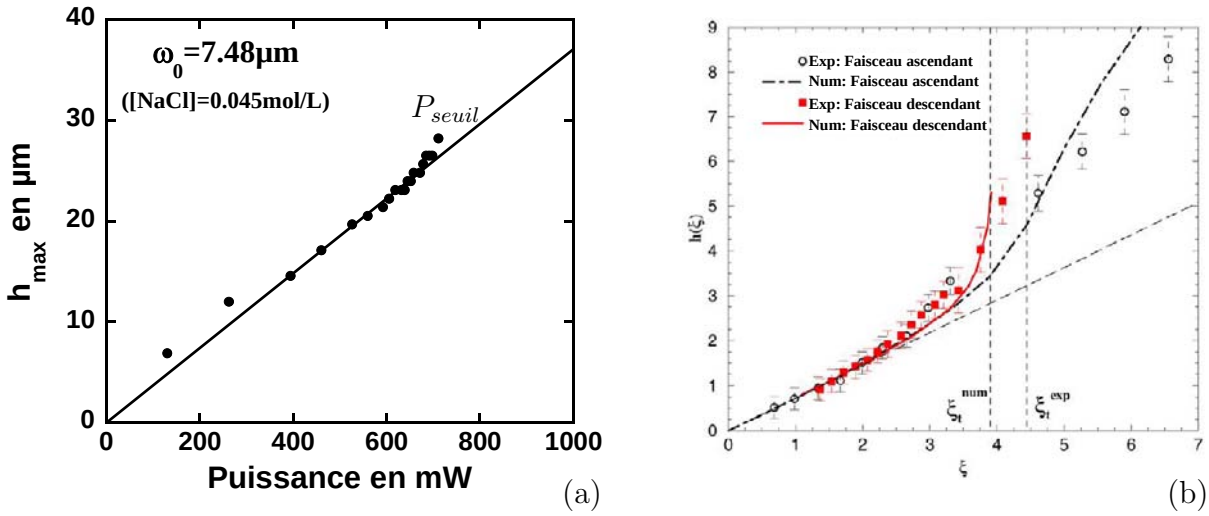


Fig. 4.12 – *(a) Évolution de la hauteur maximale de déformation, h_{max}, en fonction de la puissance P correspondante aux images expérimentales présentées figure 4.11. Le faisceau se propage depuis la voie haute et le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 7.48$ µm. Le trait plein représente la régression linéaire effectuée sur les données expérimentales à basse puissance laser. (b) Étude numérique de l'évolution de la hauteur maximale de déformation normalisée à ω_0 en fonction de $\xi = \frac{4P}{\pi c \omega_0 \sigma} \frac{n_1(n_2-n_1)}{(n_1+n_2)}$ représentant le rapport des effets de la pression de radiation optique aux effets capillaires [63]. Les deux sens de propagation sont représentés pour un échantillon critique thermalisé à $T - T_C = 3.5$ K (où T est la température de l'échantillon et T_C sa température critique) et $\omega_0 = 5.3$ µm.*

À l'aide de la courbe présentée figure 4.12 (a), nous confirmons le comportement linéaire de h_{max} en fonction de P lorsque celle–ci reste modérée, compte tenu de l'invariance en incidence dans ce régime [51]. Dans l'exemple présenté ici (figures 4.11 et 4.12 (a)), lorsque la puissance augmente fortement, l'évolution de la hauteur maximale de déformation fini par dévier du comportement linéaire puis diverge assez brutalement pour une puissance laser de $P = 732.6$ mW apparentée à la puissance seuil d'instabilité.

Ce type de comportement a été étudié numériquement pour un système fluide composé de phases micellaires de microémulsion (*cf.* annexe A.2) par l'intermédiaire d'un code développé par H. Chraïbi, au sein de notre équipe. La figure 4.12 (b) est issue de [63] où l'étude numérique de l'évolution de la hauteur maximale de déformation a été effectuée en absence de force diffusive, la pression de radiation étant supposée être la seule contrainte associée à l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide. L'évolution de la hauteur maximale est adimensionnée à ω_0 et est représentée en fonction du paramètre ξ sans dimension directement proportionnel à la puissance laser tel que [63] :

$$\xi = \frac{4P}{\pi c \omega_0 \sigma} \frac{n_1 (n_2 - n_1)}{(n_1 + n_2)}, \tag{4.8}$$

où n_1 (*resp.* n_2) est l'indice de réfraction de la phase 1 (*resp.* 2) et σ la tension interfaciale. Ce nombre sans dimension représente le rapport entre la pression de radiation optique à incidence normale et la pression de Laplace, toutes deux définies section 2.1. Sur la figure 4.12 (b), sont comparées simulations et expériences selon les deux sens de propagation (ascendante et descendante) pour un échantillon critique thermalisé à $T - T_C = 3.5$ K (où T est la température de l'échantillon et T_C sa température critique) et le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 5.3$ µm. Si l'on considère uniquement les résultats présentés pour une propagation descendante (symboles carrés pour l'expérience et trait plein pour la simulation sur la figure 4.12 (b)), le régime linéaire de déformation est bien modélisé ainsi que la déviation de celui–ci lorsque la puissance laser augmente. Enfin, le caractère divergent du comportement de la hauteur de déformation traduit l'existence de l'instabilité d'interface observée lors des expériences réalisées par A. Casner pour ce système fluide [51] (les puissances seuil expérimentale et modélisée étant légèrement différentes). La comparaison effectuée ici entre le graphique de la figure 4.12 (a) et celui de la figure 4.12 (b) est purement qualitative du fait des différents systèmes fluides utilisés. Néanmoins, la simulation numérique (figure 4.12 (b)) est réalisée en absence de force diffusive et permet de confirmer l'observation des différents régimes de déformations mis en évidence à l'aide d'un système fluide transparent (figure 4.12 (a)).

Ainsi, comme cela a été observé et modélisé par le passé sur un système diffusant la lumière incidente, au–delà d'une certaine puissance appelée puissance seuil d'instabilité, l'interface d'un système fluide non–diffusant se déstabilise et un objet liquide de grande amplitude est créé. Cette instabilité d'interface est brutale, comme en témoigne la figure 4.13 où sont représentées en parallèle les images expérimentales de l'interface déformée lorsque $P = P_{seuil} = 732.6$ mW et lorsque $P = P_{seuil} + \varepsilon = 739.2$ mW (où $\varepsilon = 6.6$ mW et correspond à la précision de base à laquelle nous avons accès avec notre dispositif expérimental).

Le brutal changement de morphologie de l'interface déformée lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface passe de P_{seuil} à $P_{seuil} + \varepsilon$ est flagrant à l'aide de la figure 4.13. Lorsque le seuil en puissance est franchi, l'interface se déstabilise et nous observons l'apparition d'un objet liquide très allongé n'émettant pas de goutte et ne gonflant pas dans le temps, contrairement aux objets observés par A. Casner au–delà du seuil d'instabilité. En effet, les objets liquides observés à l'époque étaient également de grande amplitude mais ont été identifiés comme des jets liquides, car une émission de gouttes en leur bout était observée. La production régulière de gouttes en bout de jets était significative de la présence d'un écoulement dans le sens de propagation de l'onde incidente [67]. Ainsi, l'absence de diffusion entraîne l'absence d'émission de goutte dans le système fluide transparent utilisé. Les objets liquides créés ici, au–delà du seuil d'instabilité, sont donc qualifiés d'« aiguilles liquides ».

4.3.2 Caractérisation du seuil d'instabilité

Lors de ce paragraphe nous allons plus particulièrement nous intéresser à la caractérisation du seuil de l'instabilité mise en évidence précédemment. Le seul paramètre ajustable de l'onde excitatrice étant le rayon au col du faisceau ω_0, nous l'avons fait varier afin d'étudier le comportement de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ce paramètre.

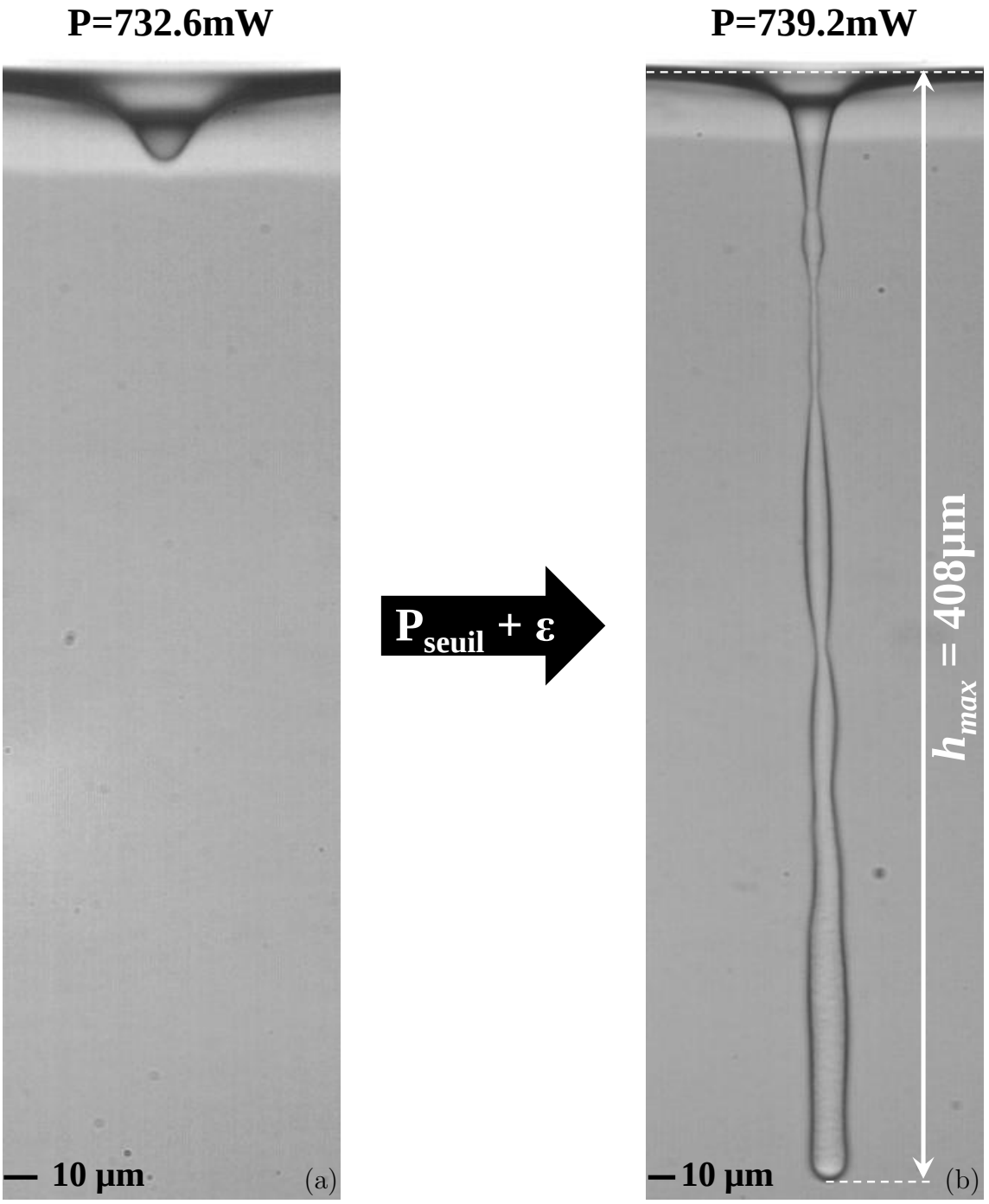


Fig. 4.13 – *(a) Morphologie adoptée par l'interface liquide au seuil d'instabilité* P_{seuil} = 732.6 mW. *(b) Déstabilisation de l'interface en « aiguille liquide » lorsque* $P = P_{seuil} + \varepsilon$ = 739.2 mW *(où* ε = 6.6 mW*). Le faisceau incident se propage de façon descendante et le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm.

Évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau utilisé

Lors de ses travaux de thèse, A. Casner [51] avait notamment mis en évidence un comportement linéaire de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ω_0. Maintenant

que nous venons de prouver l'existence de cette instabilité dans un système fluide non–diffusant, il est légitime de s'interroger sur la similitude (ou non) du comportement du seuil de cette instabilité entre nos résultats et ceux de A. Casner.

La figure 4.14 regroupe les résultats décrivant l'évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ω_0 pour notre système fluide.

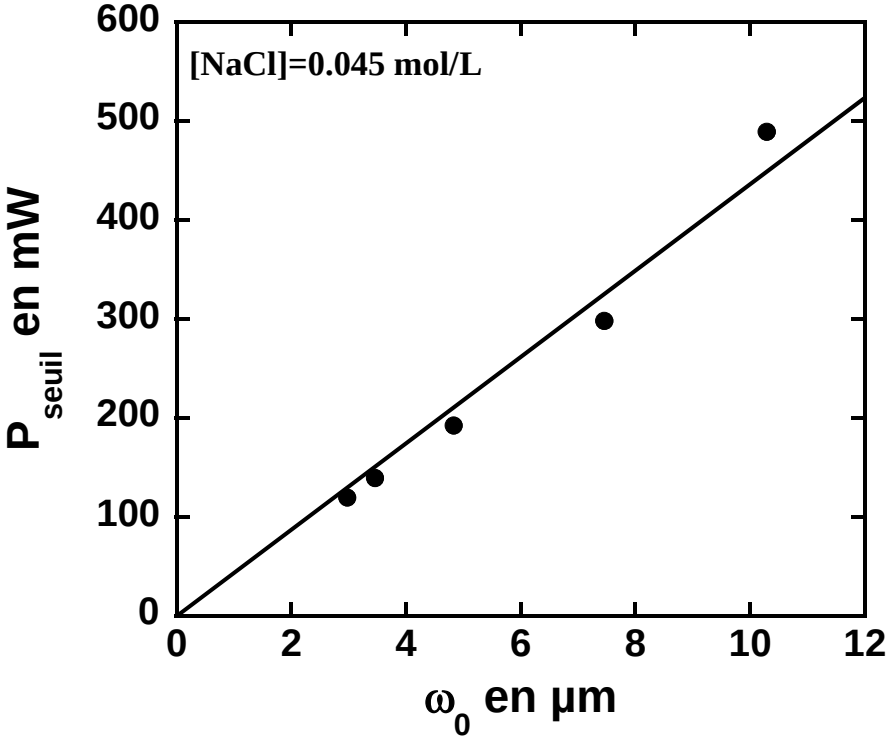


Fig. 4.14 – *Évolution de la puissance seuil d'instabilité, notée P_{seuil}, en fonction de ω_0. L'onde incidente se propage de façon descendante. Le trait plein représente l'ajustement des résultats expérimentaux par une régression linéaire.*

Comme l'atteste l'ajustement des résultats expérimentaux de la figure 4.14 par une régression linéaire (en trait plein sur cette figure), la puissance seuil d'instabilité se comporte bien linéairement lorsque le rayon au col du faisceau croît. Le comportement déduit des travaux de A. Casner est donc vérifié avec un système fluide transparent.

Comportement de l'angle maximal d'incidence, de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide, au seuil d'instabilité

Afin de compléter cette étude, nous avons mesuré l'angle maximal d'incidence que réalise l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide au seuil d'instabilité. En effet, l'hypothèse avait été émise par le passé [51] que si l'onde incidente subissait la réflexion totale, il y aurait accumulation d'énergie vers le bout de la déformation pouvant conduire à la déstabilisation de celle–ci. Plus récemment R. Wunenburger *et al.* [82] ont également procédé à cette étude à l'aide d'un système critique composé de phases micellaires de microémulsion diffusant la lumière incidente (voir annexe A.2). Leurs travaux ont montré que pour ce système fluide diffusant, l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au seuil d'instabilité, noté $\theta_{i\ max}$ était inférieur à la réflexion totale. Ainsi leur conclusion

consistait à révéler que la réflexion totale n'est pas le « moteur » de l'instabilité mais qu'il s'agit d'un mécanisme plus complexe.

Par conséquent, nous avons réalisé également cette étude à l'aide de notre système fluide transparent, où uniquement les effets de la pression de radiation optique participent à la déformation d'interface. Nous avons comparé les résultats obtenus pour les différents rayons au col du faisceau par rapport à l'angle à la réflexion totale pour ce système, défini comme :

$$\theta_{RT} = \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2}\right), \tag{4.9}$$

avec n_1 (*resp.* n_2), l'indice de réfraction de la phase 1 (*resp.* 2), tel que : $n_1 = n_{Eau} = 1.330$ et $n_2 = n_{Heptane} = 1.385$ (nous avons négligé l'influence du sel dans la valeur de l'indice de réfraction de la phase aqueuse).

Après application numérique :

$$\theta_{RT} = 73.8\ ^\circ. \tag{4.10}$$

La mesure de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide consiste tout d'abord à détecter le contour de la déformation d'interface à l'aide d'un code développé sous Matlab. Ensuite un ajustement linéaire est effectué sur un segment de points appartenants au profil de l'interface détecté. La pente locale de chaque segment est calculée permettant d'en déduire l'angle par rapport à la propagation de l'onde incidente. Ainsi, le maximum de l'angle détecté suivant l'extension radiale du profil de déformation correspond à $\theta_{i\ max}$ comme cela est présenté figure 4.15 (a).

L'évolution de l'angle maximal d'incidence, $\theta_{i\ max}$, en fonction du rayon au col du faisceau, ω_0, est donnée par la figure 4.15 (b).

D'après l'évolution de $\theta_{i\ max}$ en fonction de ω_0, présentée figure 4.15 (b), nous pouvons conclure que l'angle maximal d'incidence de l'onde au niveau de l'interface ne semble pas dépendre du rayon au col du faisceau et sa valeur, inférieure à l'angle à la réflexion totale, vaut :

$$\theta_{i\ max} = (55.2 \pm 3.4)\ ^\circ < \theta_{RT}. \tag{4.11}$$

Par cette étude, nous confirmons que le déclenchement de l'instabilité observée s'effectue pour un angle d'incidence maximal de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide inférieur à l'angle à la réflexion totale, laissant présager d'un mécanisme d'instabilité beaucoup plus complexe, résultat qui avait déjà été noté sur le système fluide présentant deux phases diffusantes [82].

Nous venons ainsi de caractériser l'instabilité observée par l'étude de son seuil de déclenchement. Lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface est supérieure à P_{seuil}, une « aiguille liquide » est obtenue de manière stationnaire. Apprécions à présent la robustesse de cette instabilité. Une fois cet objet liquide créé, que se passe–t'il lorsque l'on fait varier continuement de manière décroissante la puissance laser ? Cette instabilité persiste–t'elle ou se résorbe–t'elle lorsque $P < P_{seuil}$?

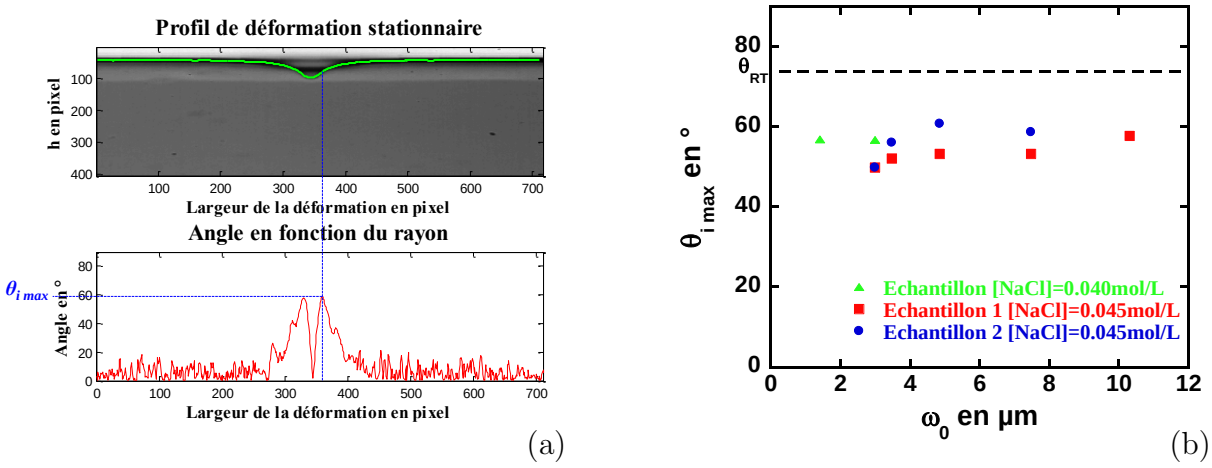


Fig. 4.15 – *(a) Méthode de mesure de l'angle maximal d'incidence, $\theta_{i\ max}$, de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide déformée par un faisceau descendant de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 7.48$ µm et de puissance $P = P_{seuil} = 732.6$ mW. (b) Évolution de $\theta_{i\ max}$ en fonction de ω_0 représenté pour différents échantillons de phases de Winsor à base d'un mélange eau salée – AOT – heptane en équilibre de Winsor III : 1 échantillon à une salinité de $[NaCl] = 0.040$ mol/L et deux échantillons à $[NaCl] = 0.045$ mol/L (rappelons que la réalisation de ces échantillons est très délicate et les comportements peuvent fluctuer un peu suivant les conditions expérimentales même pour une même salinité (annexe A.1.3)). Le trait en pointillés représente la valeur de $\theta_{RT} = 73.8$ ° pour ce système fluide transparent.*

4.3.3 Instabilité de type sous–critique : mise en évidence d'un cycle d'hystérésis en puissance

Une fois l'instabilité d'interface liquide déclenchée ($P > P_{seuil}$), nous analysons la stabilité des structures induites en faisant varier à nouveau la puissance laser et notamment de façon décroissante, c'est–à–dire en deçà de P_{seuil}. Nous avons reporté sur la figure 4.16 les morphologies stationnaires adoptées par l'interface liquide pour une même puissance laser inférieure au seuil d'instabilité. La seule différence entre ces deux images expérimentales est la façon dont la puissance laser P a été approchée, de manière croissante ou bien de manière décroissante.

La figure 4.16 nous informe qu'il est possible d'obtenir deux morphologies distinctes de l'interface déformée pour une même puissance laser P inférieure à la puissance seuil d'instabilité suivant la façon dont cette puissance est appliquée. En effet, si la puissance laser varie de manière croissante jusqu'à $P < P_{seuil}$, une « simple bosse » de déformation est obtenue (comme nous l'avons vu au début de cette partie). Toutefois, lorsque la puissance varie de manière décroissante depuis une puissance laser supérieure à la puissance seuil pour laquelle l'instabilité d'interface est déclenchée, l'« aiguille liquide » est conservée sur une certaine plage en puissances inférieures à P_{seuil}. Cela signifie que nous avons mis en évidence l'existence d'un cycle d'hystérésis de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance (croissante et décroissante), traduisant le caractère sous–critique de l'instabilité. Cette bistabilité, déjà observée par R. Wunenburger *et al.* [83], est reportée sur la figure 4.17 regroupant plusieurs cycles d'hystérésis correspondants aux différents rayons au col du faisceau utilisés lors de nos expériences sur ce système fluide (les cycles

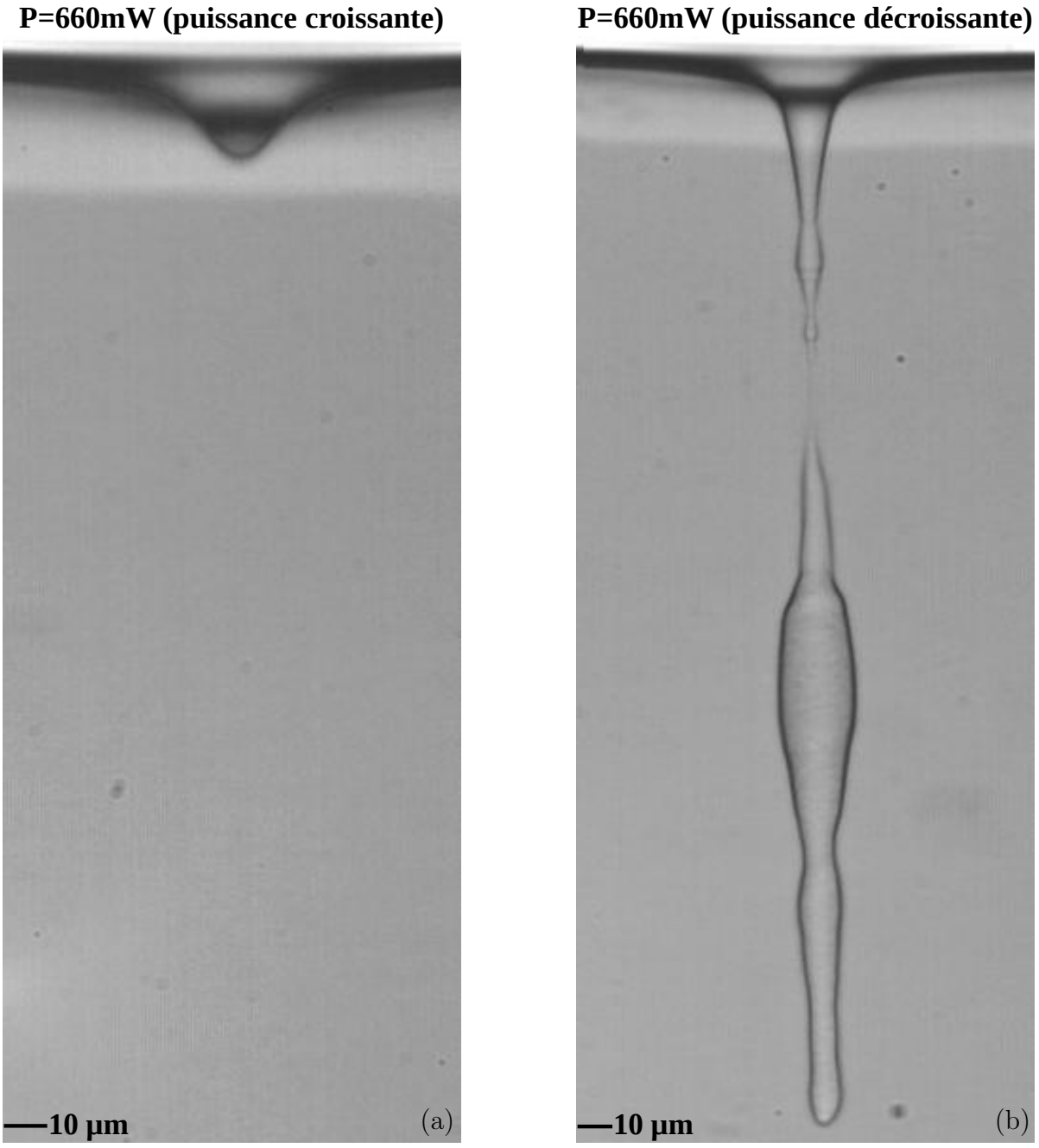


Fig. 4.16 – *Allure de la déformation d'interface liquide lorsque l'onde incidente, de rayon au col de faisceau* $\omega_0 = 7.48$ µm, *se propage de façon descendante* ($P_{seuil} = 732.6$ mW). *(a) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 660$ mW *délivrée de manière croissante. (b) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 660$ mW *délivrée de manière décroissante.*

d'hystérésis représentés correspondent aux expériences réalisées avec un échantillon de concentration en sel $[NaCl] = 0.045$ mol/L).

Ainsi, un cycle d'hystérésis de l'évolution de $h_{max}(P)$ est observé quelque soit le rayon au col du faisceau utilisé. On peut observer l'allongement des objets liquides créés après le seuil d'instabilité à mesure que ω_0 augmente. D'autre part, lorsque la puissance laser

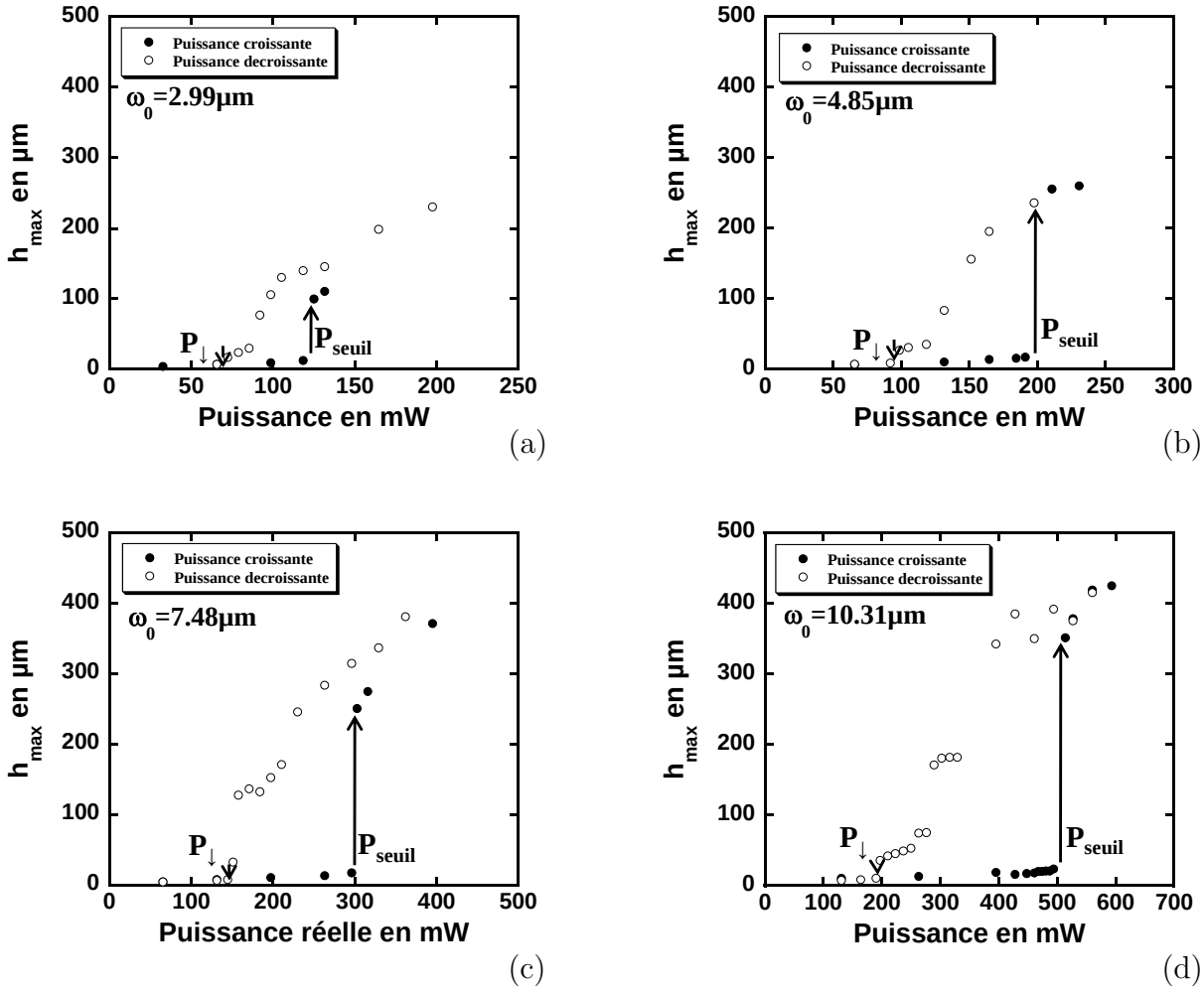


Fig. 4.17 – *Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser délivrée de manière croissante et décroissante au niveau de l'interface liquide. Les symboles pleins correspondent à une variation croissante de la puissance laser alors que les symboles creux représentent une variation décroissante de P. Les flèches schématisent le sens de variation de la puissance laser. ($P_{\downarrow}$ correspond à la puissance pour laquelle l'« aiguille liquide » disparaît et l'interface liquide recouvre une « simple bosse » de déformation.) (a) $\omega_0 = 2.99$ µm. (b) $\omega_0 = 4.85$ µm. (c) $\omega_0 = 7.48$ µm. (d) $\omega_0 = 10.31$ µm. (L'échelle utilisée en ordonnée est identique pour tous les graphiques afin, notamment, de visualiser les différences obtenues au niveau de l'amplitude des déformations liquides engendrées.*

varie continuement de façon décroissante depuis une puissance supérieure à la puissance seuil d'instabilité, nous pouvons observer (sur la plupart des cycles d'hystérésis présentés figure 4.17) des « sauts » de l'amplitude de la déformation. Ces « sauts » correspondent aux changements brutaux des morphologies adoptées par l'interface liquide déformée, d'une puissance à une autre comme cela est présenté figure 4.18 pour $\omega_0 = 10.31$ µm.

L'illustration des « sauts » d'amplitude des objets liquides formés lors de la variation décroissante de la puissance laser (figure 4.18) fait apparaître un scénario caractéristique que l'on peut retrouver pour les différents rayons au col du faisceau utilisés lors de ces expériences. L'exemple présenté ici pour $\omega_0 = 10.31$ µm exhibe un premier saut d'amplitude correspondant à la rétractation de l'aiguille liquide. Le deuxième saut observé est

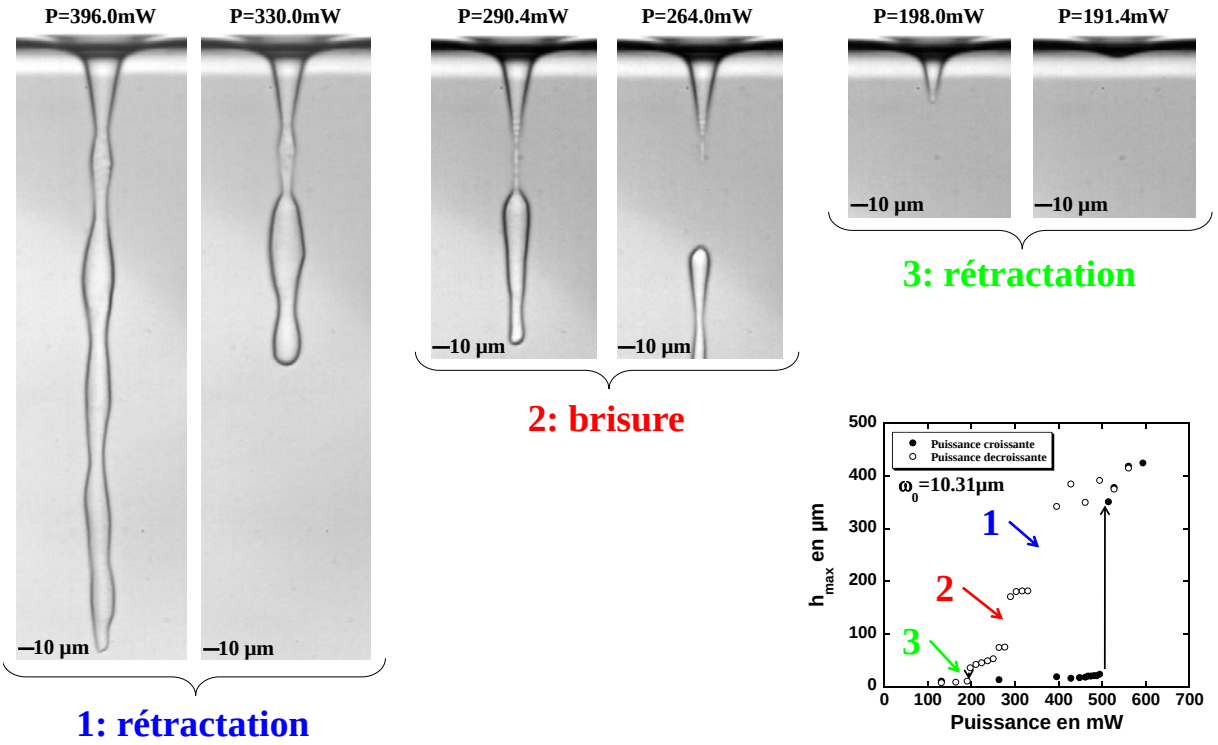


Fig. 4.18 – *Illustration des « sauts » d'amplitude observés sur la branche haute du cycle d'hystérésis de $h_{max}(P)$ pour $\omega_0 = 10.31$ µm. Le faisceau se propage de façon descendante. Les trois différents sauts sont étudiés faisant apparître un scénario particulier : 1 – rétractation de l'objet liquide, 2 – brisure en objet de plus faible amplitude car les contraintes sont trop fortes, 3 – rétractation à nouveau de l'aiguille liquide pour retrouver une « simple bosse » de déformation.*

représentatif d'une brisure de l'aiguille liquide. Les contraintes étant trop importantes, il y a séparation de la partie inférieure et de la base de l'aiguille liquide. Enfin, le dernier saut observé correspond à nouveau à la rétractation de l'aiguille liquide qui se solde par la fin du cycle d'hystérésis où on retrouve une « simple bosse » de déformation.

L'évolution en ω_0 de la puissance pour laquelle cette « simple bosse » de déformation est à nouveau obtenue, notée $P_\downarrow$, est donnée figure 4.19.

Nous montrons ainsi que $P_\downarrow$ se comporte linéairement avec le rayon au col du faisceau, ceci étant tout à fait en accord avec les résultats obtenus sur un système fluide diffusant composé de phases micellaires de microémulsion (voir annexe A.2) par A. Chater [84]. D'autre part, nous avons montré que la puissance seuil d'instabilité varie linéairement avec ω_0 (*cf.* figure 4.14). Le graphique en insert de la figure 4.19 représente l'évolution de la largeur relative des cycles d'hystérésis. Cette largeur relative s'exprime comme : $(P_{seuil} - P_\downarrow)/P_{seuil}$.

Or comme à la fois P_{seuil} et $P_\downarrow$ varient linéairement avec ω_0, cette largeur relative doit être indépendante de ω_0. C'est bien ce que nous confirmons graphiquement par l'insert de la figure 4.19 où la largeur relative des cycles est plutôt constante en fonction du rayon au col du faisceau.

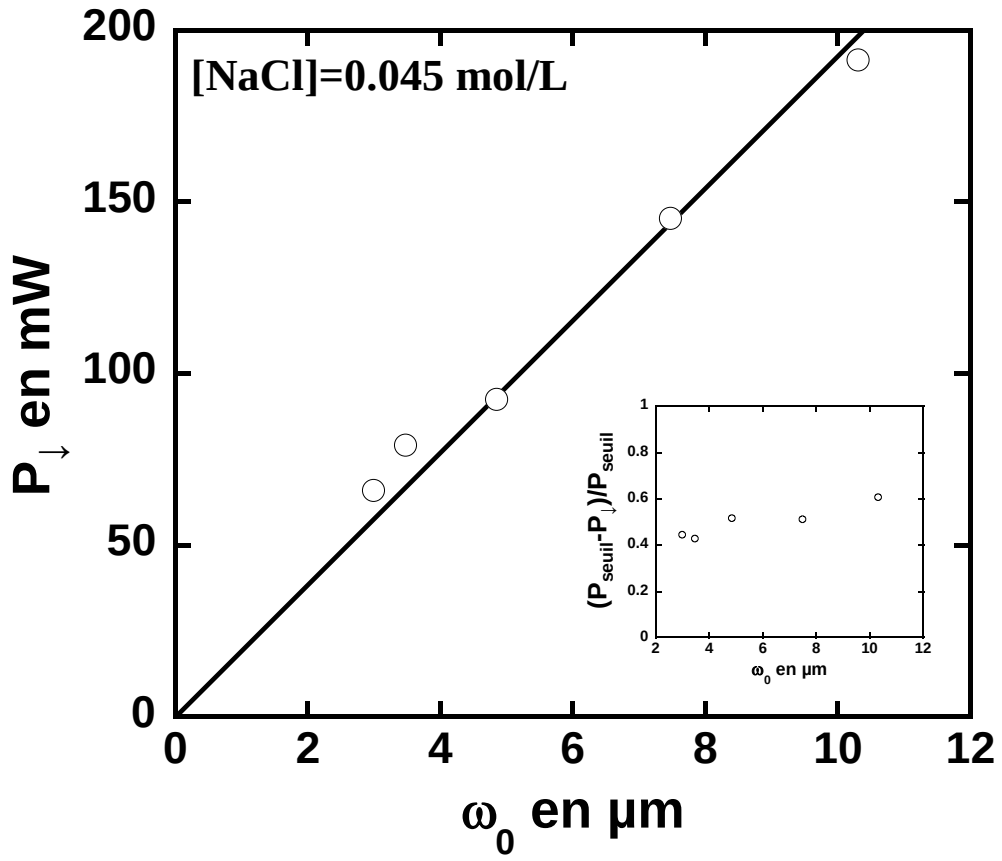


Fig. 4.19 – *Évolution de $P_{\downarrow}$ (puissance pour laquelle une « simple bosse » de déformation est obtenue) en fonction de ω_0. L'onde incidente se propage de façon descendante. Le graphique en insert représente l'évolution de la largeur relative des cycles d'hystérésis en fonction de ω_0.*

4.3.4 Bilan

Au cours de cette section, l'onde incidente se propageant depuis la voie haute du dispositif expérimental, nous avons pu observer des comportements différents de la déformation d'interface liquide induite par rapport à la précédente configuration expérimentale.

Tout d'abord, aucune morphologie complexe de type « tétine liquide » n'est observée. En revanche, nous avons mis en évidence l'existence d'un seuil d'instabilité pour une certaine puissance laser. Au–delà de cette puissance seuil d'instabilité, nous observons la déstabilisation de l'interface et l'émergence d'un objet liquide de grande amplitude. Cet objet liquide, créé lorsque $P > P_{seuil}$, n'émettant pas de goutte et ne gonflant pas est apparenté à une « aiguille liquide ». Malgré la connaissance de cette instabilité d'interface liquide, à travers notamment les travaux de A. Casner [51] sur des systèmes fluides comportant deux phases liquides diffusantes, la preuve de l'existence de cette instabilité induite à l'aide d'une onde électromagnétique focalisée au niveau de l'interface liquide d'un système fluide non–diffusant n'avait pas été réalisé.

Nous avons donc apporté ici la preuve que la pression de radiation se suffit à elle–même pour induire cette instabilité mais nous avons également démontré que la réflexion totale que pourrait subir l'onde incidente au niveau de l'interface déformée n'est pas responsable de la déstabilisation de l'interface. En effet, l'étude réalisée sur l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide lorsque la puissance laser est égale à la puissance seuil d'instabilité montre bien que $\theta_{i\ max} < \theta_{RT}$ (quelque soit le rayon au col du faisceau utilisé).

Enfin, nous avons mis en évidence l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance croissante et décroissante. Cette bistabilité nous informe sur le caractère sous–critique de l'instabilité engendrée (*remarque* : les « sauts » d'amplitude observés sur la branche haute de chaque cycle de la figure 4.17 ne font pas l'objet d'hystérésis intermédiaires, il convient donc de parler ici de bistabilité car pour une puissance laser fixée, uniquement deux formes stables peuvent être observées).

Le mécanisme régissant l'instabilité est donc assez complexe et nous intuitons l'existence d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface induite, cette dernière ayant une certaine rétroaction sur la propagation pouvant conduire à la déstabilisation de l'interface liquide. Cette hypothèse fait l'objet de recherches actuelles au sein de notre équipe de recherche.

Lors de la dernière section de ce chapitre expérimental, nous allons à nouveau modifier la configuration expérimentale afin d'illuminer l'interface liquide de notre échantillon diphasique transparent à l'aide de deux faisceaux lasers contra–propageants (de puissance et de rayon au col du faisceau identiques). Cette configuration expérimentale permettra d'une part d'évaluer une quelconque influence sur les déformations observées et notamment sur l'instabilité d'interface mise en évidence. D'autre part, ce système fluide étant considéré comme une « référence » pour les prochains chapitres expérimentaux de ce manuscrit, où cette configuration expérimentale sera utilisée afin d'annihiler en moyenne les effets de la force diffusive, cette étude nous permet d'établir un certain nombre de résultats qui serviront de base tout au long de ce travail de recherche.

4.4 Illumination de l'interface liquide par deux faisceaux lasers contra–propageants

Le but de cette dernière partie expérimentale se décompose selon deux axes : d'une part d'évaluer l'influence d'une telle configuration expérimentale sur les différentes morphologies d'interfaces liquides déformées présentées précédemment et plus particulièrement vis–à–vis de l'instabilité d'interface mise en évidence. D'autre part, le système fluide transparent utilisé dans ce chapitre, composé à partir d'un mélange d'eau salée – AOT – heptane en équilibre de Winsor III, est considéré comme le système de « référence » pour les prochains chapitres expérimentaux de cette thèse. Lors de ces prochains chapitres, cette configuration expérimentale, appelée double propagation par la suite, sera employée à des fins bien précises. En effet, il s'agira d'utiliser la configuration double propagation pour tenter de s'affranchir des effets inhérents à la force diffusive présente dans l'une ou les deux phases de l'échantillon diphasique. Ainsi, par souci de cohérence et de comparaison, il apparaît tout à fait naturel d'entreprendre cette démarche expérimentale lors de

ce chapitre.

4.4.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation de l'interface liquide sous l'action de deux faisceaux lasers contra–propageants

Lorsque le dispositif expérimental est réglé en configuration double propagation, à l'aide d'une rotation angulaire de la lame $\lambda/2$ (voir section 3.1), deux faisceaux lasers de même puissance et de rayons au col du faisceau ω_0 identiques, interceptent l'interface liquide. Lorsque la puissance varie de manière croissante, les morphologies typiques adoptées par l'interface liquide sont représentées figure 4.20 pour $\omega_0 = 7.48$ µm.

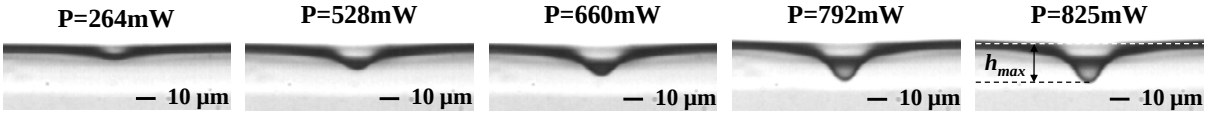


Fig. 4.20 – *Évolution typique de la morphologie adoptée par l'interface liquide déformée en fonction de la puissance laser croissante. Le dispositif expérimental est réglé en double propagation de telle sorte que deux faisceaux lasers contra–propageants interceptent l'interface liquide de l'échantillon transparent. Le rayon au col du faisceau est de* $\omega_0 = 7.48$ µm. *Les différentes puissances laser sont reportées sur chaque image. La dernière image, à droite, correspond à la déformation d'interface stationnaire obtenue au seuil d'instabilité.*

Si l'on compare l'évolution qualitative présentée figure 4.20 avec les résultats obtenus en simple propagation descendante (figure 4.11), il est difficile de mettre en évidence une quelconque différence de morphologie lorsque la puissance laser au niveau de l'interface liquide augmente. Nous observons la formation d'une bosse de déformation à mesure que P croît tout comme en simple propagation descendante. L'évolution de la hauteur maximale de déformation est reportée figure 4.21 et comparée aux résultats obtenus lorsqu'un seul faisceau laser intercepte l'interface liquide de manière descendante.

Il apparaît clairement que l'allure générale de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser (figure 4.21) n'est pas modifiée par le changement de configuration du dispositif expérimental en double propagation. Un régime linéaire de déformation à faible puissance est repérable, puis une légère déviation à celui–ci est obtenue pour se conclure par une instabilité de $h_{max}(P)$ pour une puissance particulière, notée $P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$. Cette puissance particulière est apparentée à une puissance seuil d'instabilité puisque l'instabilité d'interface observée lors de la section précédente est toujours efficiente dans cette configuration expérimentale. Lorsque $P > P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$, l'interface se déstabilise et conduit à l'émergence d'une « aiguille liquide » comme cela est présenté figure 4.22.

Néanmoins, de légères différences entre les deux configurations expérimentales sont remarquables. Lorsque la puissance laser est fixée, l'altitude maximale atteinte par l'interface déformée en double propagation est plus faible qu'en simple propagation descendante. D'autre part, comme nous l'étudierons un peu plus loin dans cette section, la puissance nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est un peu plus importante en double propagation par rapport à celle nécessaire en simple propagation descendante.

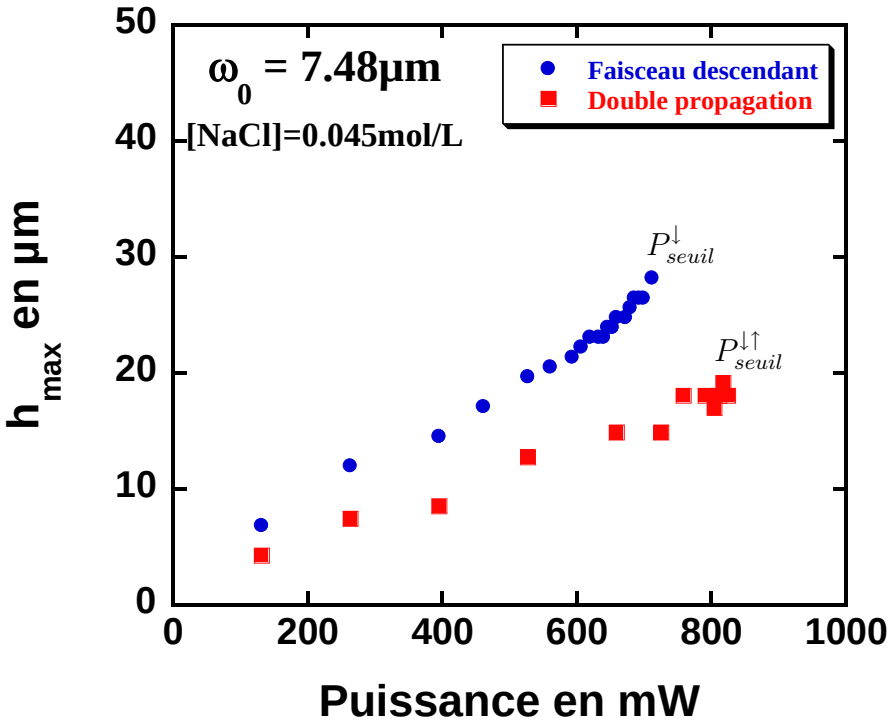


Fig. 4.21 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} en fonction de la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide. Comparaison entre les résultats issus d'une simple propagation d'un faisceau laser descendant (ronds bleus) avec les résultats obtenus en double propagation (carrés rouges). Dans les deux configurations expérimentales présentées, le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 7.48$ µm. $P^{\downarrow}_{seuil} = 732.6$ mW et $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 825.0$ mW où $P^{\downarrow}_{seuil}$ représente la puissance seuil d'instabilité en configuration simple propagation descendante et $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}$, la puissance seuil d'instabilité en double propagation.*

Si l'on se concentre sur le régime linéaire de déformation (à faible puissance laser), cette différence d'amplitude entre les deux configurations expérimentales est surprenante. En effet, les déformations engendrées étant de faible amplitude, la contribution de la pression de radiation venant d'un faisceau descendant et celle issue d'un faisceau ascendant sont comparables (ce qui n'est plus le cas lorsque la déformation présente une forte courbure comme nous le verrons par la suite) [51]. Ainsi, la hauteur maximale de déformation, d'après la formule 4.4, peut s'exprimer, lorsque ω_0 et P sont fixés :

$$h^{\downarrow}_{max} \propto n_2 \times \mathcal{F}(Bo), \tag{4.12}$$

lorsque l'onde incidente se propage de façon descendante et quand le dispositif expérimental est configuré en double propagation, $h^{\downarrow\uparrow}_{max}$ s'exprime comme :

$$h^{\downarrow\uparrow}_{max} \propto \left(\frac{n_1 + n_2}{2}\right) \times \mathcal{F}(Bo), \tag{4.13}$$

où $\mathcal{F}(Bo)$ représente une constante par rapport au nombre de Bond, ω_0 étant fixé, telle que : $\mathcal{F}(Bo) = \frac{2}{c}\left(\frac{n_1-n_2}{n_1+n_2}\right)\frac{I}{\Delta\rho g}\frac{Bo}{8}\exp\left(\frac{Bo}{8}\right)E_1\left(\frac{Bo}{8}\right)$ (tous les paramètres sont fixés).

Ainsi, l'écart d'amplitude (dans le régime linéaire de déformation), devrait être décrit par le rapport :

$$\frac{h_{max}^{\downarrow}}{h_{max}^{\downarrow\uparrow}} \propto \frac{2n_2}{n_1 + n_2}, \tag{4.14}$$

ce qui donne après application numérique :

$$\frac{h_{max}^{\downarrow}}{h_{max}^{\downarrow\uparrow}} = 1.02. \tag{4.15}$$

Or l'écart obtenu entre les deux configurations expérimentales, dans le régime linéaire (figure 4.21), est beaucoup plus élevé et égal à $h_{max}^{\downarrow}/h_{max}^{\downarrow\uparrow} = 1.53$.

Il existe donc un phénomène physique participant à cet écart d'amplitude entre les deux configurations expérimentales. Peut–on imputer ce comportement au couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation induite, comme nous en avons discuté précédemment (section 4.2.4) ?

La réponse est visiblement négative car si couplage propagation–déformation il y a, nous devrions obtenir la superposition des deux comportements de $h_{max}(P)$, suivant chaque configuration expérimentale, à très faible puissance puis observer assez rapidement la déviation de ces deux comportements. Ceci n'est pas observé sur la figure 4.21 ou alors le manque de raffinement à très basse puissance laser ne nous a pas permis de détecter une quelconque déviation des deux comportements. Cet écart d'amplitude reste donc, pour le moment, une question en suspens.

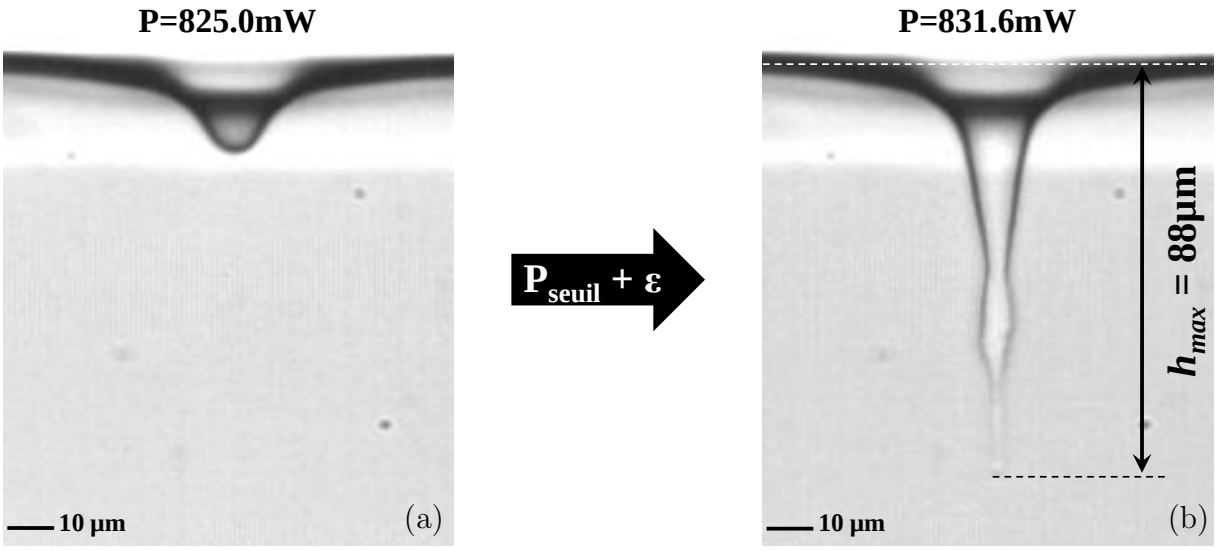


Fig. 4.22 – *(a) Morphologie adoptée par l'interface liquide au seuil d'instabilité* $P_{seuil}^{\downarrow\uparrow} = 825.0$ mW. *(b) Déstabilisation de l'interface en « aiguille liquide » stationnaire lorsque* $P = P_{seuil}^{\downarrow\uparrow} + \varepsilon = 831.6$ mW *(où* $\varepsilon = 6.6$ mW *et correspond à la précision de base en puissance laser de notre dispositif expérimental). Le dispositif expérimental est configuré en double propagation et le rayon au col du faisceau est de* $\omega_0 = 7.48$ µm.

Intéressons–nous à présent au seuil d'instabilité. Comme nous pouvons le voir sur la figure 4.22, l'instabilité d'interface est toujours induite, en configuration double propaga-

tion ; il fallait que la puissance laser appliquée au niveau de l'interface soit suffisante. Il en résulte une « aiguille liquide » qui n'émet pas de goutte et qui ne gonfle pas. En revanche l'amplitude de l'aiguille est beaucoup plus faible que celle induite par un seul faisceau laser descendant (*cf.* figure 4.13).

Nous venons de démontrer que l'action de deux faisceaux lasers contra–propageants est capable d'engendrer la déstabilisation d'une interface séparant deux phases liquides homogènes et isotropes. Afin de compléter l'étude réalisée en simple propagation descendante (section 4.3), nous allons caractériser le seuil d'instabilité en fonction du seul paramètre ajustable à notre disposition, le rayon au col du faisceau ω_0. Par la suite, nous étudierons l'influence de la configuration double propagation sur l'instabilité d'interface observée et nous montrerons que l'hystérésis mise en évidence en simple propagation est toujours observable en double propagation.

4.4.2 Caractérisation du seuil d'instabilité en configuration double propagation

Caractérisation de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide en configuration double propagation

Afin de réaliser le pendant de la configuration expérimentale utilisée lors de la partie précédente (section 4.3.2), nous allons étudier l'évolution de l'angle maximal d'incidence de l'onde excititatrice, au niveau de l'interface liquide, lorsque $P = P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$ et vérifier si celui–ci demeure inférieur à l'angle à la réflexion totale sous l'action de deux faisceaux lasers contra–propageants. La méthode de détection de $\theta_{i\ max}$ est similaire à celle employée en section 4.3.2. Les résultats obtenus en fonction du rayon au col du faisceau, sont présentés figure 4.23. Ceux–ci sont confrontés à la fois aux résultats issus de la configuration expérimentale simple propagation descendante et à la valeur de l'angle à la réflexion totale, noté θ_{RT} (calculé pour ce système fluide).

L'évolution de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide, telle quelle est décrite par la figure 4.23 nous confirme que le comportement de $\theta_{i\ max}$ est constant en fonction de ω_0, que le dispositif expérimental soit réglé en simple propagation descendante ou bien en double propagation. De plus, lorsque ω_0 est fixé, la valeur de $\theta_{i\ max}$ n'est en aucun cas affectée par le changement de configuration expérimentale. L'angle maximal d'incidence présente une valeur comprise entre 50° et 60° quelque soit ω_0 et reste donc bien inférieur à l'angle de réflexion totale.

Évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau en configuration double propagation

Nous avons vu en section 4.3.2 que la puissance seuil d'instabilité se comporte linéairement avec le rayon au col faisceau. En configuration double propagation, nous avons procédé à un test de ce comportement particulier que l'on peut également mettre en exergue lorsque les deux phases liquides de l'échantillon utilisé diffusent l'onde incidente, comme cela a été établi par les travaux de A. Casner avec un seul faisceau laser incident [51] et comme nous l'étudierons lors du chapitre 7. Nous avons reporté sur la figure 4.24 l'évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ω_0 pour les résultats concernant le

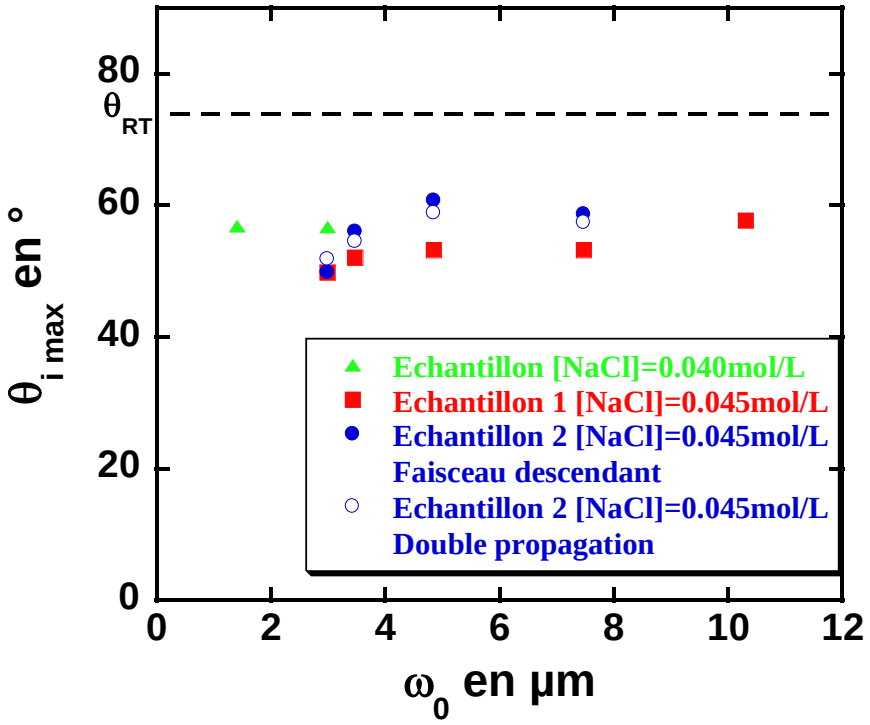


Fig. 4.23 – *Évolution de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide lorsque la puissance laser est égale à la puissance seuil d'instabilité. Les résultats pour tous les échantillons fluides utilisés en simple propagation descendante sont reportés ainsi que ceux issus de la configuration double propagation (ronds creux bleus). Le trait en pointillés correspond à la valeur de l'angle de réflexion totale pour ce système fluide ($\theta_{RT} = 73.8$ °).*

système fluide transparent étudié dans ce chapitre expérimental en configuration simple propagation descendante et double propagation.

D'après la figure 4.24, le comportement linéaire de l'évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ω_0 n'est pas altéré par le changement de configuration expérimentale. En revanche, comme cela avait été introduit lors de l'étude de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser suivant les deux configurations expérimentales (figure 4.21), la puissance seuil nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide de l'échantillon en double propagation est un peu plus importante qu'en simple propagation.

Par la suite, nous allons tenter d'expliquer de manière qualitative l'écart observé entre les puissances nécessaires à la déstabilisation de l'interface liquide, pour les deux configurations expérimentales du point de vue de l'action de la pression de radiation optique. En effet, cette force surfacique résultant de l'interaction entre l'onde électromagnétique incidente et le milieu ne se comporte pas de la même manière suivant les configurations expérimentales utilisées. Comme nous l'avons introduit section 2.1, les contributions de la pression de radiation optique au niveau de l'interface liquide diffèrent en amplitude suivant le sens de propagation de l'onde l'incidente et de son angle d'incidence au niveau de l'interface déformée. Cette particularité est représentée, pour le système fluide utilisé

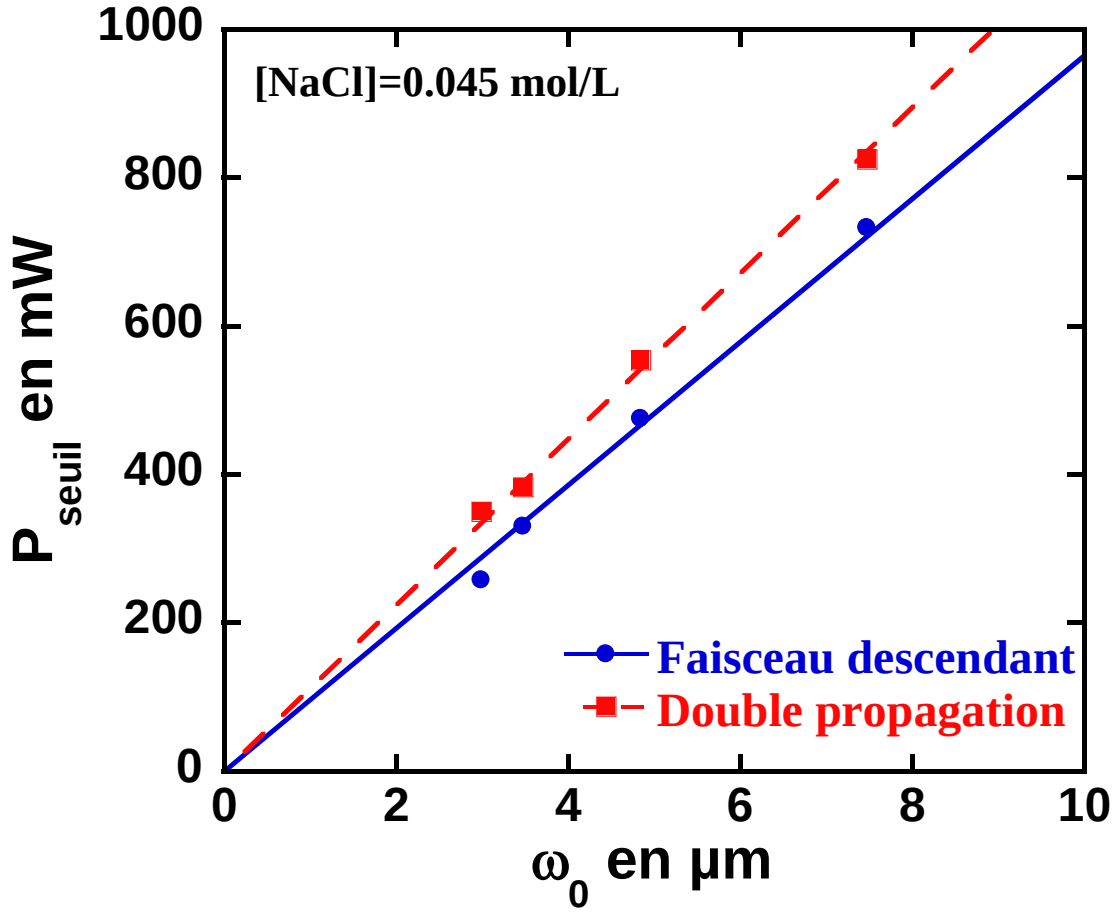


Fig. 4.24 – *Évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau, ω_0. Comparaison entre les résultats issus d'une simple propagation d'un faisceau laser descendant (ronds bleus) avec les résultats obtenus en double propagation (carrés rouges). Les traits plein et en pointillés réprésentent respectivement une régression linéaire effectuée sur les données expérimentales.*

dans cette section, figure 4.25.

Grâce au calcul des contributions de la pression de radiation optique au niveau de l'interface liquide suivant le sens de propagation (figure 4.25), nous observons nettement que lorsque l'angle d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface reste inférieur à 50°, la contribution des pressions de radiation issue d'un faisceau se propageant de façon descendante et ascendante sont comparables. Néanmoins, lorsque l'angle maximal d'incidence est supérieur à 50° (ce qui est le cas, proche du seuil d'instabilité, pour l'interface liquide par exemple), les deux comportements diffèrent à mesure que l'angle d'incidence augmente. Cela signifie que la contribution de la pression de radiation issue d'un faisceau se propageant de façon descendante est toujours plus efficace que celle en sens opposé.

Enfin, la pression de radiation optique étant directement proportionnelle à la puissance laser (voir section 2.1), il apparaît ainsi évident que cette différence de dépendance angulaire des contributions de la pression de radiation en double propagation engendrera une puissance seuil d'instabilité légèrement plus importante que lorsqu'un seul faisceau descendant intercepte l'interface liquide.

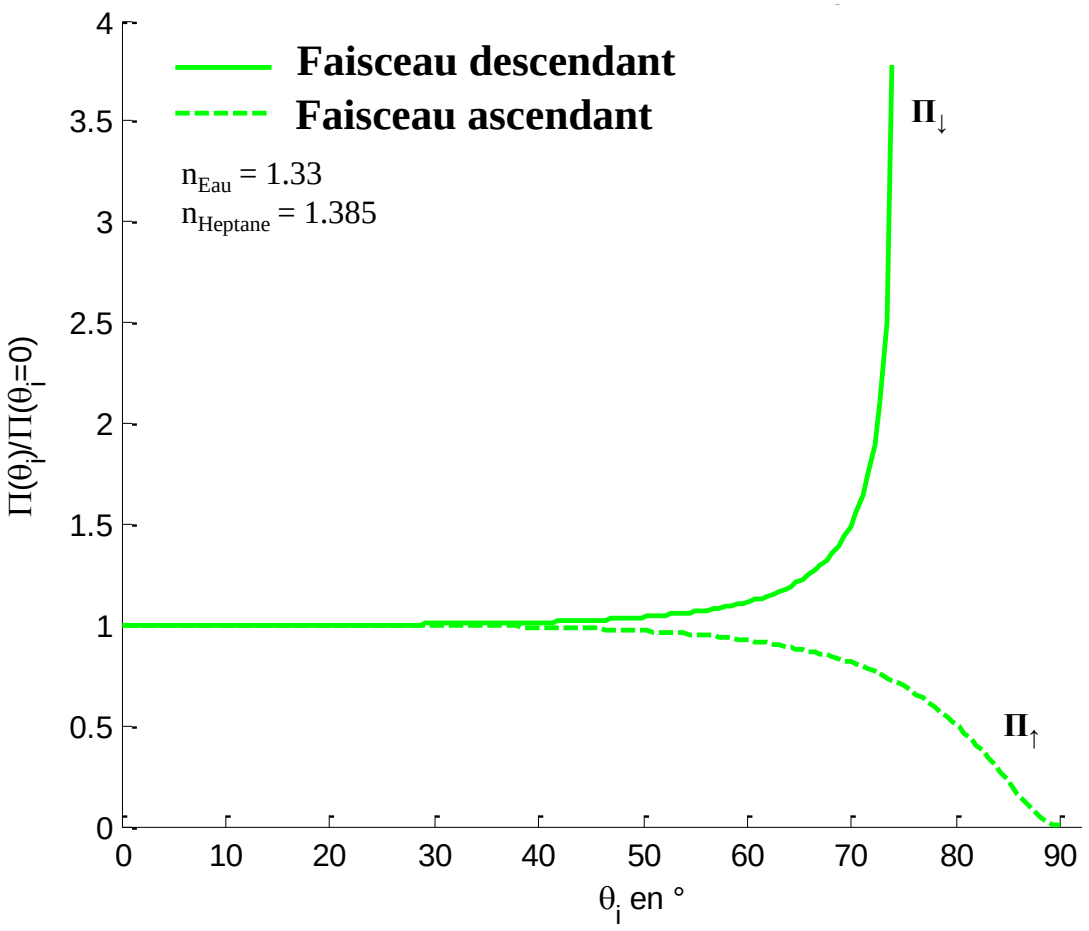


Fig. 4.25 – *Variation de la pression de radiation optique normalisée par sa valeur à incidence normale en fonction de l'angle d'incidence θ_i. Les deux sens de propagation sont représentés et les calculs sont réalisés pour notre système fluide transparent constitué d'une phase d'eau salée et d'une phase d'heptane (l'indice de réfraction de la phase aqueuse est approximé à celui de l'eau). $\Pi_{\downarrow}$ et $\Pi_{\uparrow}$ correspondent respectivement au calcul de la pression de radiation optique d'une onde se propageant de façon descendante et de façon ascendante, la phase aqueuse étant située sous la solution d'heptane.*

4.4.3 Cycle d'hystérésis en configuration double propagation

Au cours de la section 4.3.3, nous avons mis en évidence l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser d'un faisceau interceptant l'interface liquide de l'échantillon de manière descendante. Au cours de cette dernière section, nous avons par conséquent adopté le même protocole expérimental afin de vérifier (ou non) l'existence de ce comportement lorsque deux faisceaux lasers contra–propageants illuminent l'interface liquide.

Une fois l'instabilité déclenchée ($P > P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$), nous faisons varier continuement la puissance laser, au niveau de l'interface, de manière décroissante. La figure 4.26 expose la déformation d'interface obtenue pour une puissance fixe inférieure à la puissance seuil d'instabilité mais approchée soit de manière croissante ou de manière décroissante pour un rayon au col du faisceau de $\omega_0 = 7.48$ µm.

Comme cela est confirmé par la figure 4.26, la bistabilité observée précédemment est conservée lorsque deux faisceaux lasers contra–propageants interceptent l'interface liquide

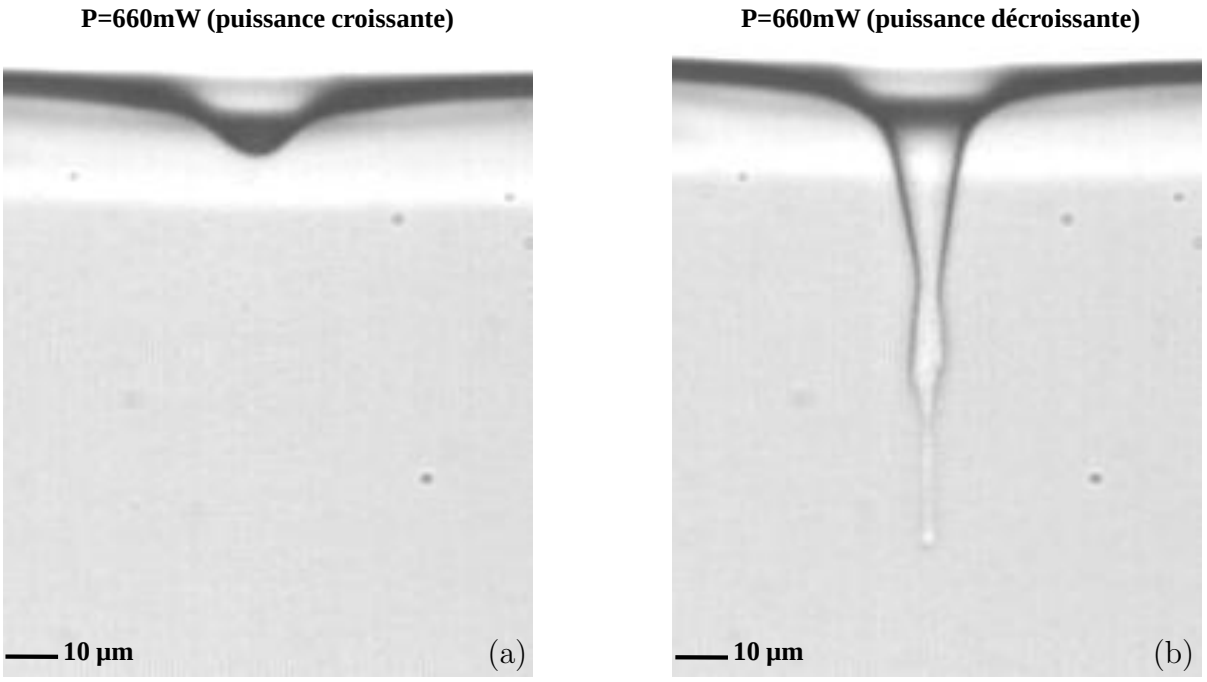


Fig. 4.26 – *Allure de la déformation d'interface liquide lorsque le dispositif expérimental est réglé en double propagation. Le rayon au col du faisceau est de* $\omega_0 = 7.48$ µm *(*$P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 825.0$ mW*). (a) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 660$ mW *délivrée de manière croissante. (b) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 660$ mW *délivrée de manière décroissante.*

de notre échantillon diphasique transparent. L'évolution correspondante de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser exhibe donc un comportement doué d'hystérésis suivant le sens de variation de la puissance laser (figure 4.27 (b)).

La figure 4.27 expose la comparaison des cycles d'hystérésis obtenus entre une configuration expérimentale où l'onde incidente se propage de manière descendante (figure 4.27 (a)) et la configuration double propagation (figure 4.27 (b)). Un saut de hauteur de la longueur de l'aiguille liquide est à nouveau observé sur la branche haute du cycle même s'il est de moindre amplitude que celui observé figure 4.27 (a) en configuration descendante.

Cette présence robuste d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser nous renforce dans notre hypothèse concernant la nature de l'instabilité d'interface liquide engendrée. En effet, un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface semble exister permettant notamment d'observer cette bistabilité caractéristique.

4.4.4 Bilan

Au cours de cette dernière section, nous avons procédé au même protocole expérimental que celui utilisé lors de la partie 4.3. En effet, il s'agissait d'une part d'évaluer la moindre influence de la configuration du montage optique en double propagation sur les déformations et l'instabilité d'interface liquide mises en évidence lors de cette partie. D'autre part, ce système étant considéré comme une « référence » pour les prochains cha-

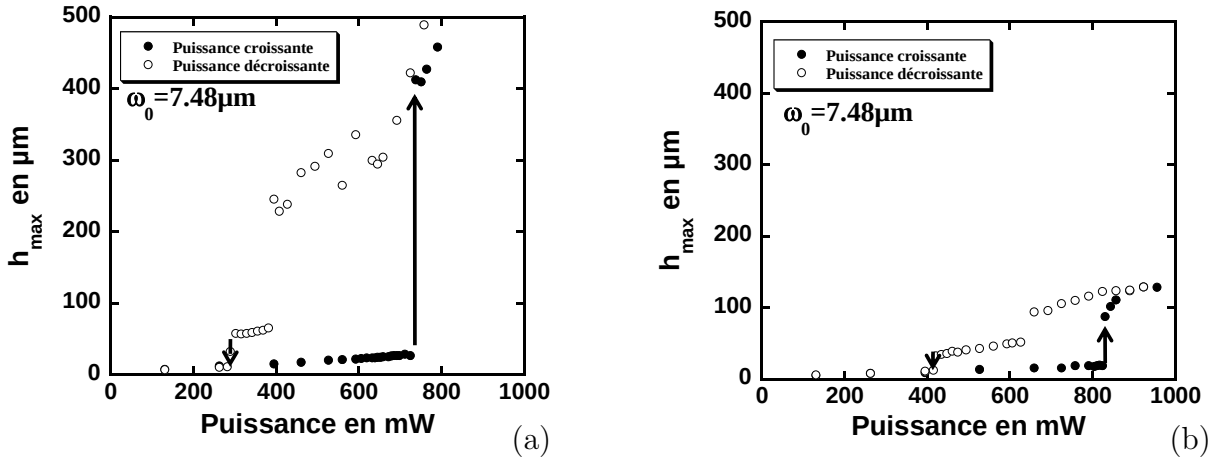


Fig. 4.27 – *(a) Cycle d'hystérésis de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser lorsque le dispositif expérimental est configuré en simple propagation descendante. (b) Mise en évidence de l'existence de ce même cycle d'hystérésis lorsque le dispositif expérimental est configuré en double propagation. Dans les deux graphiques présentés, le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm. *L'échantillon utilisé est régulé à une salinité de* $[NaCl] = 0.045$ mol/L. *Les symboles pleins correspondent à une variation croissante de la puissance laser au niveau de l'interface liquide alors que les symboles creux représentent une variation décroissante de* P. *(Les flèches schématisent le sens de variation de la puissance laser et l'échelle utilisée en ordonnée est la même pour les deux graphiques afin de pouvoir comparer directement les amplitudes des objets liquides induits.)*

pitres expérimentaux de ce manuscrit de thèse, il apparaissait nécessaire, dans un souci de cohérence, d'établir une base de résultats en absence de force diffusive.

Tout d'abord, il a été démontré que la modification de la configuration du dispositif expérimental n'affecte pas la morphologie des déformations d'interfaces induites. L'allure de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser est sensiblement similaire à celle observée en simple propagation descendante. En revanche, la puissance seuil nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est un peu plus élevée en double propagation que lorsqu'un seul faisceau intercepte l'interface. Cet écart de puissance seuil d'instabilité est expliqué de manière qualitative par les différentes contributions de la pression de radiation optique à la déformation d'interface en fonction de l'angle d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface et du sens de propagation de celle–ci. D'autre part, l'amplitude des objets liquides créés au–delà du seuil d'instabilité est moindre en double propagation. Cette caractéristique est également appréciable lorsqu'on étudie les cycles d'hystérésis de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser, croissante et décroissante. Cette différence d'amplitude pourrait être envisagée également du point de vue des contributions de la pression de radiation optique mais ceci reste à vérifier.

La nature sous–critique de l'instabilité d'interface mise en évidence section 4.3 est vérifiée en configuration double propagation par l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser. Cette bistabilité réccurente semble conforter notre hypothèse concernant un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface, cette dernière agissant à son

tour sur la propagation de l'onde.

4.5 Conclusion

Lors de ce premier chapitre expérimental, nous avons exposé différents résultats obtenus dans le cadre de l'action d'une onde électromagnétique focalisée au niveau de l'interface liquide d'un échantillon diphasique composé à partir d'une phase d'eau salée et d'une phase d'heptane issues d'un mélange eau salée – AOT – heptane en équilibre de Winsor III (annexe A.1.3). La mise en coexistence de ces deux phases transparentes nous permet de produire des interfaces liquides extrêmement déformables (tensions interfaciales de l'ordre de $\sigma \sim 10^{-6}$ N/m). Ainsi, uniquement les effets de la pression de radiation de l'onde incidente au niveau de l'interface, constituant une discontinuité d'indice de réfraction, participent à la déformation d'interface liquide engendrée. Différentes configurations expérimentales ont été utilisées lors de ce chapitre, chacune comportant un lot de résultats originaux.

Premièrement, le dispositif expérimental fut configuré de telle manière que l'onde incidente intercepte l'interface liquide de façon ascendante. Cela signifie que l'onde excitatrice se propage depuis le milieu le moins réfringent (phase aqueuse) vers le milieu le plus réfringent (phase heptane). Dans cette configuration expérimentale, les paramètres de l'onde excitatrice, à savoir la puissance laser P et le rayon au col du faisceau ω_0, ont été variés. Nous en avons déduit l'existence de plusieurs régimes de déformations en puissance, dont un régime linéaire de déformation aux faibles puissances laser où la hauteur maximale de déformation se comporte linéairement lorque P augmente et la morphologie de l'interface correspond à une « simple bosse » de déformation. Ces déformations d'interfaces dans le régime linéaire ont été ajustées à l'aide d'un modèle physique développé par A. Casner lors de ses travaux de thèse [51]. L'ajustement à la fois des profils de déformations stationnaires et des évolutions des hauteurs de déformations nous a également permis de montrer sa pertinence dans la mesure sans contact de faibles tensions interfaciales.

Lorsque la puissance augmente fortement, une déviation de ce comportement linéaire est observable et les morphologies des déformations obtenues se complexifient énormément, s'apparentant dans quelques cas à des « tétines liquides ». Cette complexification n'est plus décrite par le modèle physique utilisé auparavant. De plus, lorsque la puissance laser devient très importante, une instationnarité de l'interface déformée peut–être constatée pour la plupart des ω_0 utilisés.

Dans une seconde partie, nous avons changé la configuration du dispositif expérimental afin que celui–ci délivre une onde incidente se propageant depuis la voie haute du montage optique (*i.e.* depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent). Cette fois, la déformation induite par les effets de la pression de radiation optique est dirigée dans le sens de propagation de l'onde excitatrice. Il a été démontré que lorsque la puissance laser augmente, un régime linéaire de déformation est présent à faible P. Une légère déviation à ce comportement apparaît à puissance plus forte pour se conclure par un saut de la hauteur maximale de déformation pour une puissance laser particulière appelée puissance seuil d'instabilité et notée P_{seuil}. Au–delà de cette puissance seuil, la déstabilisation de l'interface a lieu et nous constatons l'émergence d'une « aiguille liquide », induite par la pression de radiation, qui n'émet pas de goutte en son bout et qui ne ne

gonfle pas (attestant ainsi l'absence d'écoulement). Bien que cette instabilité d'interface avait été mise en évidence lors des travaux de A. Casner sur des échantillons liquides diphasiques diffusants la lumière incidente, la vérification de l'existence de cette instabilité d'interface n'avait pas été réalisé en absence de force diffusive. Nous avons donc répondu à cette question en affirmant que la force diffusive n'est donc en aucun cas responsable de l'instabilité d'interface observée dans cette configuration expérimentale, même si elle peut jouer un rôle important comme nous l'étudierons au cours du chapitre 7.

Nous avons également prouvé que la réflexion totale que pourrait subir l'onde incidente au niveau de l'interface déformée n'est pas le moteur de l'instabilité car celle–ci est déclenchée pour un angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface bien inférieur ($\theta_{i\ max} < \theta_{RT}$ quelque soit ω_0). D'autre part, nous avons mis en évidence l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser (en variation continue croissante et décroissante) traduisant la nature sous–critique de l'instabilité observée.

Enfin, le mécanisme régissant cette instabilité d'interface est complexe et semble faire intervenir un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation de l'interface liquide, cette dernière agissant à son tour sur la propagation de l'onde. Cette hypothèse est en cours d'étude au sein de notre équipe.

Pour finir ce chapitre expérimental sur un système fluide transparent, nous avons procédé au réglage du montage optique en configuration double propagation où deux faisceaux lasers contra–propageants de même puissance laser et de rayons au col du faisceau identiques illuminent l'interface liquide de l'échantillon. Cette démarche avait pour but d'une part d'évaluer une quelconque influence de ce changement de configuration expérimentale sur les déformations et l'instabilité d'interface mises en évidence. D'autre part, ce système étant considéré comme une « référence » pour les prochains chapitres expérimentaux de ce manuscrit de thèse, il était essentiel d'adopter un protocole expérimental commun à tous les systèmes fluides utilisés afin de faire transparaître une certaine cohérence dans notre propos.

L'utilisation de cette configuration expérimentale avec cet échantillon liquide diphasique transparent nous a donc permis d'établir une base de résultats en absence de force diffusive. Nous nous y reporterons à plusieurs reprises lors des prochains chapitres. La modification de la configuration expérimentale n'affecte pas les morphologies des déformations d'interfaces liquides observées lors de la section précédente. Toutefois, la puissance seuil nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est un peu plus importante en double propagation que lorsqu'un seul faisceau intercepte l'interface liquide de manière descendante. Nous avons apporté une explication qualitative à cet écart de puissances seuil par l'intervention des différentes contributions de la pression de radiation optique au niveau de l'interface déformée en fonction de l'angle d'incidence de l'onde excitatrice et du sens de sa propagation.

Enfin, l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance est toujours mis en évidence dans cette configuration expérimentale à deux faisceaux. Cette robustesse semble nous conforter dans l'hypothèse d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface.

Lors du prochain chapitre, nous allons présenter brièvement quelques résultats obtenus

à l'aide de simulations numériques effectuées par l'intermédiaire d'un code numérique développé au sein de notre équipe de recherche. Les différentes simulations sont réalisées en l'absence de pression de radiation afin d'étudier uniquement les effets inhérents à la force diffusive sur l'interface liquide d'un échantillon diphasique quasi–critique. Ce chapitre permettra ainsi d'effectuer un certain nombre de prédictions qui seront confrontées aux résultats présentés dans les chapitres expérimentaux suivants.

Chapitre 5

Modélisations numériques des déformations d'interfaces liquides soumises uniquement aux effets de la diffusion de l'onde incidente en volume

Lors du chapitre 4, nous avons mis en place une base de résultats expérimentaux à l'aide d'un système fluide exhibant une très faible tension interfaciale mais ne diffusant pas l'onde incidente. Les différentes configurations expérimentales accessibles via notre dispositif optique ont été étudiées mettant en exergue et confirmant un certain nombre de comportements fondamentaux résultants de l'interaction d'une onde électromagnétique au niveau de l'interface liquide d'un échantillon diphasique transparent. Seuls les effets relatifs à la pression de radiation optique ont donc été pris en compte.

Parallèlement, nous avons montré au chapitre 2 que lorsque l'échantillon liquide diphasique diffuse l'onde incidente, le transfert de quantité de mouvement entre la lumière et le fluide dans lequel elle se propage induit une force en volume permettant l'établissement d'écoulements permanents au sein du fluide. Lorsque la tension interfaciale est suffisamment basse, les contraintes visqueuses associées à ces écoulements, à l'approche de l'interface molle, sont en mesure de la déformer.

Au cours de ce chapitre nous proposons une étude numérique des déformations d'interfaces liquides résultant uniquement de l'action relative aux effets de la force diffusive présente dans l'une ou les deux phases d'un échantillon dont les propriétés correspondent à un système quasi–critique composé de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre. Ce système, étudié expérimentalement au chapitre 7, nous permet, par l'intermédiaire d'un contrôle précis en température, de moduler à la fois l'amplitude de la tension interfaciale et celle de la force diffusive. En revanche, nous considérons que la pression de radiation optique est inactive.

L'étude numérique est réalisée à l'aide d'un code développé au sein de notre équipe de recherche par H. Chraïbi. Les différents paramètres utilisés en expérience sont pris en compte tels que le contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides (Δn), le

rayon au col du faisceau (ω_0) ou encore la puissance laser (P). [1]

L'équation d'équilibre de l'interface liquide soumise aux effets de la force diffusive est résolue par une méthode des éléments de frontière (appelée BEM, *Boundary Element Method* en anglais). Une brève description de cette modélisation numérique est donnée section 3.2 et est détaillée dans le manuscrit de thèse de H. Chraïbi [85] et dans la référence [74].

Nous allons tout d'abord évaluer l'influence de la force diffusive sur l'interface liquide molle dans différentes configurations : force diffusive présente dans l'une des deux phases de l'échantillon liquide (phase inférieure ou phase supérieure), puis dans les deux phases de l'échantillon comme cela est le cas pour le système fluide diffusant étudié au chapitre 7. Nous étudierons dans cette dernière configuration, l'évolution des déformations d'interfaces observées suivant les paramètres de l'onde excitatrice afin d'essayer de prédire certains comportements que nous confrontrerons par la suite à des expériences.

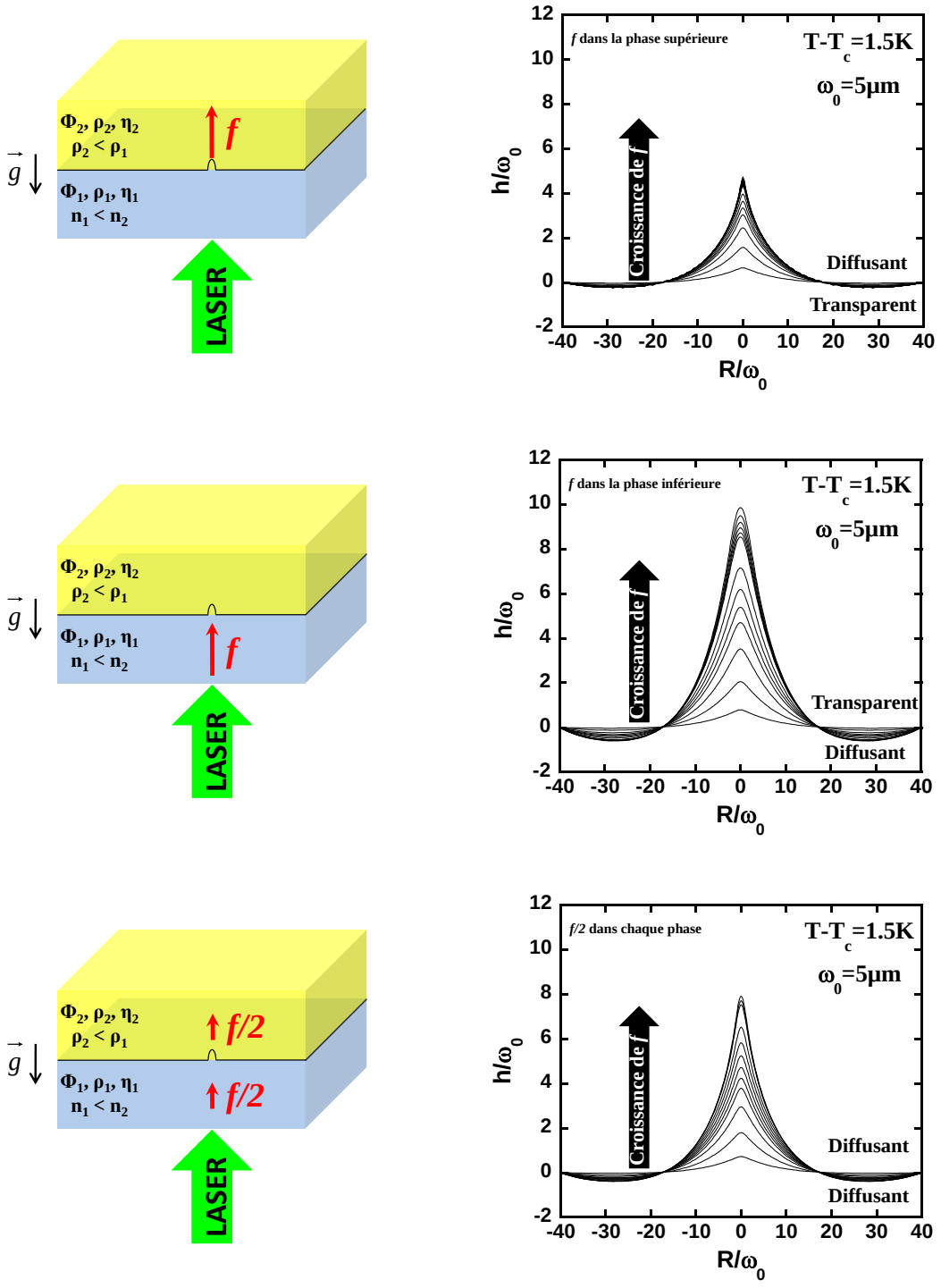
5.1 Influences des effets de la force diffusive à la déformation d'une interface liquide molle

Nous allons présenter, dans cette partie, les différentes prédictions issues des simulations numériques que nous avons effectuées en absence de pression de radiation optique sur l'interface liquide d'un échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion. Uniquement les effets relatifs à la force diffusive sont pris en compte. Nous avons réalisé une étude des déformations d'interfaces liquides lorsque la force diffusive est distribuée de manières diverses dans l'échantillon diphasique.

Nous avons tout d'abord considéré un échantillon diphasique dont une seule des deux phases liquides en coexistence diffuse l'onde incidente puis nous avons, dans un second temps, réparti la force diffusive totale de manière égale dans chaque phase. Ce protocole d'étude est exposé schématiquement figure 5.1 (a). La figure 5.1 (b) représente l'évolution du profil de déformation de l'interface liquide en fonction de la densité de force diffusive totale (chaque évolution du profil de déformation est mis en parallèle de la configuration d'étude correspondante). Les résultats présentés figure 5.1 correspondent à la déformation de l'interface liquide d'un échantillon dont les propriétés correspondent à celles des phases micellaires de microémulsion quasi–critique régulées en température à l'approche d'une transition de phase du second ordre. Le lecteur est invité à se reporter à l'annexe A.2 pour plus de détails concernant la méthode de réalisation et les propriétés physico–chimiques de ce type d'échantillon. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 5$ µm, se propage de façon ascendante (*i.e.* depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent). L'échantillon critique est régulé en température à $T - T_C = 1.5$ K où T est la tempérture de l'échantillon et T_C sa température critique.

La modélisation numérique nous permet d'avoir un contrôle total sur l'amplitude de la force diffusive ainsi que sa participation dans l'une ou les deux phases liquides de l'échan-

1. Tous les calculs issus des modélisations numériques sont effectués en prenant comme amplitude critique de la largeur de la courbe de coexistence : $\Delta\Phi_0 = 0.275$ et comme amplitude critique de la susceptibilité osmotique isotherme : $\chi^-_{T0} = 0.65.10^{-6}$ Pa^{-1}.



(a) (b)

Fig. 5.1 – *(a) Illustration schématique des géométries de simulation utilisées pour l'étude de l'influence de la force diffusive dans l'une ou les deux phases d'un échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion. (b) Évolution du profil de déformation de l'interface liquide en fonction de la densité de force diffusive totale, notée f. La représentation utilisée correspond à la hauteur de déformation normalisée à ω_0 en fonction de l'extension radiale de la déformation adimensionnée à ω_0. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 5$ µm, se propage de manière ascendante. L'échantillon critique est régulé à $T - T_C = 1.5$ K.*

tillon critique diphasique. Nous avons choisi ici d'étudier les cas suivants : l'essentiel de la force diffusive se trouve dans la phase supérieure de l'échantillon, la phase inférieure étant considérée comme transparente ; l'essentiel de la force diffusive se trouve dans la phase inférieure de l'échantillon, la phase supérieure étant considérée comme transparente ; enfin, la force diffusive est répartie équitablement entre les deux phases de l'échantillon diphasique, chaque phase comportant une force diffusive égale à $f/2$.

f représente la densité de force diffusive totale adimensionnée, définie comme [74] :

$$f = \frac{f^{scatt}}{F_\sigma}, \tag{5.1}$$

avec f^{scatt}, l'amplitude de la force diffusive totale introduite section 2.2 et où $F_\sigma = \frac{\sigma}{\omega_0}$ décrit les effets capillaires. Après réécriture, on a :

$$f = \frac{D\chi_T I}{\sigma/\omega_0}, \tag{5.2}$$

avec χ_T la susceptibilité osmotique isotherme de la microémulsion, I l'intensité du faisceau laser et où D décrit les interactions de l'onde incidente avec les fluctuations d'indice de réfraction du milieu (voir section 2.2 et annexe A.2). Enfin, l'intensité étant directement proportionnelle à la puissance laser P, la densité de force diffusive totale adimensionnée se comporte comme :

$$f \sim \frac{D\chi_T\omega_0}{\sigma}P. \tag{5.3}$$

Ainsi, lors de l'étude numérique que nous avons réalisé, la variation de la densité de force diffusive totale adimensionnée, f, est équivalente à une variation de la puissance laser P lorsque l'écart à la température critique, $T - T_C$, est fixé.

Les évolutions correspondantes de la hauteur maximale de déformation en fonction de f sont données, pour chaque configuration, figure 5.2. La hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, correspond à l'altitude maximale atteinte par la déformation d'interface par rapport à l'interface au repos (en absence de source excitatrice). Sur la figure 5.2, h_{max} est adimensionnée au rayon au col du faisceau incident, ω_0.

Ces choix de configurations ont pour but d'illustrer différentes situations physiques remarquables : (i) quand le milieu incident est transparent, on tente de décrire un comportement de type « entrainement visqueux » [13, 86] car la force diffusive « tire » l'interface liquide. (ii) Lorsque la phase incidente est tubride, il s'agit plutôt d'un effet de type « fontaine capillaire » [87–89] sachant que la force diffusive « pousse » l'interface. (iii) Enfin, lorsque les deux phases liquides sont diffusantes, nous décrivons un mélange des deux effets précédents.

Nous reviendrons plus en détail sur ces comportements et leur intérêt dans les chapitres expérimentaux dédiés.

De légères différences sont appréciables lors de l'évolution des morphologies adoptées par l'interface liquide déformée lorsque f augmente suivant les configurations présentées figure 5.1. En effet, lorsque seule la phase supérieure diffuse l'onde incidente, les profils de déformations obtenus sont d'extension radiale plus faible que lorsque uniquement la phase inférieure diffuse. D'autre part, l'amplitude de la déformation est beaucoup plus

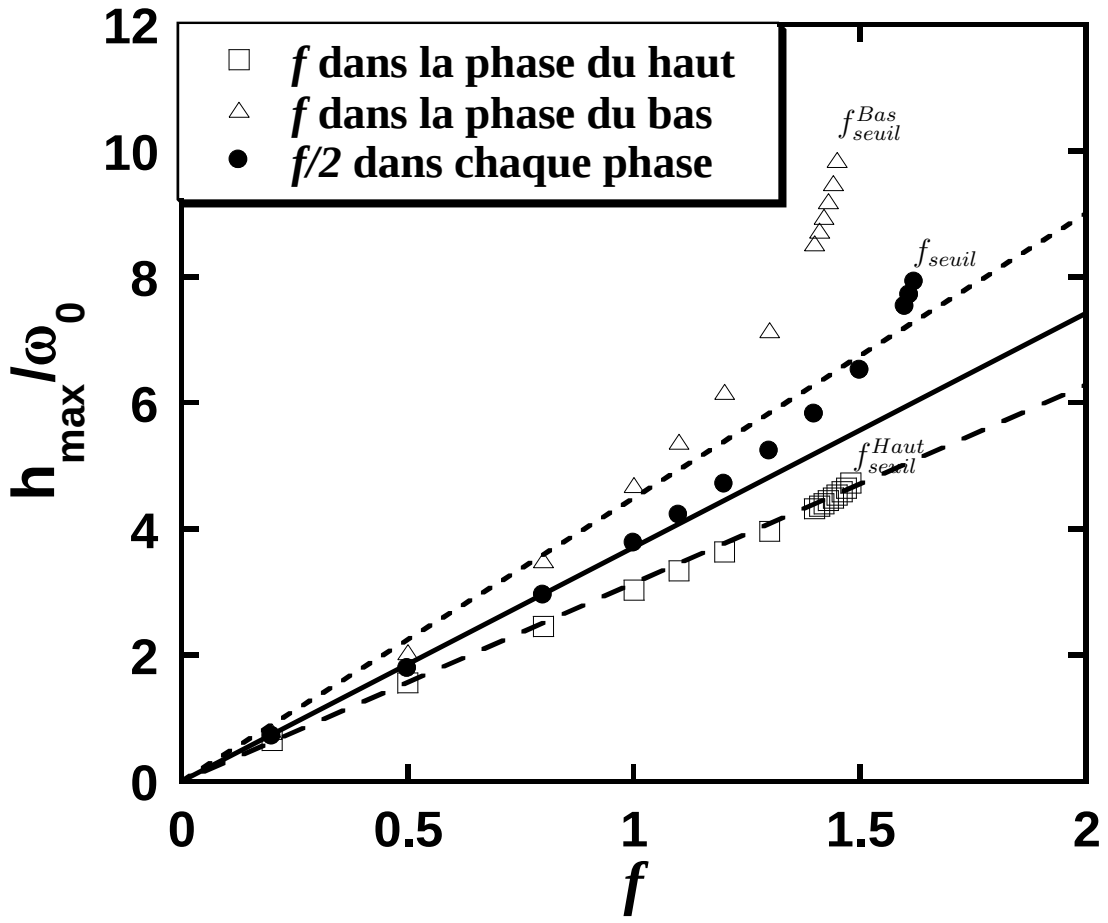


Fig. 5.2 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, normalisée à ω_0, en fonction de la densité de force diffusive adimensionnée f pour les différentes configurations étudiées sur la figure 5.1. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 5$ µm, se propage de façon ascendante et l'échantillon est régulé à $T - T_C = 1.5$ K. □ : seule la phase supérieure de l'échantillon est diffusante. △ : seule la phase inférieure de l'échantillon est diffusante. • : chaque phase comporte une amplitude de force diffusive équivalente ($f/2$). Les traits plein et en pointillés correspondent à une régression linéaire effectuée sur les données jusqu'à la valeur $f = 1$. f_{seuil} correspond à la valeur seuil de la force diffusive au–delà de laquelle l'interface est déstabilisée lorsque chaque phase de l'échantillon diffuse l'onde incidente (f_{seuil}^{Bas} : phase inférieure diffusante et f_{seuil}^{Haut} : phase supérieure diffusante).*

importante lorsque seule la phase inférieure de l'échantillon diffuse la lumière. La configuration où les deux phases liquides diffusent l'onde incidente et comportent chacune une amplitude de force diffusive égale à $f/2$ présente des morphologies de déformations intermédiaires aux deux cas « extrêmes » présentés plus haut, tant en terme d'extension radiale que d'amplitude.

L'étude en détail de l'évolution de h_{max}/ω_0 en fonction de f, reportée figure 5.2, traduit bien l'écart d'amplitude de la déformation d'interface obtenue suivant la configuration choisie. En outre, ce graphique nous permet d'évaluer le comportement de la

hauteur maximale de déformation lorsque f augmente (ce qui est équivalent à considérer le comportement de h_{max}/ω_0 en fonction de la puissance laser car l'écart à la température critique et ω_0 sont fixés).

De manière qualitative, nous pouvons observer différents régimes de déformations lors de l'évolution de h_{max}/ω_0 en fonction de f. Tout d'abord, la hauteur maximale de déformation se comporte linéairement avec f lorsque celle–ci est modérée, pour preuve l'ajustement fructueux des données modélisées par une régression linéaire lorsque $f \leq 1$ (voir figure 5.2). Au–delà de ce régime linéaire, le comportement de la hauteur maximale de déformation dévie vers un régime non–linéaire et finalement diverge brutalement pour une valeur particulière, notée f_{seuil} (autrement dit, pour une puissance seuil P_{seuil}, voir figure 5.3 (b)). Ce scénario est similaire à celui mis en évidence lors du chapitre 4 où uniquement les effets de la pression de radiation optique étaient pris en compte au niveau de l'interface d'un échantillon diphasique transparent. Rappelons ici que les simulations numériques sont réalisées en absence de pression de radiation. Uniquement les effets relatifs à la force diffusive sont considérés (*i.e.* modélisation des écoulements en volume générés par le transfert de quantité de mouvement entre l'onde incidente et le fluide environnant).

Ainsi, lorsque la force diffusive totale est supérieure à f_{seuil} (*i.e.* $P > P_{seuil}$ lorsque $T - T_C$ et ω_0 sont fixés), l'interface liquide de l'échantillon considéré se déstabilise et nous observons numériquement l'émergence d'un jet liquide induit dans le sens de propagation de l'onde incidente. Au–delà de ce seuil, la convergence du code numérique devient ardue car il n'a pas été développé pour modéliser cette instabilité de jet. En revanche, nous sommes en mesure d'observer, pour quelques valeurs de $f > f_{seuil}$, le développement de cette instabilité d'interface liquide dont la divergence de la dynamique de déformation traduit la déstabilisation. Sur la figure 5.3 sont reportés les profils de déformations obtenus pour $f = 1.5$, $f = f_{seuil} = 1.62$ et $f = 1.8$. Alors que les profils pour $f = 1.5$ et $f = f_{seuil} = 1.62$ sont stationnaires, celui présenté pour $f = 1.8$ ($f > f_{seuil}$) correspond au profil de déformation instationnaire pour $t/\tau = 100$, l'instabilité étant déclenchée. En parallèle leur évolution temporelle est présentée figure 5.3 (b) (la hauteur de déformation est adimensionnée à ω_0 alors que le temps est normalisé à un temps caractéristique de croissance, noté τ).

Par l'intermédiaire de cette étude numérique, nous mettons en évidence l'existence d'une instabilité d'interface liquide induite uniquement par les effets relatifs à la force diffusive, au–delà d'un seuil en puissance. Nous établissons donc une première prédiction numérique de l'émergence d'un jet liquide induit, dans le sens de propagation de l'onde incidente, par les écoulements en volume générés par la diffusion de la lumière dans le milieu. De plus, nous montrons que cette instabilité d'interface, due à la force diffusive, peut être induite dans les trois configurations présentées ci–dessus : action de la force diffusive dans l'une ou les deux phases de l'échantillon diphasique considéré. Enfin, d'après la figure 5.2, les amplitudes des forces diffusives totales nécessaire à la déstabilisation de l'interface suivant les trois cas sont relativement voisines. Toutefois, lorsque les deux phases liquides sont diffusantes, la force diffusive totale nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est une peu plus forte que dans les deux autres cas. Une explication qualitative de ce phénomène est décrite par la figure 5.4.

En effet, alors que lorsqu'une seule phase est diffusante, les contraintes visqueuses participants à la déformation de l'interface ne sont présentes que dans la seule phase diffusante, quand les deux phases liquides sont turbides, les écoulements sont générés dans les deux phases en présence. Ainsi, l'interface liquide est cisaillée car la force agit dans

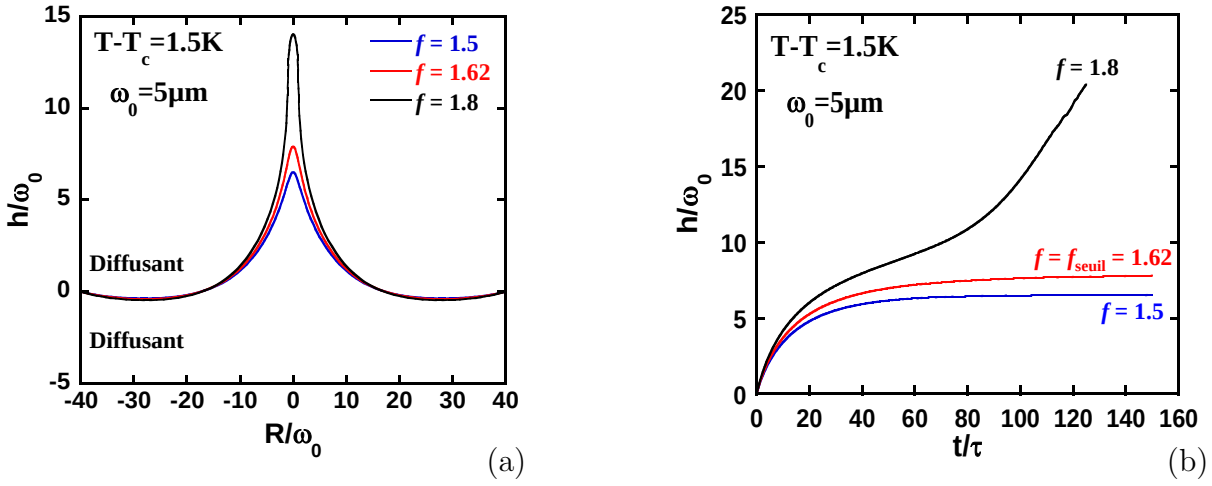


Fig. 5.3 – *(a) Modélisation numérique des profils de déformations de l'interface liquide pour $f = 1.5$, $f = f_{seuil} = 1.62$ et $f = 1.8$. L'échantillon est composé de phases micellaires de microémulsion. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 5$ µm, se propage de manière ascendante. L'échantillon critique est régulé à $T - T_C = 1.5$ K. Le profil pour $f = 1.8$ correspond à l'instant $t/\tau = 100$ de la dynamique présentée figure 5.3 (b). (b) Évolutions temporelles de la hauteur maximale de déformation pour différentes valeurs de la densité de force diffusive adimensionnée (dynamique stationnaire pour $f = 1.5$, dynamique obtenue au seuil d'instabilité pour $f = 1.62$ et au–delà pour $f = 1.8$).*

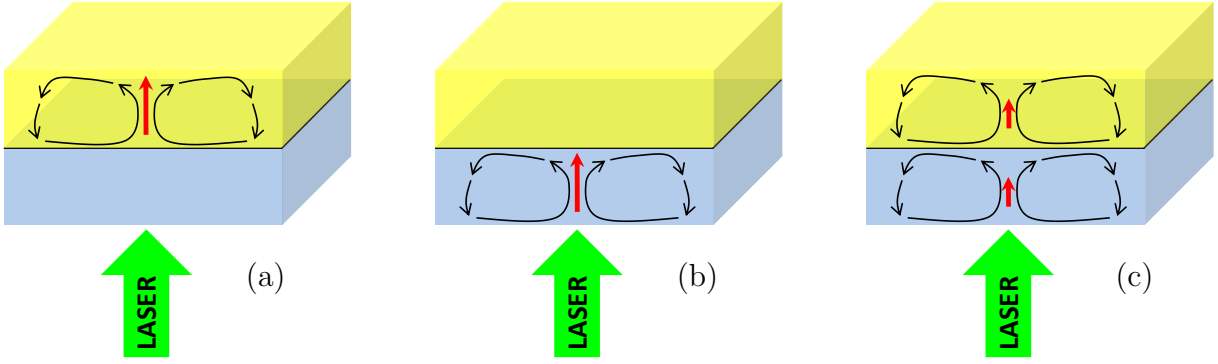


Fig. 5.4 – *Illustration des trois configurations permettant une explication qualitative des différences observées concernant les forces diffusives totales nécessaires à la déstabilisation de l'interface liquide. L'onde incidente se propage de manière ascendante. (a) La phase diffusante est la phase supérieure. (b) La phase diffusante est la phase inférieure. (c) Les deux phases liquides sont diffusantes. Les flèches schématisent les écoulements induits par la diffusion de la lumière. La figure (c) illustre pourquoi l'interface est cisaillée contrairement aux deux autres situations (a) et (b).*

la même direction dans les deux phases. Ce cisaillement pourrait être à l'origine d'un « ralentissement » dans le déclenchement de l'instabilité mise en évidence et donc il est nécessaire d'appliquer une amplitude de force diffusive un peu plus importante pour déstabiliser l'interface liquide.

Rappelons ici qu'il s'agit de cas idéaux pour lesquels nous pouvons contrôler la pré-

sence ou non de cette force diffusive dans la phase liquide de notre choix sur un même système fluide. Cette aisance dans la manipulation de la position et de l'action de la force diffusive est difficilement réalisable expérimentalement sur un même système. Néanmoins, nous confronterons cette prédiction numérique d'une instabilité d'interface liquide sous l'action des effets de la force diffusive à l'expérience lors des prochains chapitres expérimentaux.

Lors de la prochaine section, nous détaillons les comportements prédits numériquement des déformations de l'interface liquide séparant deux phases liquides diffusantes et isotropes.

5.2 Modélisations numériques des déformations d'une interface liquide séparant deux phases diffusantes et isotropes

Cette partie est exclusivement dédiée à l'étude des comportements des déformations de l'interface liquide d'un échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre. Ce système fluide modélisé correspond à celui utilisé expérimentalement, dont une étude complète sera présentée au chapitre 7. Les échantillons issus de la réalisation de ce système fluide présentent deux phases liquides diffusantes et isotropes. La force diffusive est donc opérante dans chacune des phases et les écoulements générés par l'intermédiaire du transfert de quantité de mouvement entre l'onde incidente et le milieu environnant prennent place au sein de chaque phase de l'échantillon diphasique.

5.2.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser

Nous avons étudié numériquement l'évolution de la hauteur maximale de déformation d'interface liquide en fonction de la puissance laser pour différents rayons au col du faisceau incident. Les résultats obtenus pour un échantillon critique régulé en température à $T - T_C = 1.5$ K sont présentés figure 5.5. L'onde incidente se propage de façon ascendante (*i.e.* depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent).

L'allure globale de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser, introduite au début de ce chapitre (figure 5.2) n'est pas altérée par la variation en ω_0.

Suite à un régime linéaire de déformation aux plus basses puissances, l'évolution de la hauteur de déformation dévie de ce comportement linéaire avec l'augmentation de la puissance laser à de plus fortes valeurs. Cette évolution en puissance se clôture par la divergence de la hauteur maximale de déformation normalisée à ω_0 pour une puissance particulière, apparentée à une puissance seuil d'instabilité, notée P_{seuil}. Au–delà de P_{seuil}, l'interface se déstabilise provoquant l'émergence d'un jet liquide dans le sens de propagation de l'onde incidente.

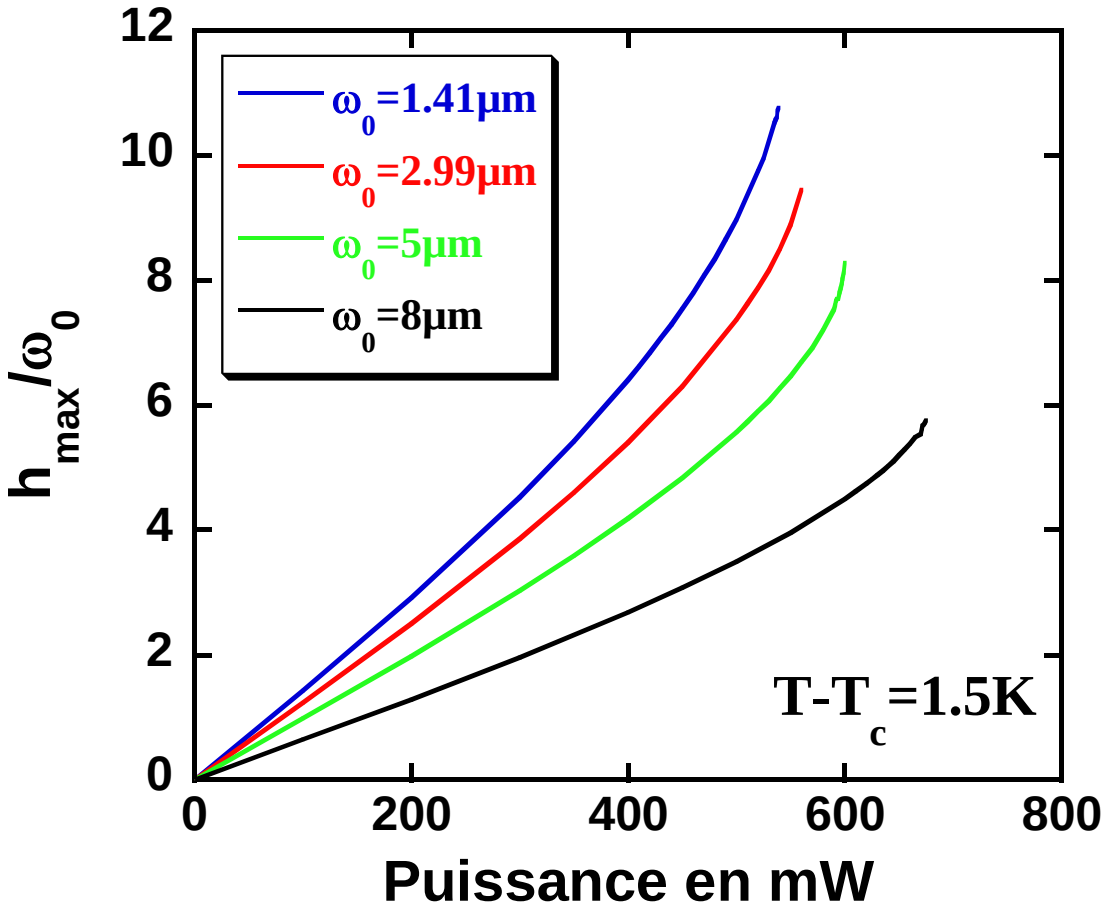


Fig. 5.5 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, normalisée à ω_0, en fonction de la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide d'un échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion régulé à $T - T_C = 1.5$ K. Les différents rayons au col du faisceau utilisés sont reportés sur le graphique. L'onde incidente se propage de façon ascendante.*

À l'aide de la figure 5.5, nous pouvons également prévoir que la puissance nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est d'autant plus importante que le rayon au col du faisceau laser augmente. Nous allons dans la partie suivante étudier brièvement son évolution.

5.2.2 Comportement de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau incident

L'instabilité d'interface liquide engendrée uniquement par les effets de la force diffusive, mise en évidence numériquement au début de ce chapitre, évolue en fonction du rayon au col du faisceau ω_0. En effet, la puissance laser nécessaire au déclenchement de cette instabilité, induite par les contraintes visqueuses au niveau de l'interface molle liées aux écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu, n'est pas constante en fonction de ω_0.

L'évolution numérique de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ω_0 est reportée figure 5.6.

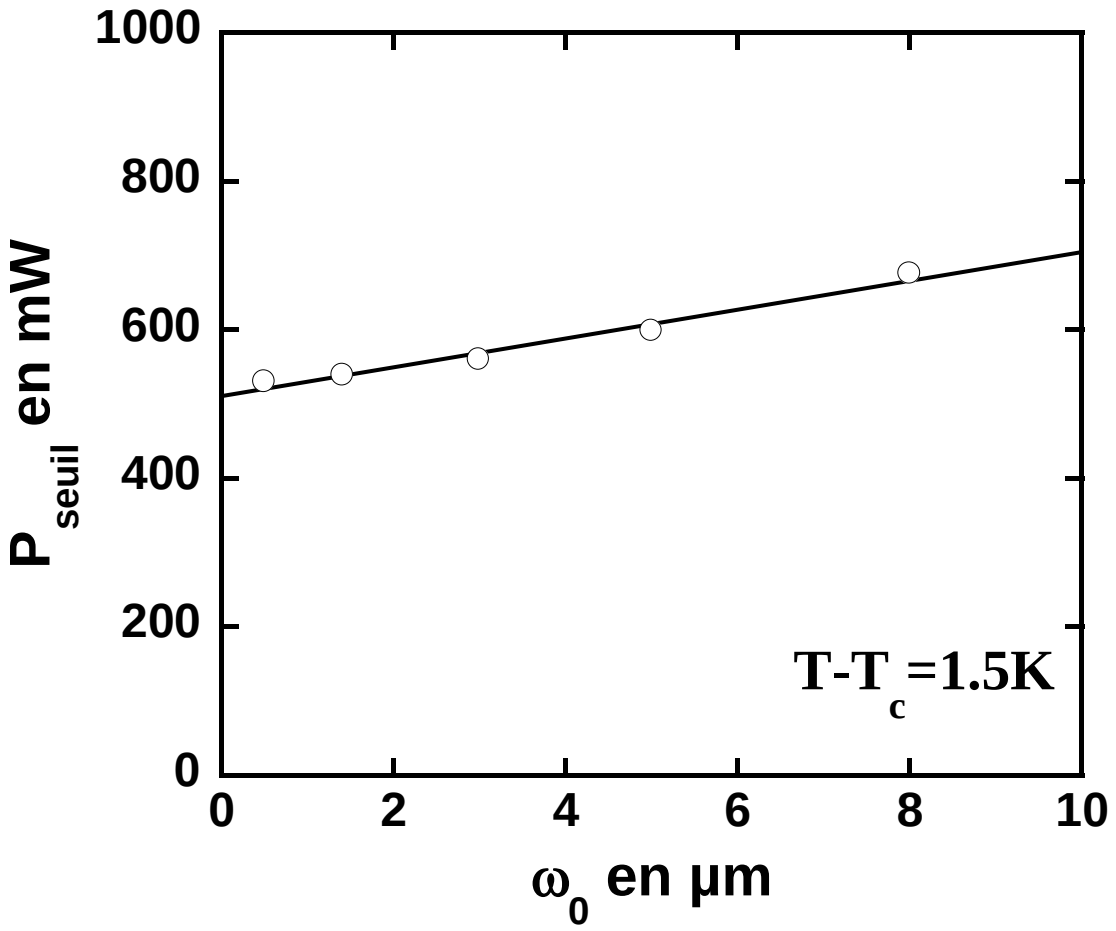


Fig. 5.6 – *Évolution de la puissance seuil d'instabilité, notée P_{seuil}, en fonction du rayon au col du faisceau, ω_0. L'échantillon critique est régulé en température à $T - T_C = 1.5$ K. L'onde incidente se propage de façon ascendante. Le trait plein correspond à l'ajustement des résultats numériques par une loi affine.*

L'évolution de la puissance nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide par les effets de la force diffusive, en fonction de ω_0 (figure 5.6), traduit une très faible augmentation de la puissance seuil d'instabilité en fonction de ω_0 déjà présentée indirectement figure 5.5. Nous observons un comportement affine de faible pente de P_{seuil} lorsque ω_0 croît comme cela est confirmé par l'ajustement des résultats numériques (représentée en trait plein sur la figure 5.6).

Ce résultat est *a priori* surprenant car si l'on extrapole ce comportement lorsque $\omega_0 \to 0$, on remarque qu'une puissance non–nulle (et donc une intensité laser non–nulle) est nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide par les effets diffusifs.

Si on interprète ceci du point de vue des contraintes visqueuses associées aux écoulements en volume générés par la diffusion de la lumière, la composante normale du tenseur des contraintes s'écrit [74] :

$$T_{zz} = -p(r,z) + 2\eta_1 \frac{\partial u_z}{\partial z}, \tag{5.4}$$

où $p(r,z)$ est le champ de pression, η_1 est la viscosité dynamique de la phase 1 (phase liquide inférieure de l'échantillon) et u_z la vitesse axiale de l'écoulement qui se comporte comme $U_f \log(L_1/\omega_0)$ lorsque le rayon au col du faisceau de l'onde incidente est relativement faible (avec U_f la vitesse caractéristique de l'écoulement induit en volume par la diffusion de la lumière dans le milieu et L_1 la hauteur de fluide de la phase 1).

D'après [74], nous pouvons réécrire la composante normale du tenseur des contraintes telle que :

$$T_{zz} = -\eta_1 \frac{U_f \log(L_1/\omega_0)}{\pi} kS(r) \cos kz, \tag{5.5}$$

avec $k = \pi/L_1$ et $S(r)$ une fonction indépendante de ω_0 détaillée dans la référence [74]. Ainsi, on peut écrire que la composante normale des contraintes visqueuses se comporte comme :

$$T_{zz} \propto -\eta_1 \frac{U_f \log(L_1/\omega_0)}{\pi} \frac{\pi}{L_1}. \tag{5.6}$$

Or, $U_f = \frac{F_1 \pi \omega_0^2}{\eta_1}$, avec F_1 la densité de force diffusive dans la phase 1 : $F_1 \propto I \propto \frac{P}{\omega_0^2}$. L'expression 5.6 peut donc se réécrire :

$$T_{zz} \propto -\frac{P}{L_1} \log(L_1/\omega_0), \tag{5.7}$$

exhibant une faible dépence en ω_0.

Ainsi, si l'on estime que le déclenchement de l'instabilité d'interface mise en évidence plus haut correspond à la rupture de l'équilibre existant entre la courbure de l'interface liquide et les contraintes visqueuses associées aux écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente, le seuil d'instabilité doit comporter la faible dépendance en ω_0 relative aux contraintes visqueuses. C'est bien ce que nous observons à l'aide de la figure 5.6 où la puissance seuil d'instabilité est faiblement dépendante de ω_0 (en absence de pression de radiation optique). Cela signifie que l'instabilité observée dépend donc principalement de l'énergie déposée dans le milieu et non de la façon dont celle–ci est déposée.

La caractérisation de la puissance seuil d'instabilité en ω_0 nous permet de reprendre l'étude préliminaire de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance en tenant compte du comportement au seuil d'instabilité.

5.2.3 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de l'écart au seuil d'instabilité

Nous venons de démontrer par une étude numérique que la puissance seuil d'instabilité varie de manière affine lorsque le rayon au col du faisceau incident croît. Afin de tenter une certaine « harmonisation » des résultats précédents en fonction des différents ω_0, nous allons étudier à nouveau ces évolutions en fonction du seuil d'instabilité. Nous avons donc retracé les résultats obtenus en fonction de (h_{max}/h_{seuil}) et de (P/P_{seuil}).

Les résultats dans cette représentation particulière, pour tous les rayons au col du faisceau utilisés, sont regroupés sur la figure 5.7 (les résultats sont présentés en échelle logarithmique).

La représentation en fonction du seuil d'instabilité, exposée figure 5.7, permet de faire apparaître un seul comportement quelque soit le rayon au col du faisceau utilisé. Tous les

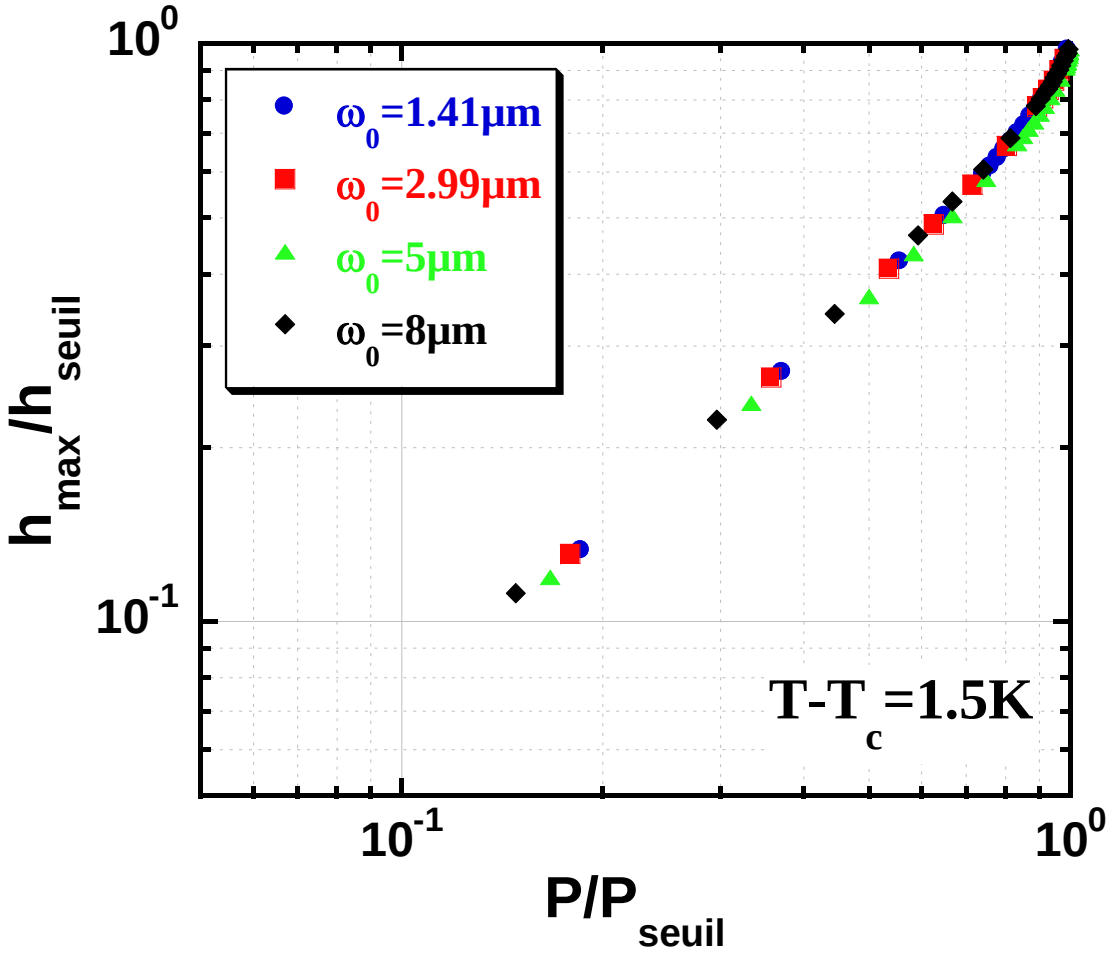


Fig. 5.7 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, normalisée à la hauteur maximale atteinte au seuil d'instabilité, en fonction de la puissance laser normalisée à la puissance seuil d'instabilité. L'onde excitatrice se propage de manière ascendante et l'échantillon critique est régulé à* $T - T_C = 1.5$ K.

résultats numériques issus des différents ω_0 utilisés se regroupent suivant une même loi. Ce qui signifie que le rapport de la hauteur maximale de déformation à la hauteur atteinte au seuil d'instabilité est indépendant du rayon au col du faisceau, ω_0.

5.3 Conclusion

L'objectif de ce chapitre était de présenter une étude numérique (non exhaustive) des déformations d'interfaces liquides résultants des effets de la force diffusive. En effet, contrairement au chapitre expérimental précédent (chapitre 4) où seuls les effets de la pression de radiation optique participaient à la déformation de l'interface liquide d'un échantillon transparent, l'étude numérique réalisée dans ce chapitre s'affranchit des effets de la pression de radiation pour ne se focaliser que sur les effets inhérents à la force diffusive.

La modélisation numérique est effectuée à l'aide d'un code développé au sein de notre

équipe de recherche. Son avantage est un contrôle total quant à l'amplitude de la force diffusive et sa participation dans l'une ou les deux phases liquides de l'échantillon. L'échantillon diphasique modélisé correspond à l'un des différents systèmes fluides utilisés expérimentalement au cours de cette thèse et dont une étude complète sera présentée au chapitre 7.

Nous avons procédé à une étude numérique de la déformation de l'interface liquide issue de ce système selon différentes configurations : premièrement, la force diffusive est présente dans l'une des deux phases liquides (phase supérieure ou inférieure) puis dans un second temps, la force diffusive est répartie équitablement dans les deux phases liquides de l'échantillon diphasique.

Cette analyse préliminaire nous a permis d'une part d'évaluer l'allure de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la force diffusive totale adimensionnée, cette dernière étant directement proportionnelle à la puissance laser.

Le résultat fondamental de cette première étude numérique est la mise en évidence de l'existence d'une instabilité d'interface liquide lorsque la force diffusive dépasse un certain seuil. Cette instabilité d'interface, induite uniquement par les effets relatifs à la force diffusive, à savoir la présence d'écoulements permanents générés par le transfert de quantité de mouvement entre l'onde incidente et le milieu environnant, est observable dans chaque configuration (*i.e.* une seule phase liquide est diffusante ou les deux phases liquides le sont). Lorsque l'amplitude de la force diffusive est suffisante (ce qui correspond à une puissance laser suffisante pour un écart à la température critique et un rayon au col du faisceau fixés), on observe la déstabilisation de l'interface et l'émergence d'un jet liquide induit dans le sens de propagation de l'onde incidente. Cette prédiction numérique fera l'objet d'une investigation particulière lors des prochains chapitres expérimentaux.

Nous avons par la suite considéré un échantillon diphasique dont les deux phases liquides diffusent l'onde incidente et nous avons étudié l'influence du rayon au col du faisceau lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser.

Le seuil d'instabilité, provoquée par les effets relatifs à la force diffusive, a été caractérisé en ω_0. Nous montrons numériquement que la puissance nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide (notée P_{seuil}) dépend faiblement de ω_0, de manière affine.

Pour conclure ce chapitre « numérique », nous avons réinterprété les résultats issus de l'évolution de h_{max}/ω_0 en fonction de P pour les différents rayons au col du faisceau utilisés en fonction de la proximité au seuil d'instabilité. Nous avons ainsi démontré que le rapport (h_{max}/h_{seuil}) en fonction de (P/P_{seuil}) est indépendant du rayon au col du faisceau, ω_0.

Lors des prochains chapitres expérimentaux, nous allons étudier successivement l'influence des effets de la force diffusive lorsqu'une seule phase est diffusante puis lorsque les deux phases liquides de l'échantillon diffusent l'onde incidente. Pour ce faire, nous aurons recours à différents systèmes fluides (détaillés en annexe A). Nous pourrons ainsi valider (ou non) l'existence d'instabilité d'interface liquide induite par les écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu. D'autre part, nous reviendrons sur les différents comportements prédits dans ce chapitre afin de les confronter

aux expériences.

Chapitre 6

Déformations d'interfaces liquides séparant un fluide transparent et un fluide diffusant

Au cours du chapitre précédent (chapitre 5), nous avons établi un certain nombre de prédictions numériques décrivants la déformation d'une interface liquide molle soumise aux contraintes visqueuses résultant de la mise en place d'écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu. Nous avons notamment pu mettre en évidence la possibilité d'induire une instabilité d'interface liquide par des effets purement diffusifs, que ceux–ci soient présents dans l'une ou les deux phases de l'échantillon diphasique considéré.

Ces différentes prédictions ont été réalisées en absence de pression de radiation optique.Tous les systèmes fluides utilisés au cours de cette thèse présentent néanmoins un contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides en coexistence de sorte que les expériences exhiberont toujours les deux composantes pression de radiation et force diffusive.

Dans le présent chapitre, nous considérons un échantillon fluide diphasique dont une seule phase liquide est diffusante alors que l'autre phase est transparente vis–à–vis de l'onde incidente. Nous utiliserons différentes configurations expérimentales afin de démontrer expérimentalement l'existence de cette instabilité d'interface (prédite numériquement) induite uniquement par les effets de la force diffusive présente dans l'une des deux phases liquides de l'échantillon diphasique.

6.1 Système fluide utilisé : phases de Winsor à base de n–dodécane en équilibre de Winsor III

Afin de produire des échantillons fluides diphasiques composés d'une phase liquide transparente en coexistence avec une phase liquide diffusante, séparées par une interface extrêmement déformable, nous avons eu recours à un système fluide issu d'un mélange eau salée – AOT – dodécane. L'ajustement de la concentration en sel de ce mélange permet d'explorer différents équilibres de phases liquides assimilées à des phases de Winsor (annexe A.1.4). Pour un intervalle déterminé en salinité, nous obtenons trois phases liquides

en coexistence décrivant un équilibre de Winsor III. L'échantillon ainsi réalisé comporte une phase en excès d'huile, une phase aqueuse (composée d'eau salée) et une phase L_3 (ou *phase éponge*) constituée de bicouches d'AOT ayant incorporées très peu d'huile. Cette dernière phase liquide jouera le rôle de la phase diffusante de notre échantillon diphasique alors que la phase aqueuse représentera la phase transparente car la tension interfaciale entre la phase L_3 et la phase aqueuse est tellement basse qu'à notre connaissance, elle n'a pas été mesurée. Les propriétés ainsi que la méthode de préparation de ce type d'échantillon sont présentées en détail dans l'annexe A.1.4.

Il est à noter que l'une des différences fondamentales entre ce système fluide et tous les autres utilisés au cours de cette thèse réside dans la position de la phase liquide d'indice de réfraction le plus élevé et celle d'indice le plus faible. En effet, alors que pour les autres systèmes fluides utilisés, le milieu d'indice optique le plus faible se situe dans la phase inférieure de l'échantillon diphasique, il n'en est rien dans le cas présent. La phase L_3 étant plus dense que la phase aqueuse, cette dernière se situe au–dessus de la phase L_3. D'autre part, l'indice de réfraction de la phase L_3 est plus grand que celui de la phase aqueuse compte tenu de la présence d'AOT et d'un peu d'huile. Ainsi, la phase inférieure de l'échantillon diphasique est celle qui présente l'indice optique le plus élevé.

Un contraste d'indice de réfraction (même très faible) est présent entre les deux phases liquides. Ainsi, l'interaction de l'onde incidente au niveau de l'interface molle conduira notamment en une déformation d'interface liquide induite par les effets de la pression de radiation optique. Cependant, comme nous l'avons introduit section 2.1, la déformation induite par les effets inhérents à la pression de radiation est toujours dirigée vers le milieu d'indice de réfraction le plus faible. De ce fait, contrairement aux observations réalisées sur les autres systèmes fluides, la déformation induite par les effets de la pression de radiation ne sera pas dirigée vers la phase inférieure mais bien vers la phase supérieure de l'échantillon diphasique présentant une phase diffusante en coexistence avec une phase transparente.

6.2 Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (propagation depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent)

Au cours de cette partie, l'onde incidente, issue d'un laser Nd^{3+}–YAG de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm, se propage depuis la voie haute du dispositif expérimental. Ainsi, l'onde excitatrice intercepte l'interface liquide de l'échantillon depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent.

La déformation d'interface induite par les effets de la pression de radiation optique étant dirigée dans le sens opposé au sens de propagation de l'onde incidente, elle sera donc dirigée vers la phase supérieure de l'échantillon diphasique. Cette configuration expérimentale est donc idéale pour mettre en évidence l'exitence de l'instabilité d'interface liquide induite uniquement par les effets de la force diffusive (présents dans la phase inférieure de l'échantillon). Rappelons que cette instabilité d'interface, induite par les écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu, a été prédite numériquement au cours du chapitre précédent (chapitre 5) et est dirigée dans le sens de propagation de l'onde incidente.

La figure 6.1 est une série d'images expérimentales typiques de la déformation de l'interface molle séparant une phase liquide transparente (eau salée) et une phase diffusante (phase L_3) lorsque l'onde excitatrice se propage de façon descendante (*i.e.* depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent). L'échantillon fluide utilisé est issu d'un mélange eau salée – AOT – dodécane en équilibre de Winsor III dont la salinité est égale à $[NaCl] = 0.140$ mol/L. Le rayon au col du faisceau incident est $\omega_0 = 1.41$ µm.

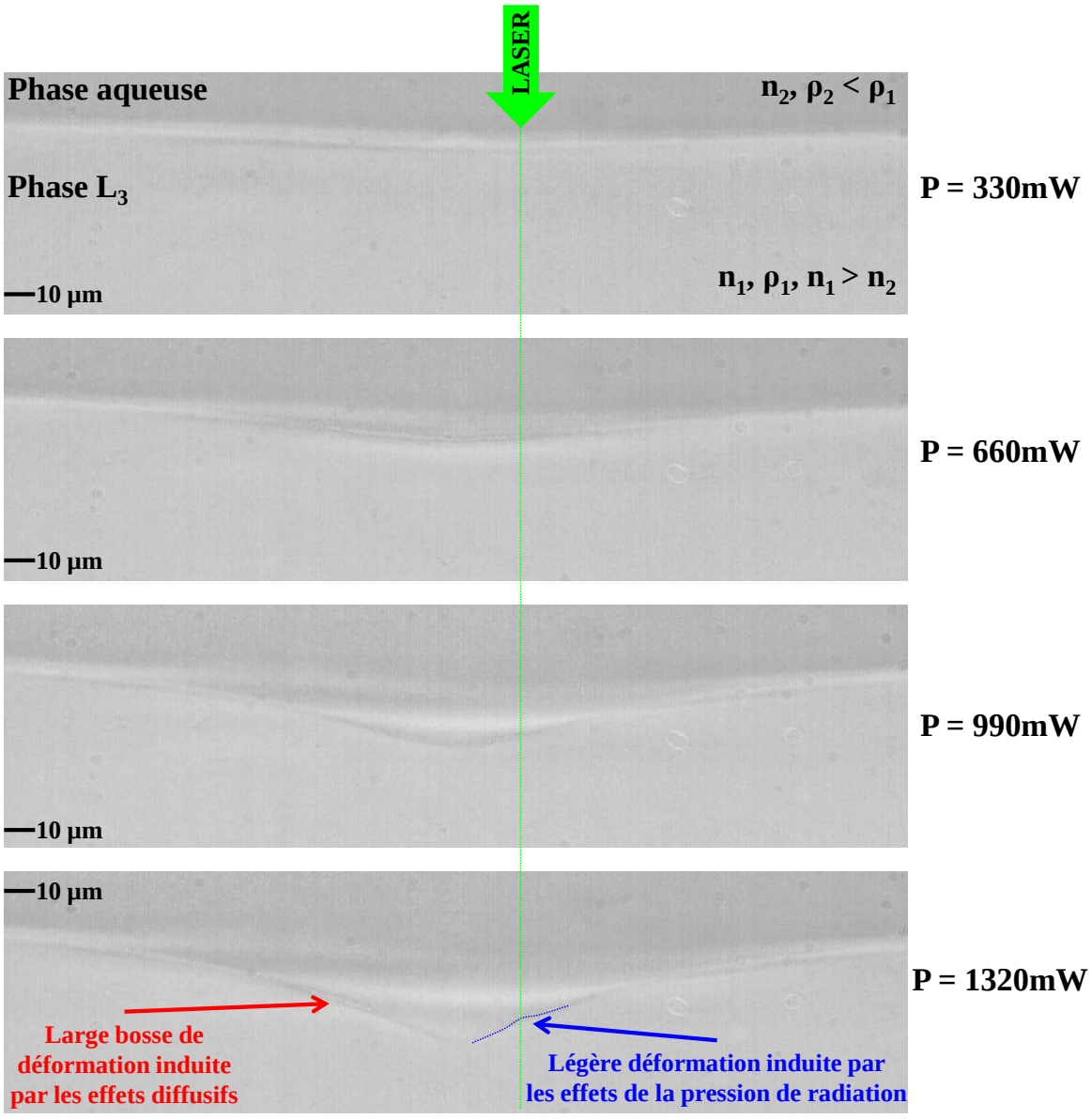


Fig. 6.1 – *Images expérimentales typique de l'évolution en puissance de la déformation de l'interface molle d'un échantillon constitué d'une phase liquide transparente en coexistence avec une phase diffusant l'onde incidente ($[NaCl] = 0.140$ mol/L). L'onde excitatrice se propage de manière descendante (i.e. depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent comme l'indique schématiquement le trait vertical en pointillés). Le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 1.41$ µm. La légère déformation induite par les effets de la pression de radiation optique est schématisée par le trait bleu en pointillés pour plus de clareté. Les images sont peu contrastées compte tenu du faible contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides en équilibre.*

La dernière image expérimentale, présentée au bas de la figure 6.1, nous permet d'apprécier la large bosse de déformation (désignée schématiquement par la flèche rouge sur la figure 6.1) induite par les effets relatifs à la force diffusive présents dans la phase inférieure de l'échantillon. En revanche, le contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides en coexistence étant extrêmement faible, d'une part la visualisation expérimentale est altérée et d'autre part la déformation d'interface induite par les effets de la pression de radiation optique est difficilement détectable. C'est la raison pour laquelle nous avons souligné schématiquement, à l'aide du trait bleu en pointillés, la position et l'allure de cette déformation. Nous pouvons remarquer également que la déformation induite par les effets diffusifs est décalée par rapport à l'axe de propagation de l'onde incidente car celle–ci est constituée de la phase aqueuse d'indice de réfraction inférieur à celui de la phase L_3.

6.2.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation induite par les effets de la force diffusive en fonction de la puissance laser

Lorsque le montage optique est réglé de telle manière que l'onde incidente se propage de façon descendante (*i.e.* depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu d'indice optique le plus fort), la hauteur maximale de déformation d'interface liquide induite par les effets relatifs à la force diffusive évolue telle que cela est présenté figure 6.2. La hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, correspond à l'altitude maximale atteinte par la bosse de déformation par rapport à l'interface au repos.

Contrairement aux études réalisées au cours des chapitres précédents, nous n'observons pas clairement différents régimes de déformations avec ce système fluide dont une seule des deux phases liquides est diffusante. En revanche, la hauteur maximale de déformation se comporte linéairement avec la puissance laser jusqu'à une certaine puissance, notée P_{seuil}, comme cela est confirmé par la régression linéaire des résultats expérimentaux pour $P < P_{seuil}$ (en trait plein sur la figure 6.2). Au–delà de cette puissance caractéristique, nous constatons un saut brutal de la hauteur maximale de déformation. Cette « discontinuité » est la signature d'un seuil en puissance traduisant la déstabilisation de l'interface liquide.

En effet, lorsque $P > P_{seuil}$, l'interface est déstabilisée et nous observons l'émergence d'un jet liquide induit dans le sens de propagation de l'onde incidente. Cette instabilité d'interface est uniquement induite par les effets relatifs à la force diffusive, à savoir la présence d'écoulements en volume au sein de la phase liquide inférieure de l'échantillon diphasique, représentée par la phase L_3.

La preuve expérimentale de la génération de cette instabilité d'interface liquide est donnée par les images de la figure 6.3 pour deux rayons au col du faisceau différents et quelques puissances laser supérieures au seuil d'instabilité.

Malgré de nombreuses difficultés en relation avec l'imagerie correcte de ces déformations d'interfaces, nous détectons sans ambiguité l'émergence d'un jet liquide émettant des gouttes en son bout, traduisant la mise en place d'un écoulement (figure 6.3).

Ce type d'instabilité de jet liquide étant induite lorsque l'interface est « tirée » par les écoulements générés par la diffusion de la lumière dans la phase inférieure de l'échan-

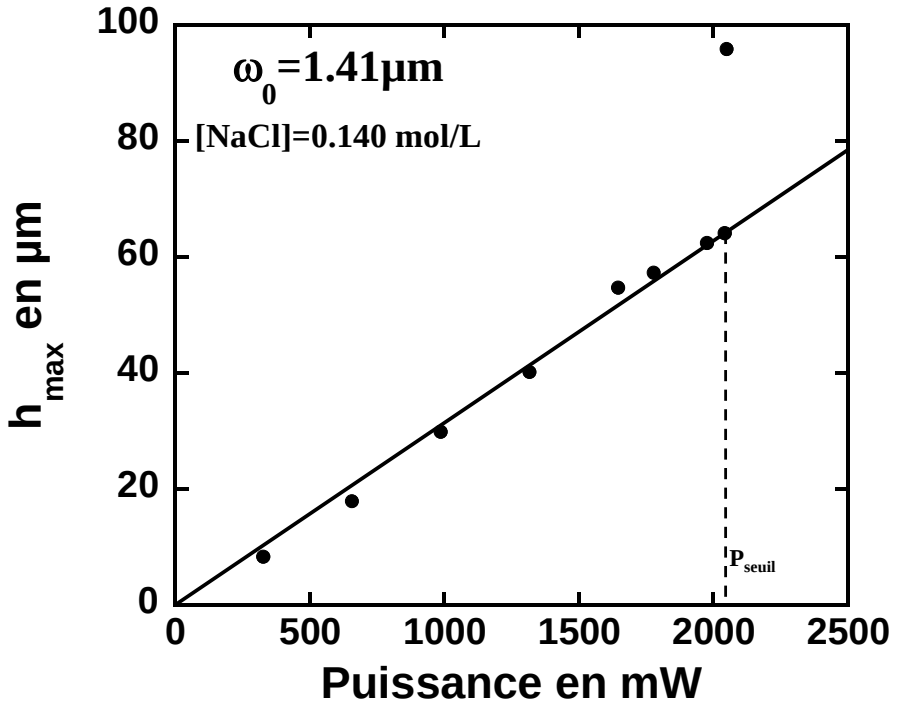


Fig. 6.2 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, induite par les effets de la force diffusive, en fonction de la puissance laser. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau* $\omega_0 = 1.41$ µm*, se propage de manière descendante. Le trait plein correspond à une régression linéaire des résultats expérimentaux pour* $P \leq P_{seuil}$.

tillon (le faisceau se propageant de manière descendante), cela peut nous rappeler de manière phénoménologique, les instabilités d'interfaces liquides de type « entrainement visqueux » [13, 86]. Un exemple issu de la littérature [13] est présenté figure 6.4. Dans cet exemple, il est montré que lorsque le « débit d'aspiration » est inférieur à une certaine valeur seuil, l'interface liquide (initialement non–perturbée) séparant deux phases liquides présente une bosse de déformation et seul le fluide de la phase supérieure est entraîné. En revanche, lorsque le « débit d'aspiration » est égal au « débit d'aspiration seuil », le fluide inférieur est entraîné avec la phase supérieure formant ainsi une « pointe liquide » stable. Enfin, au–delà de ce seuil, cette déformation devient instable et on observe l'émergence d'un jet liquide.

Bien que ce type d'échantillon fluide présente une très faible tension interfaciale, le déclenchement de l'instabilité d'interface liquide nécessite une forte puissance laser focalisée au niveau de l'interface liquide. Ceci est probablement dû à la nature de la phase turbide, un phase L_3. Certes, cette phase est isotrope mais est très différente d'une phase micellaire de microémulsion, ne serait–ce qu'en terme de viscosité. D'autre part, l'amplitude de la force diffusive étant proportionnelle à l'intensité laser ($I \propto P/\omega_0^2$), il convient d'adopter un rayon au col du faisceau incident le plus petit possible afin de pouvoir atteindre le seuil d'instabilité pour une puissance laser accessible expérimentalement.

Toutefois, malgré ces différentes contraintes expérimentales, nous avons pu démontrer l'existence de ce nouveau mécanisme d'instabilité de jet liquide induit uniquement par les effets relatifs à la force diffusive dans l'une des deux phases liquides en coexistence.

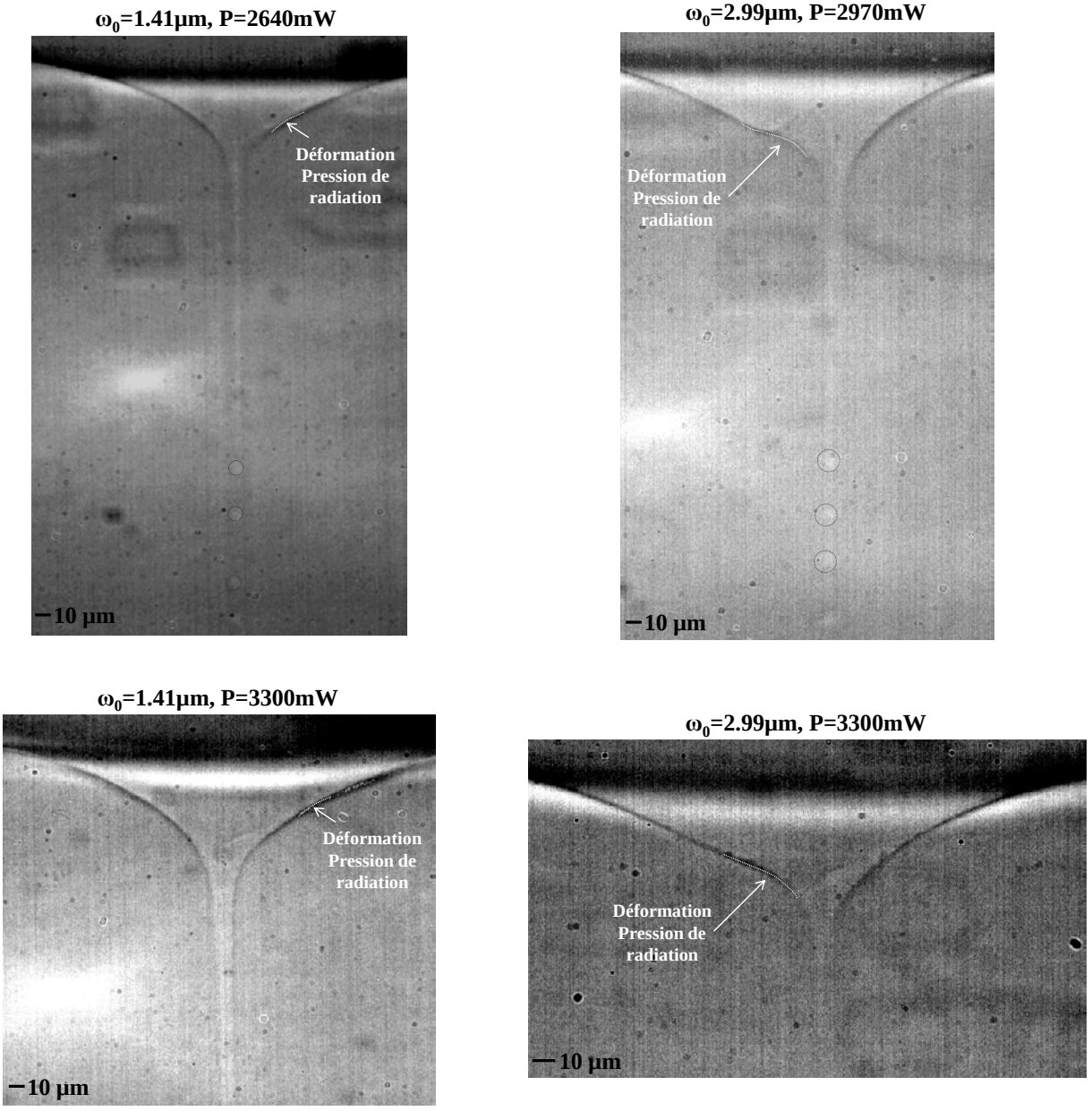


Fig. 6.3 – *Mise en évidence de l'instabilité de l'interface liquide induite produite uniquement par les effets de la force diffusive dans la phase inférieure de l'échantillon diphasique (phase L_3). L'onde incidente se propage de façon descendante. Le résultat de cette instabilité est l'émergence d'un jet liquide dirigé dans le sens de propagation de l'onde excitatrice. Les rayons au col du faisceau sont $\omega_0 = 1.41$ µm et $\omega_0 = 2.99$ µm, les puissances sont reportées sur les différentes figures. Les jets liquides ainsi induits sont décalés par rapport à l'axe de propagation de l'onde incidente. (L'émission de gouttes liquides est soulignée par un contour en pointillés pour plus de visibilité.)*

Dans les sections suivantes, nous allons explorer d'autres configurations expérimentales en commençant par régler le montage optique de telle manière que l'onde incidente se propage de façon ascendante (*i.e.* depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent).

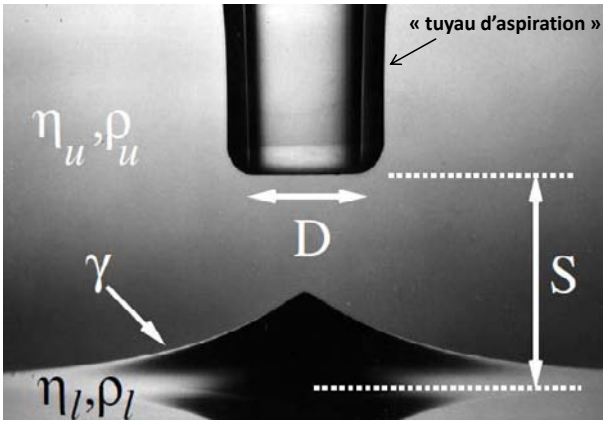


Fig. 6.4 – *Illustration de la « pointe liquide » stable induite par un mécanisme de type « entrainement visqueux » lorsque le « débit d'aspiration » est égal au « débit d'aspiration » seuil. L'image est issue de la référence [13].*

6.3 Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (propagation depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent)

Au cours de cette partie, le montage optique est réglé afin que l'onde incidente se propage de manière ascendante (*i.e.* depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent). Dans cette configuration expérimentale, les effets de la pression de radiation optique et de la force diffusive sont dirigés dans le même sens (correspondant au sens de propagation de l'onde excitatrice).

Nous avons pu étudier au cours du chapitre 4 que lorsque uniquement les effets de la pression de radiation optique participent à la déformation de l'interface liquide, l'évolution de la hauteur maximale de déformation présente différents régimes de déformations jusqu'à un seuil en puissance laser où l'interface se déstabilise en aiguille liquide. Nous savons, d'après notamment les travaux de thèse de A. Casner [51], que ce scénario caractéristique ainsi que la mise en évidence de cette instabilité sont vérifiés à l'aide d'un système fluide présentant deux phases liquides diffusantes. Nous allons, dans cette partie, réaliser cette étude dans le cas particulier d'un système fluide ne présentant qu'une seule phase liquide diffusante.

6.3.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser

La visualisation expérimentale des déformations d'interfaces liquides induites à l'aide de ce système fluide étant très difficile, nous avons choisi de repérer l'altitude maximale atteinte par l'interface liquide déformée, lorsque la puissance croît, par l'intermédiaire de la lumière diffusée uniquement dans la phase inférieure de l'échantillon. Pour ce faire, nous utilisons une nouvelle lame $\lambda/2$ placée avant l'objectif de focalisation de l'onde au niveau de l'interface de l'échantillon, associée à un filtre coloré moins efficace à $\lambda_0 = 532$ nm au niveau du banc de visualisation. Cette technique permet de laisser passer une légère fuite de la diffusion du faisceau incident lors de l'imagerie. Quelques images obtenues lors de l'évolution de la puissance laser sont présentées figure 6.5.

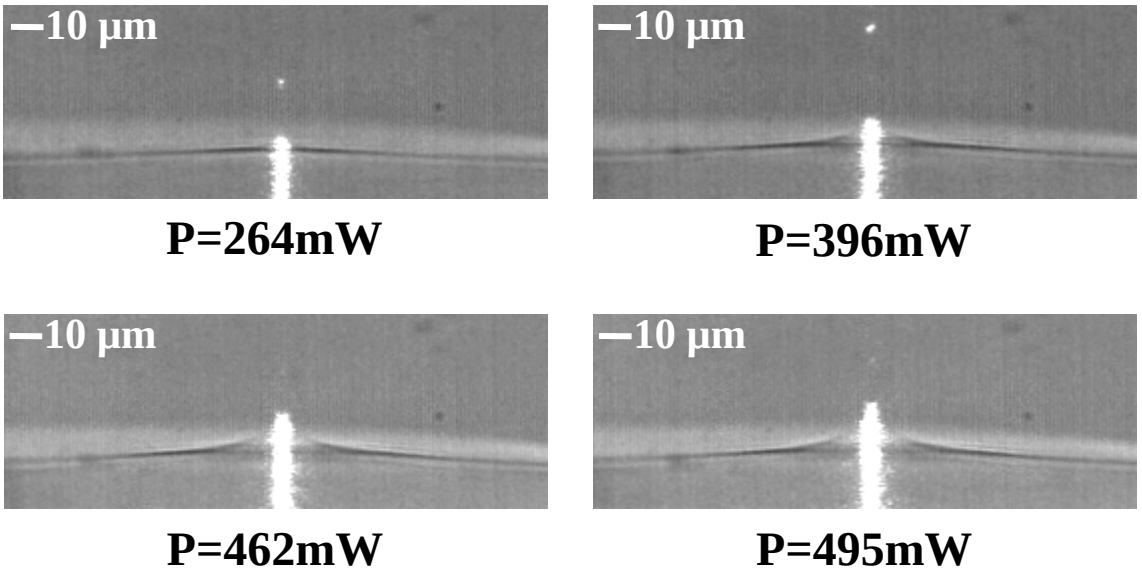


Fig. 6.5 – *Évolution de l'allure de la déformation lorsque l'onde incidente, de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 2.99$ µm, se propage de façon ascendante (i.e. depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent). La lumière diffusée par le milieu nous permet de repérer l'altitude maximale atteinte par la déformation d'interface liquide. Les différentes puissances sont reportées sous les images correspondantes et la dernière image en bas à droite représente la déformation obtenue au seuil d'instabilité.*

L'évolution correspondante de la hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, est donnée figure 6.6 (où h_{max} représente l'altitude maximale atteinte par la déformation d'interface par rapport à l'interface au repos).

L'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser, présentée figure 6.6, est sensiblement similaire aux études réalisées section 4.3. Tout d'abord, lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide est modérée, nous observons un comportement linéaire de h_{max} avec P comme le souligne la régression linéaire effectuée sur les résultats aux plus basses puissances (en trait plein sur la figure 6.6). Pour des puissances plus conséquentes, l'évolution de la hauteur maximale de déformation dévie de ce comportement linéaire, devient non–linéaire et diverge pour une puissance laser seuil, notée P_{seuil}. Lorsque $P > P_{seuil}$, l'interface liquide se déstabilise sous l'action à la fois des effets de la pression de radiation optique et des effets relatifs à la force diffusive présents dans la phase L_3 (phase inférieure) de l'échantillon diphasique.

La figure 6.7 présente en parallèle l'image de la déformation obtenue au seuil d'instabilité et lorsque la puissance seuil est augmentée de la précision à laquelle nous avons accès avec notre dispositif expérimental, à savoir $\varepsilon = 6.6$ mW ; un affinement peut être réalisé moyennant une lame $\lambda/2$ et un prisme de Glan.

6.3.2 Caractérisation du seuil d'instabilité

Le seuil de déclenchement de l'instabilité d'interface liquide mise en évidence a été caractérisé en fonction du seul paramètre ajustable de l'onde excitatrice à notre disposition, le rayon au col du faisceau ω_0. Lors de l'étude de cette instabilité section 4.3.2, nous avons

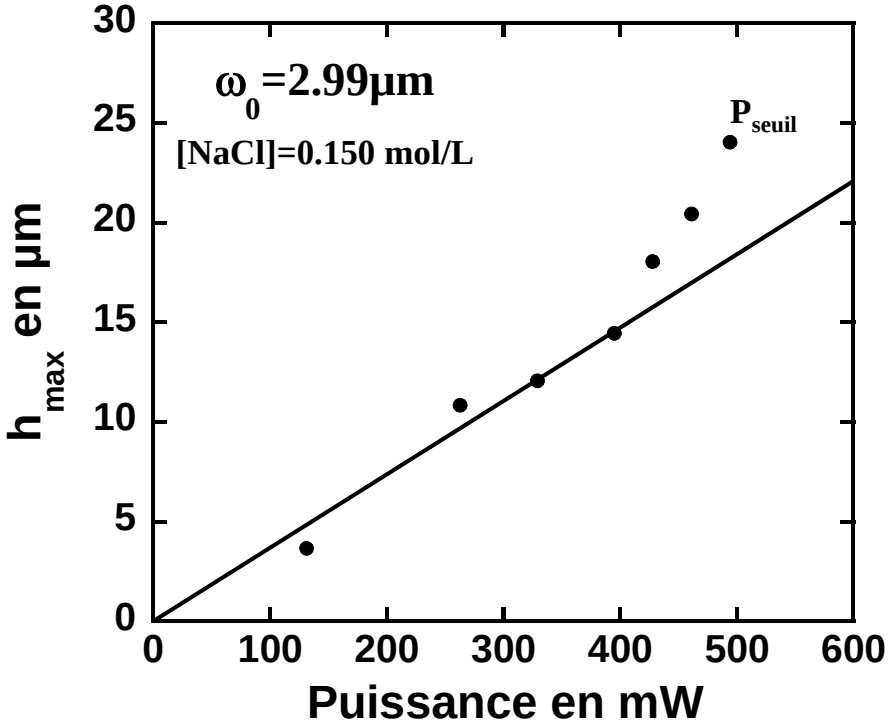


Fig. 6.6 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau* $\omega_0 = 2.99$ µm*, intercepte l'interface liquide d'un échantillon issu d'un mélange eau salée – AOT – dodécane de salinité* $[NaCl] = 0.150$ mol/L *de façon ascendante.* h_{max} *est repérée par l'intermédiaire de la lumière diffusée dans la phase inférieure de l'échantillon. Le trait plein représente l'ajustement des résultats expérimentaux aux plus basses puissances par une régression linéaire.*

démontré que la puissance laser nécessaire à la déstabilisation de l'interface se comportait linéairement lorsque ω_0 augmentait. Nous avons ainsi vérifié si ce comportement est toujours viable dans le cas présent. La figure 6.8 illustre l'évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau.

Ainsi, comme nous pouvons l'apprécier à l'aide de la figure 6.8, la puissance seuil d'instabilité se comporte toujours linéairement lorsque le rayon au col du faisceau augmente. En revanche, compte tenu de la qualité des images expérimentales, nous n'avons pas eu accès à la mesure de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide. Nous ne pouvons donc pas confirmer si celui–ci est constant en ω_0 et inférieur à l'angle à la réflexion totale comme cela fut démontré section 4.3.2 et par le passé [82] à l'aide d'un système fluide dont les deux phases liquides diffusaient l'onde incidente.

Enfin, nous avons procédé à la mise en évidence de la robustesse de cette instabilité d'interface liquide. En effet, le jet liquide produit possède la particularité de persister sur une plage en puissances plus ou moins étendue, inférieures à la puissance nécessaire à son émergence, lorsque la puissance laser varie continuement de manière décroissante.

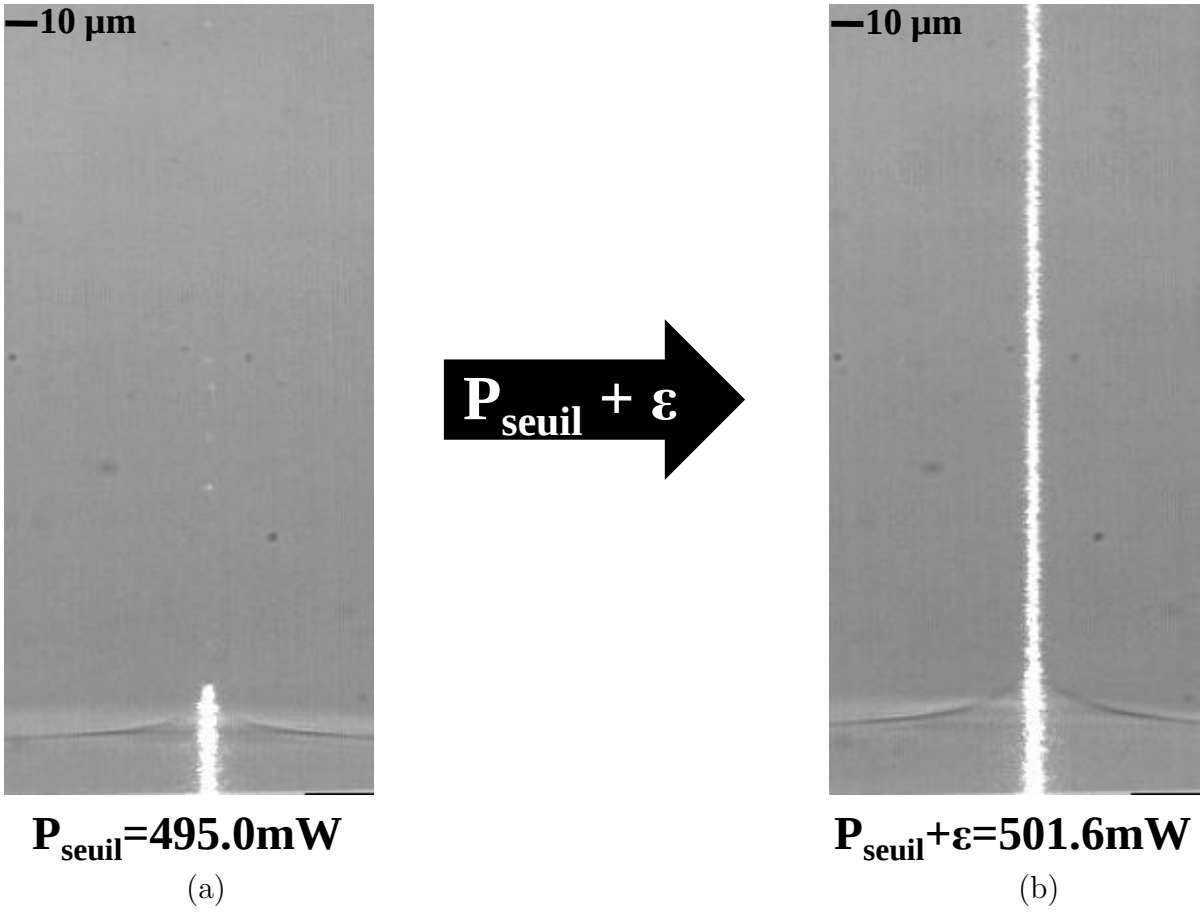


Fig. 6.7 – *(a) Allure de la déformation d'interface liquide lorsque $P = P_{seuil} = 495.0$ mW. (b) Mise en évidence de l'instabilité d'interface liquide lorsque $P = P_{seuil} + \varepsilon = 501.6$ mW. Dans les deux cas l'onde incidente se propage de façon ascendante et le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 2.99$ µm. La diffusion de la lumière incidente est utilisée pour déterminer les hauteurs de déformation. Remarque : dans cette configuration, le jet est centré sur l'axe de propagation de l'onde incidente car il est composé du milieu d'indice optique le plus élevé.*

6.3.3 Robustesse de l'instabilité de jet liquide ainsi créée

Une fois l'interface liquide déstabilisée et le jet liquide induit, nous observons l'existence de cet objet liquide lorsque la puissance varie continuement de manière décroissante pour une plage de puissances inférieures à la puissance seuil d'instabilité. Cette caractéristique traduit un comportement doué d'hystérésis suivant le sens de variation de la puissance laser au niveau de l'interface liquide.

Le cycle d'hystérésis résultant de cette étude en variation de puissance (croissante puis décroissante) est exposé figure 6.9 pour $\omega_0 = 2.99$ µm.

Le comportement observé lors de la partie 4.3 est donc également présent lorsque le système fluide comporte une phase liquide transparente en coexistence avec une phase liquide diffusante.

Afin de finaliser l'étude de la réponse de ce système fluide à l'excitation laser, nous avons procédé à un nouveau changement de configuration expérimentale. Le montage

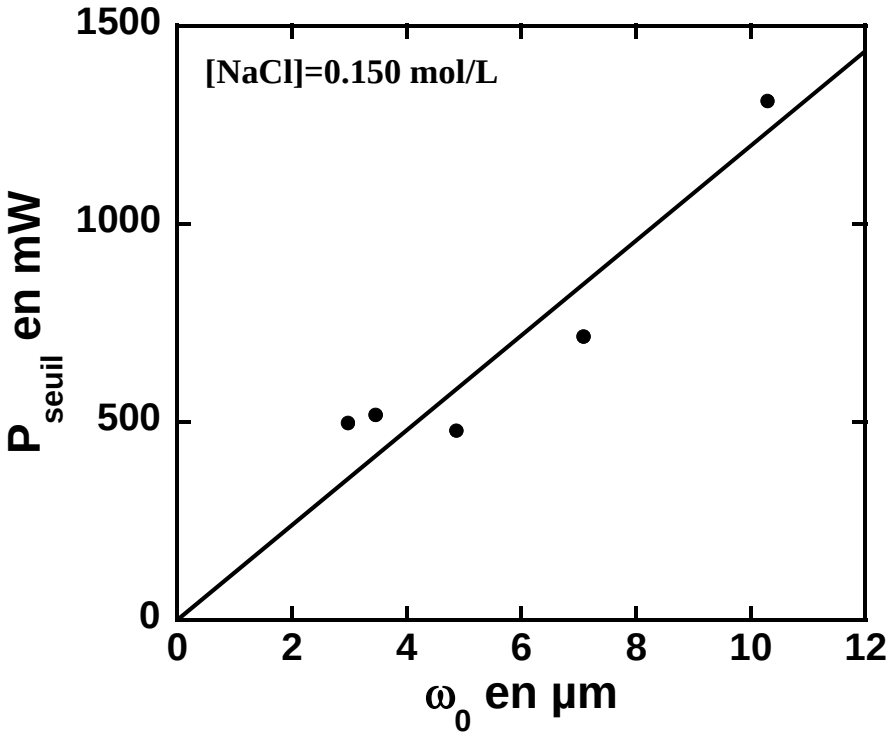


Fig. 6.8 – *Évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau. L'onde incidente se propage de façon ascendante. Le trait plein est une régression linéaire des résultats expérimentaux.*

optique est réglé en configuration double propagation de telle manière que deux faisceaux lasers contra–propageants, de puissances et rayons au col du faisceau identiques, illuminent l'interface liquide molle. En considérant de prime abord que les ondes lasers ne sont pas atténuées par la propagation en milieu diffusant, le but est de s'affranchir des effets relatifs à la force diffusive présents dans la phase inférieure de l'échantillon fluide et d'évaluer leur implication quant à la dernière instabilité d'interface liquide mise en évidence dans cette partie à savoir l'instabilité de jet lorsque le faisceau laser se propage de façon ascendante.

6.4 Illumination de l'interface liquide par deux faisceaux lasers contra–propageants

Nous finalisons ce chapitre expérimental par un nouveau changement de configuration du montage optique. Ce dernier est réglé en double propagation de telle manière que deux faisceaux lasers contra–propageants de puissances et de rayons au col du faisceau identiques interceptent l'interface liquide de l'échantillon diphasique présentant une phase liquide transparente en coexistence avec une phase liquide diffusante.

Cette technique expérimentale a pour vocation de compenser les écoulements induits dans la phase inférieure de l'échantillon afin de s'affranchir des effets de la force diffusive lors des déformations d'interfaces engendrées.

Cela suppose deux hypothèses : (i) les ondes incidentes à l'interface ne sont pas atténuées par la présence d'un milieu diffusant. Pour cela, la turbidité du milieu et donc la

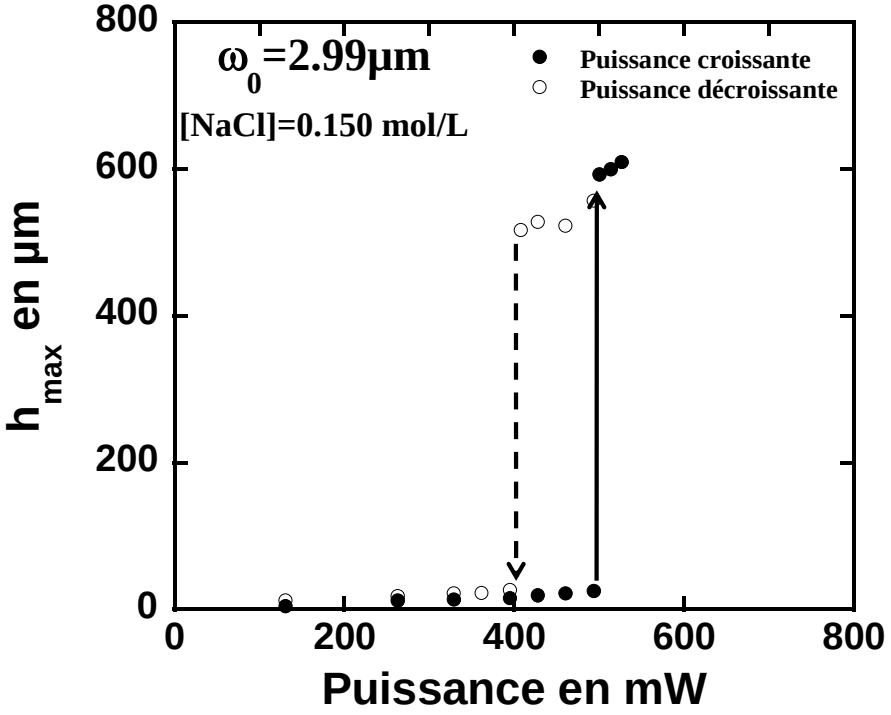


Fig. 6.9 – *Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser délivrée de manière croissante et décroissante au niveau de l'interface liquide. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau* $\omega_0 = 2.99$ µm, *se propage de manière ascendante. Les symboles pleins correspondent à une variation croissante de la puissance laser alors que les symboles creux représentent une variation décroissante de* P. *Les flèches schématisent le sens de variation de la puissance laser.*

concentration en diffuseurs, doit demeurer faible (*cf.* chapitre 2). (ii) Le contrast d'indice de réfraction entre les deux phases liquides doit être également faible pour négliger, au premier ordre, la modification des distributions d'intensité par les profils d'interfaces déformées ; cela revient à négliger, dans un premier temps, le couplage entre la propagation de l'onde et la déformation.

6.4.1 Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser lorsque deux fasiceaux lasers contra–propageants interceptent l'interface liquide

Dans cette configuration expérimentale, l'allure de la déformation d'interface liquide engendrée lorsque la puissance laser augmente est présentée figure 6.10, pour quelques puissances.

Tout d'abord nous pouvons constater que l'allure de la déformation d'interface obtenue dans le cadre d'une configuration expérimentale en double propagation est relativement similaire à celle obtenue en simple propagation ascendante (figure 6.5). L'évolution correspondante de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser est reportée figure 6.11.

Tout comme en configuration simple propagation ascendante (section 6.3), l'évolution

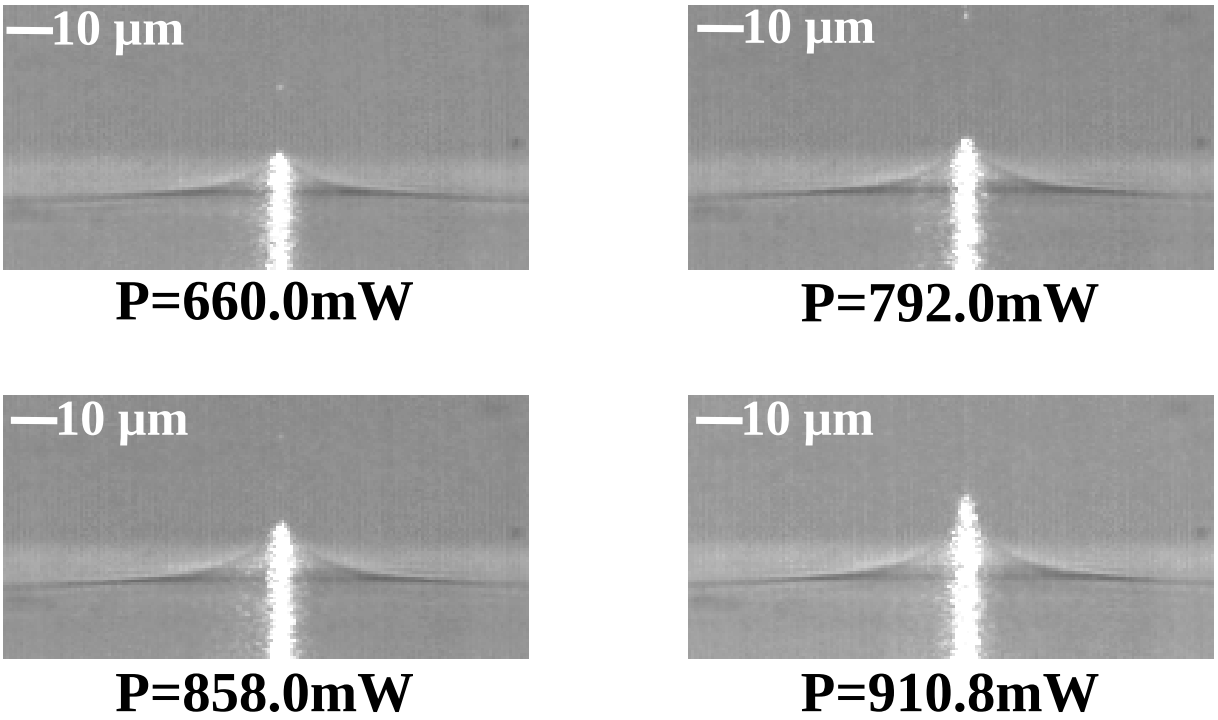


Fig. 6.10 – *Évolution de l'allure de la déformation lorsque l'interface liquide de l'échantillon est interceptée par deux faisceaux lasers contra–propageants. Le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 2.99$ µm. *La lumière diffusée par le milieu nous permet de repérer l'altitude maximale atteinte par la déformation d'interface liquide. Les différentes puissances sont reportées sous les images correspondantes et la dernière image en bas à droite représente la déformation obtenue au seuil d'instabilité.*

de la hauteur de déformation en fonction de P exhibe différents régimes de déformations, à commencer par un régime linéaire de déformation où h_{max} se comporte linéairement avec P comme l'atteste la régression linéaire effectuée sur les résultats expérimentaux aux plus basses puissances. À plus forte puissance, le comportement de $h_{max}(P)$ dévie du régime linéaire et subit un saut pour $P = P_{seuil} = 910.8$ mW.

Sans aucune surpise, pour une puissance laser suffisante, l'interface liquide est déstabilisée est nous observons à nouveau l'émergence d'un objet liquide de grande amplitude, comme cela est présenté figure 6.12.

Jusqu'à présent, aucune différence qualitative n'est observable entre la configuration double propagation et la configuration simple propagation ascendante concernant la phénoménologie de déformation d'interface induite. En revanche, la puissance laser nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est plus élevée lorsque deux faisceaux lasers contra–propageants illuminent l'interface.

Cette caractéristique est maintenant reconnue comme étant issue des différentes contributions de la pression de radiation optique au niveau de l'interface liquide en fonction du sens de propagation de l'onde incidente, comme cela a été mis en évidence au chapitre 4 pour les milieux transparents. D'autre part, la compensation des effets relatifs à la force diffusive dans le présent chapitre accentue cette différence de puissance seuil entre les deux

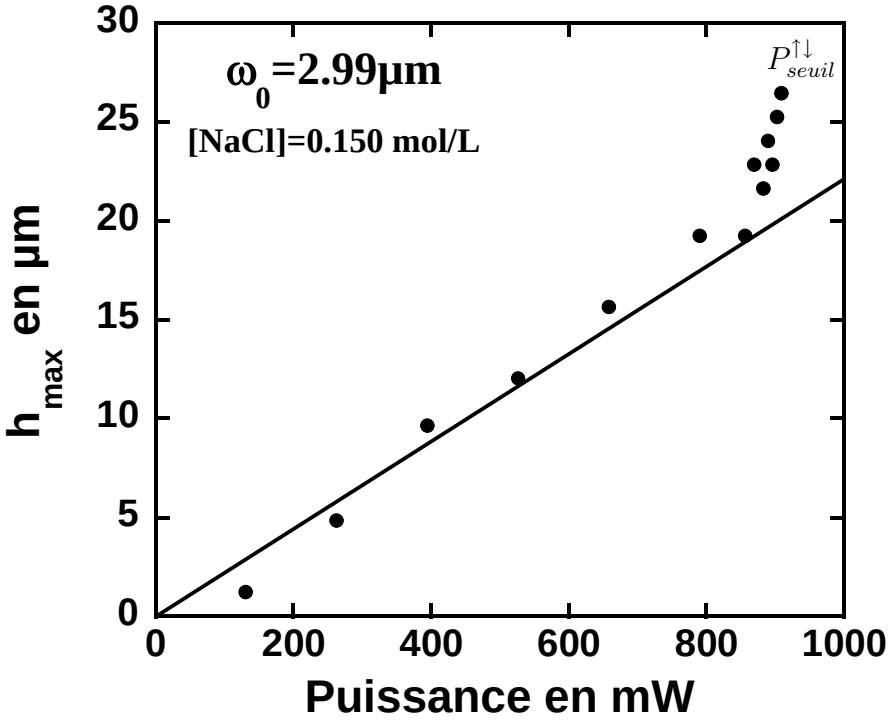


Fig. 6.11 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser. L'interface liquide de l'échantillon est interceptée par deux faisceaux lasers contra–propageants de rayon au col du faisceau $\omega_0 = 2.99$ µm. h_{max} est repérée par l'intermédiaire de la lumière diffusée dans la phase inférieure de l'échantillon. Le trait plein représente l'ajustement des résultats expérimentaux aux plus basses puissances par une régression linéaire.*

configurations expérimentales.

En effet, ici, l'écart entre les puissances seuils des deux configurations est beaucoup plus marqué qu'à la section 4.4.2. Dans le cas présent ($\omega_0 = 2.99$ µm), on a :

$$\frac{P^{\uparrow\downarrow}_{seuil}}{P^{\uparrow}_{seuil}} = \frac{910.8}{495.0} = 1.84, \tag{6.1}$$

où $P^{\uparrow\downarrow}_{seuil}$ représente la puissance seuil en double propagation alors que $P^{\uparrow}_{seuil}$ est la puissance seuil en simple propagation ascendante. Ce rapport était égal à 1.126, pour le système transparent pour $\omega_0 = 2.99$ µm. Ceci nous permet d'affirmer qu'au–delà de l'influence des différentes contributions de la pression de radiation optique au niveau de l'interface déformée en fonction du sens de propagation, la participation des effets relatifs à la force diffusive est également à prendre en compte lors du déclenchement de l'instabilité d'interface mise en évidence.

Ainsi, la force diffusive n'est bien entendu pas le moteur de l'instabilité mais participe grandement au déclenchement de celle–ci. Nous confirmerons cette remarque lors du prochain chapitre expérimental où les deux phases liquides de l'échantillon diphasique diffuseront l'onde incidente et dont l'amplitude de la force diffusive dans chaque phase liquide sera modulée.

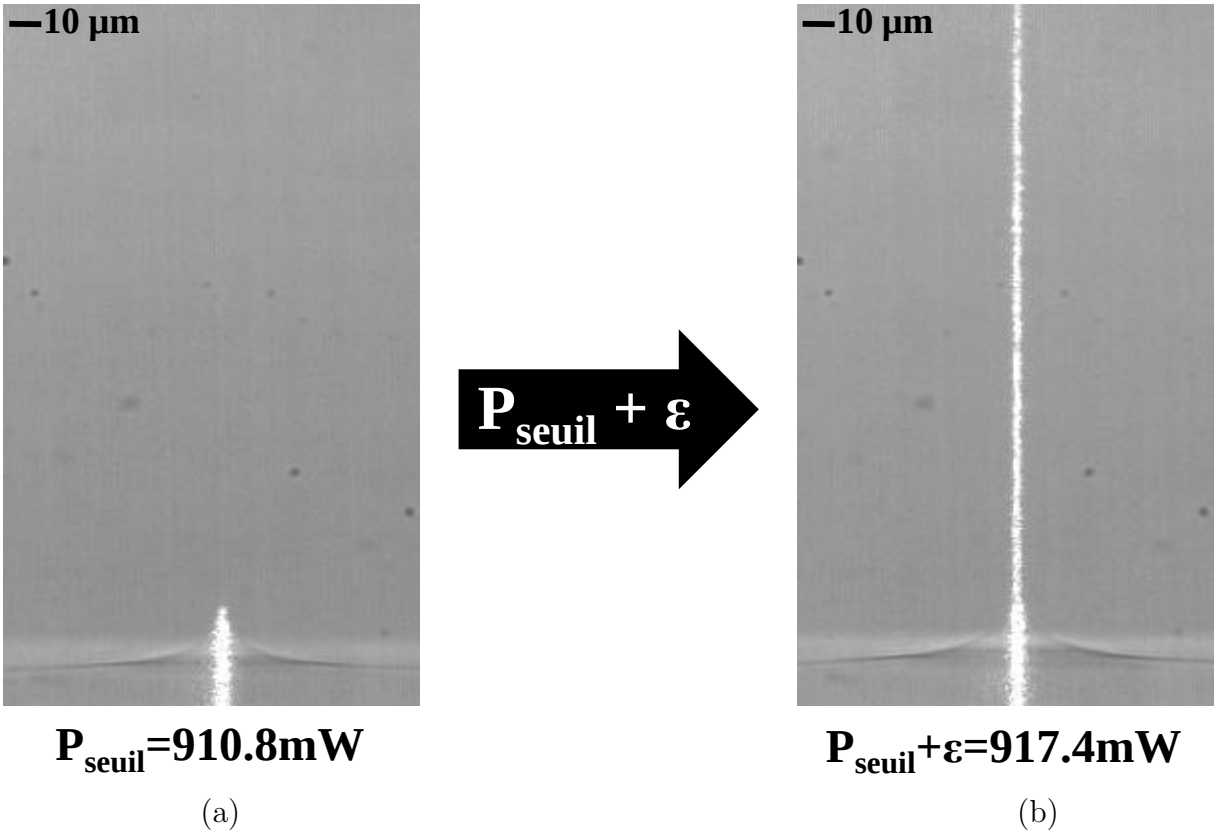


Fig. 6.12 – *(a) Allure de la déformation d'interface liquide lorsque* $P = P_{seuil} = 910.8$ mW. *(b) Mise en évidence de l'instabilité d'interface liquide lorsque* $P = P_{seuil} + \varepsilon = 917.4$ mW. *L'interface liquide de l'échantillon est illuminée par deux faisceaux lasers contra–propageants de rayon au col du faisceau* $\omega_0 = 2.99$ µm. *La diffusion de la lumière incidente est utilisée pour un confort de visualisation.*

Lors de la prochaine section, nous allons vérifier si le cycle d'hystérésis observé en simple propagation ascendante est toujours présent en configuration double propagation. *A priori*, cette bistabilité semble résulter d'un fort couplage existant entre la déformation de l'interface et la propagation de l'onde incidente, donc le changement de configuration expérimentale ne devrait pas affecter cette propriété.

6.4.2 Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de $h_{max}(P)$ en configuration double propagation

De façon similaire au protocole adopté section 6.3.3, une fois l'interface liquide déstabilisée, nous faisons varier la puissance laser continuement de manière décroissante afin d'évaluer la robustesse de l'instabilité d'interface ainsi provoquée.

Le résultat de cette étude en variation en puissance croissante et décroissante, pour une configuration double propagation, est présenté figure 6.13 (b), la figure 6.13 (a) reportant les résultats obtenus en simple propagation ascendante (issus de la section 6.3.3).

Ainsi, comme nous pouvons le voir sur la figure 6.13 (b), l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance croissante et décroissante présente toujours un cycle d'hystérésis dont la largeur relative (différence entre la puissance seuil d'instabilité et la puissance pour laquelle l'interface redevient une simple bosse de défor-

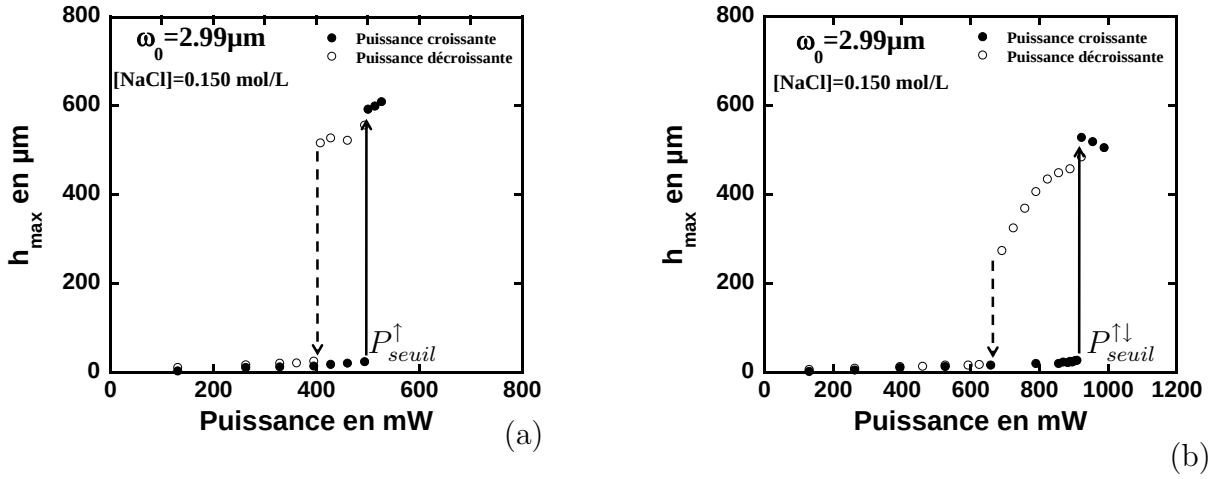


Fig. 6.13 – *Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser délivrée de manière croissante et décroissante au niveau de l'interface liquide. (a) Simple propagation ascendante (résultats issus de la section 6.3.3). (b) L'interface liquide de l'échantillon est illuminée par deux faisceaux lasers contra–propageants. Dans les deux cas, le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 2.99$ µm. *Les symboles pleins correspondent à une variation croissante de la puissance laser alors que les symboles creux représentent une variation décroissante de* P. *Les flèches schématisent le sens de variation de la puissance laser.*

mation, divisée par la puissance seuil d'instabilité) est légèrement plus élevée.

L'amplitude des objets liquides créés au–delà du seuil d'instabilité est un peu plus faible en double propagation. Cette petite différence d'amplitude pourrait également être imputée à la compensation des effets relatifs à la force diffusive, ces derniers permettant l'allongement des déformations d'interfaces générées.

6.5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons étudié suivant différentes configurations du dispositif expérimental, la réponse à une excitation lumineuse de l'interface liquide d'un échantillon constitué d'une phase liquide transparente et d'une phase liquide diffusante. Cet échantillon est issu d'un mélange eau salée – AOT – dodécane en équilibre de Winsor III. À cet équilibre, le mélange fluide présente trois phases liquides distinctes. Nous avons prélevé la phase aqueuse (représentant la phase liquide transparente) que nous avons mis en coexistence avec la phase L_3 diffusant l'onde incidente. Par ce biais, nous obtenons un échantillon diphasique de tension interfaciale très basse (de l'ordre de 10^{-6} N/m) et dont une seule phase liquide diffuse l'onde incidente. Cette caractéristique nous a permis notamment de vérifier expérimentalement les prédictions numériques réalisées au cours du chapitre 5.

Bien que ce chapitre expérimental reste très phénoménologique du fait de l'exploitation complexe des images expérimentales obtenues, nous avons pu mettre en exergue un certain nombre de comportements importants.

En effet, nous avons tout d'abord configuré le dispositif expérimental de telle manière que l'onde incidente se propage depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus

réfringent (faisceau laser descendant dans ce cas). L'objectif principal de cette étude était la recherche de la mise en évidence d'une instabilité d'interface liquide induite uniquement par les effets relatifs à la force diffusive présente dans la phase inférieure de l'échantillon fluide (la déformation résultant des effets de la pression de radiation optique étant dirigée dans le sens opposé au sens de propagation de l'onde incidente).

Cette instabilité d'interface liquide, prédite numériquement au chapitre 5 a donc été démontré expérimentalement à l'aide de ce système fluide. Nous avons mis en évidence l'émergence d'un jet liquide, induit parallèlement à l'axe de propagation de l'onde incidente, ayant pour origine les contraintes visqueuses dues aux écoulements en volume générés par la diffusion de la lumière.

Dans une seconde partie, nous avons réglé le dispositif expérimental de telle sorte que l'onde incidente se propage depuis la voie basse du montage optique, à savoir depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu d'indice de réfraction le plus faible. Lorsque l'onde incidente se propage de cette manière, nous avions démontré au chapitre 4, à l'aide d'un échantillon diphasique transparent, l'existence d'une instabilité d'interface liquide pour une puissance laser suffisante.

À la fois, l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de P et l'existence de cette instabilité sont sensiblement similaires aux résultats obtenus à l'aide d'un système non–diffusant. L'évolution de $h_{max}(P)$ nous permet d'explorer différents régimes de déformations jusqu'au seuil d'instabilité où l'interface se déstabilise en jet liquide centré sur l'axe de propagation de l'onde incidente.

La caractérisation du seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau incident nous confirme que P_{seuil} varie linéairement en fonction de ω_0. Enfin, la bistabilité observée au chapitre 4, traduite par l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance croissante et décroissante est également vérifiée lorsque l'échantillon fluide présente une phase liquide transparente en coexistence avec une phase liquide diffusante.

La finalisation de ce chapitre expérimental a consisté au réglage du dispositif expérimental en double propagation. Ainsi, deux faisceaux lasers contra–propageants de puissances et rayons au col du faisceau identiques, interceptaient l'interface liquide molle. Par cette technique, nous avons pu nous affranchir des effets majeurs inhérents à la force diffusive présents dans la phase inférieure de l'échantillon diphasique et évaluer leur influence quant aux déformations d'interfaces observées et à l'instabilité mise en évidence.

Sans surprise, l'allure des déformations et l'existence de l'instabilité d'interface ne sont pas altérées. Toutefois, la puissance laser nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide, en double propagation, est plus élevée qu'en simple propagation ascendante. Cette remarque avait déjà été formulée au cours du chapitre 4 mais l'écart relatif entre les deux puissances seuils était moindre. Nous en avons donc conclu qu'au–delà des différentes contributions angulaires de la pression de radiation optique au niveau de l'interface déformée en fonction du sens de propagation de l'onde incidente, l'influence des effets de la force diffusive était non négligeable. Ces effets diffusifs participent donc fortement au déclenchement de l'instabilité d'interface observée et induisent un allongement des objets liquides créés au–delà du seuil d'instabilité.

Dans cette étude d'interfaces liquides séparant une phase transparente et une phase

diffusante, il manque la situation inverse pour laquelle la force diffusive « pousserait » une phase diffusante dans une phase transparente en opposition aux effets de la pression de radiation. C'est ce que nous avons appelé intialement « fontaine capillaire ». En réalité, nous avons effectué plusieurs tentatives qui se sont pour l'instant révélées infructueuses.

Nous avons tout d'abord utilisé un échantillon issus d'un mélange eau salée – AOT – heptane en équilibre de Winsor III. Pour cet équilibre nous obtenons un échantillon triphasique comportant une phase intermédiaire intégrant la quasi–totalité du surfactant et de part et d'autre de celle–ci, un excès de la phase aqueuse et un excès de la phase huile. La phase intermédiaire est diffusante et apparentée à une phase lamellaire L_α. Nous avons donc réalisé des échantillons diphasiques en mettant en coexistence cette phase L_α avec la phase heptane. Le résultat de cette préparation comporte plusieurs incovénients. D'une part, la phase L_α est extrêmement turbide et donc atténue très fortement l'onde incidente. Il n'y a donc plus assez de flux d'énergie disponible au niveau de l'interface liquide pour déclencher une quelconque instabilité. D'autre part, la présence récurrente de mousse au niveau de l'interface, lors de la mise en coexistence des deux phases liquides, induit un frein à la déformation d'interface potentiellement engendrée. Nous avons tenté de surpasser ce problème par différentes techniques de remplissage (en plusieurs étapes) sans résultat probant. D'autre part, nous avons modifié l'épaisseur de la phase l_α afin de limiter l'atténuation de l'onde dans le milieu, sans succès. Ainsi, à ce stade, nous avons réussi à induire des déformations d'interfaces mais en aucun cas une instabilité de celle–ci.

Dans un deuxième temps, nous avons repris le même système fluide que celui utilisé dans ce chapitre expérimental, à savoir un échantillon diphasique issu d'un mélange eau salée – AOT – dodécane en équilibre de Winsor III. L'échantillon diphasique est composé d'une phase transparente (eau salée) et d'une phase diffusante (phase L_3). Comme nous l'avons étudié au cours de ce chapitre, la phase L_3 présente l'indice de réfraction le plus fort. Ainsi, la déformation engendrée par la pression de radiation optique est dirigée depuis la phase L_3 vers la phase aqueuse. Si l'on souhaite engendrer une instabilité d'interface de type « fontaine capillaire », via les effets diffusifs, avec cet échantillon, il est donc nécessaire que la déformation induite par la pression de radiation optique soit dirigée dans le sens opposé. Pour ce faire, il faut augmenter l'indice de réfraction de la phase aqueuse afin que celle–ci présente un indice optique plus grand que celui de la phase L_3. Pour réaliser cette manipulation, nous avons ajouté du sucrose, à l'échantillon préparé, dans des proportions calculées de manière à inverser l'ordre des indices de réfraction entre les deux phases. Malheureusement, les deux phases en coexistence étant principalement constituées d'eau, le sucrose s'est réparti dans les deux phases. D'autre part, l'ajout de ce sucre a posé un gros problème de densité, perturbant complètement l'équilibre de l'échantillon. Nous n'avons donc pas poursuivi dans cette voie.

Lors du prochain chapitre expérimental, nous allons étudier notamment l'influence de ces effets relatifs à la force diffusive à l'aide d'un système fluide particulier. Il s'agira d'un échantillon diphasique composé de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre. La régulation de cet échantillon en température au–delà de sa température critique nous permettra d'obtenir deux phases liquides de concentrations micellaires différentes, toutes deux diffusants l'onde incidente et séparées par une interface liquide extrêmement déformable.

Chapitre 7

Déformations d'interfaces liquides séparant deux fluides diffusants et isotropes

Les chapitres précédents (chapitre 4 et chapitre 6), nous ont permis d'explorer différents systèmes fluides présentant des interfaces liquides extrêmement déformables (de très faible tension interfaciale). Nous avons pu étudier les différents effets d'une onde laser focalisée à l'interface entre deux liquides et la déformation d'interface qu'il en résulte. Nous avons tout d'abord utilisé un système dit « de référence », correspondant à des phases de Winsor constituées d'un mélange d'eau salée, d'heptane et d'AOT, en équilibre de Winsor III. Ce système a la particularité de présenter une interface très molle entre deux liquides isotropes et non diffusants permettant d'étudier ainsi, uniquement les effets de la pression de radiation optique.

Dans un deuxième temps, nous avons montré, à l'aide de simulations numériques, que lorsque le système diffuse la lumière incidente (que ce soit dans une ou dans deux phases en coexistence), une force diffusive est induite en volume permettant la mise en place d'un écoulement permanent, forcé dans la direction de propagation du faisceau laser. Cet écoulement, dans le voisinage d'une interface molle, peut engendrer la déformation de celle–ci. Une étude numérique, dans le chapitre 5, nous a permis de démontrer que l'action de cette force diffusive dans des milieux turbides (en absence de pression de radiation optique) permet à elle seule d'engendrer une rupture de l'interface liquide au–delà d'un certain seuil en puissance. Ce nouveau type d'instabilité a été observé numériquement, à la fois pour un système fluide diphasique présentant une phase diffusante et une phase non diffusante, mais également pour un système diphasique présentant deux phases diffusantes. Dans le chapitre précédent, nous avons cherché à démontrer expérimentalement l'existence de cette instabilité à l'aide d'un système diphasique comportant une phase diffusant la lumière incidente, en coexistence avec une phase transparente. Il s'agissait d'un mélange d'eau salée, de dodécane et d'AOT en équilibre de Winsor III. Nous avons pu mettre en évidence que l'écoulement en volume induit par cette force diffusive (dans la phase diffusant la lumière incidente) pouvait, sous certaines conditions, engendrer la rupture de l'interface et générer un jet liquide. Ce jet liquide est dirigé dans le sens de l'écoulement induit, c'est–à–dire dans le sens de propagation de l'onde incidente. Bien que les effets dus à la pression de radiation optique de l'onde laser soient inévitables dans

nos expériences (de par la présence d'un contraste d'indice de réfraction entre les deux phases de l'échantillon), nous avons pu mettre en évidence une instabilité uniquement due à la force diffusive en générant un jet liquide dans le sens opposé à la déformation d'interface induite par la pression de radiation optique, qui rappelons–le est toujours dirigée depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent. Ainsi, même si la pression de radiation apporte dans ce cas un certain « frein » à l'action de la force diffusive, cette dernière est néanmoins capable de déformer l'interface liquide jusqu'à la déstabiliser.

Afin de parfaire cette étude, nous allons exposer dans ce chapitre les différentes observations expérimentales obtenues à l'aide d'un système présentant à la fois les effets de la pression de radiation optique à l'interface et les effets relatifs à la présence d'une force diffusive en volume dans les deux phases de l'échantillon. Nous étudierons, tout d'abord, les différents régimes de déformations d'interfaces liquides observés en fonction de la puissance laser, lorsque le faisceau se propage de façon ascendante (depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent). Un étude dynamique de ces déformations sera réalisée. À l'aide de cette configuration expérimentale, nous pourrons notamment conclure sur l'existence de l'instabilité d'interface engendrée uniquement par la diffusion de la lumière dans les deux phases de l'échantillon et ainsi appuyer les prédictions numériques réalisées au cours du chapitre 5. Dans une seconde partie, nous réaliserons une étude similaire pour un faisceau laser incident se propageant dans le sens opposé, c'est–à–dire pour un faisceau descendant (depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent). Cette fois–ci, les effets de la pression de radiation optique et les écoulements en volume induits par la force diffusive seront dirigés dans le même sens. Enfin, nous utiliserons la configuration expérimentale à deux faisceaux lasers contra-propageants (présentée section 3.1.5) afin de tenter « d'annuler » les effets induits par la force diffusive dans chaque phase de l'échantillon. Cette dernière partie consistera en une collection de comparaisons entre les résultats de la partie précédente et ceux obtenus en double propagation afin d'essayer d'évaluer l'influence des effets de la force diffusive lors de la déformation d'une interface liquide.

7.1 Système fluide utilisé : phases micellaires de microémulsion

Cette partie a pour vocation de rappeler les caractéristiques principales et les avantages de l'utilisation de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre. Pour une présentation détaillée de ce système, le lecteur est invité à se rapporter à l'annexe A.2.

Nous nous sommes intéressé dans le présent chapitre à l'action d'une onde laser (tant en terme de pression de radiation qu'en terme de diffusion de lumière) focalisée à l'interface liquide d'un système composé de phases micellaires de microémulsion quasi–critique au voisinage d'une transition de phase du second ordre. Ce type de système a la particularité de posséder une tension interfaciale tendant vers zéro à l'approche d'un point critique selon la loi de puissance :

$$\sigma = \sigma_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C} \right)^{2\nu}, \tag{7.1}$$

où σ_0 est l'amplitude critique de la tension interfaciale, $(T - T_C)$ l'écart de la température de l'échantillon T à sa température critique T_C et $\nu = 0.63$, l'exposant critique (dépendant de la classe d'universalité ($d = 3$, $n = 1$) du modèle d'Ising (annexe A.2)). Nous sommes ainsi en mesure d'obtenir un système fluide présentant une interface de très basse tension interfaciale (de l'ordre de 10^{-6} N/m à 10^{-8} N/m) dont l'amplitude est modulable par le biais d'un contrôle en température comme cela est explicité par la relation 7.1.

Ces échantillons représentent une alternative intéressante à l'étude des effets de la pression de radiation optique et de la force diffusive, induits par une onde électromagnétique. En effet, par le contrôle thermique de l'échantillon, nous pouvons à la fois contrôler l'amplitude de la tension interfaciale (et donc engendrer des déformations d'interfaces pour des puissances laser largement accessibles expérimentalement) et d'autre part, nous pouvons moduler l'amplitude de la force diffusive présente, cette fois-ci, dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique (voir annexe A.2) en faisant varier la turbidité.

Le système, initialement homogène subit une séparation de phases au–delà d'une certaine température dit température critique (voir annexe A.2) et exhibe, à l'équilibre, une interface très déformable séparant deux phases liquides de concentrations micellaires différentes (celle « riche » en micelles d'eau dans l'huile se trouvant sous une autre appauvrie en micelles). Ces deux phases liquides, optiquement non–absorbantes, diffusent élastiquement l'onde incidente. La diffusion élastique de l'onde incidente dans le milieu induit un transfert de quantité de mouvement de la lumière au fluide environnant. Le transfert de quantité de mouvement provoque la mise en place d'un écoulement permanent au sein du fluide et, au voisinage d'une interface liquide molle, peut entraîner la déformation de celle-ci.

La température, et plus précisemment l'écart de la température T à laquelle l'échantillon est thermalisé par rapport à sa température critique T_C est donc un des paramètres importants que nous avons fait varier dans les expériences présentées dans ce chapitre (typiquement de $T - T_C = 0.5$ K à $T - T_C = 2$ K). Cette plage de variation en écart à la température critique de l'échantillon considéré permet en effet d'obtenir une tension interfaciale très basse tout en exacerbant les effets diffusifs.

7.2 Propagation de l'onde incidente depuis la voie basse (faisceau laser ascendant)

Dans cette partie, nous allons exposer les résultats obtenus lorsque l'interface d'un échantillon quasi–critique est illuminée par un faisceau laser focalisé se propageant depuis la voie basse, ce qui correspond à un faisceau laser ascendant (se propageant depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent dans ce cas). La figure 7.1 représente l'image expérimentale typique de la déformation d'une interface liquide, d'un système composé de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'une transition de phase du second ordre, par l'action d'une onde laser se propageant de manière ascendante. Comme dans les chapitres expérimentaux précédents, l'onde incidente est issue d'un laser Nd^{3+}–YAG doublé en fréquence possédant une longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm.

Tout d'abord, compte tenu du contraste d'indice de réfraction inhérent entre les deux

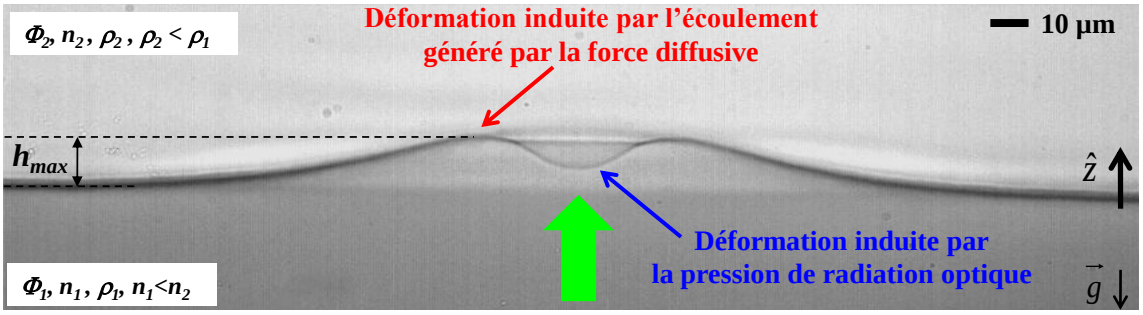


Fig. 7.1 – *Image expérimentale typique de la déformation de l'interface molle, d'un échantillon composé de phases micellaires de microémulsion. Sont visibles à la fois la déformation engendrée par la pression de radiation optique de l'onde incidente au niveau de l'interface, ainsi que la déformation induite par les écoulements en volume générés par la force diffusive dans le milieu. Caractéristiques :* $T - T_C = 1$ K, $\omega_0 = 9.8$ µm *et* $P = 1$ W.

phases en coexistence, il est à noter qu'une déformation induite par la pression de radiation de l'onde excitatrice est toujours présente et dirigée depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent, ce qui signifie qu'elle s'oppose au sens de propagation de l'onde incidente (dans ce cas). Dans la suite de cette partie, nous passerons sous silence les effets induits par cette force, ayant déjà fait l'objet de nombreuses études [51], pour nous concentrer sur les effets optiques issus de la force diffusive. Les écoulements permanents mis en place au sein du fluide par le transfert de quantité de mouvement entre la lumière incidente et le milieu diffusant environnant ont donc la possibilité d'engendrer la déformation significative de l'interface liquide dans le sens de propagation de l'onde incidente. Comme nous pouvons le voir très nettement sur la figure 7.1, le résultat obtenu est une large bosse de déformation, au centre de laquelle est présente la déformation issue des effets de la pression de radiation. La hauteur maximale de déformation notée h_{max} est définie comme l'altitude maximale, suivant l'axe $\hat{z}$, atteinte par l'interface déformée par rapport à l'altitude de l'interface au repos (*i.e.* en absence de source excitatrice). h_{max} correspond donc à la hauteur de « l'épaulement » présent sur toute une couronne entourant la déformation induite par la pression de radiation optique et située à une distance de l'ordre de quelques rayons au col du faisceau ω_0 par rapport à l'axe de propagation du faisceau laser.

7.2.1 Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser : apparition de différents régimes de déformations

Comme nous l'avons évoqué plus haut, nous allons focaliser notre attention sur les effets relatifs à la force diffusive en étudiant l'évolution des déformations d'interfaces liquides sous l'action d'une onde excitatrice continue. Outre la variation de l'écart à la température critique de l'échantillon utilisé, permettant de moduler l'amplitude de la tension interfaciale ainsi que celle de la force diffusive, nous allons utiliser les différents paramètres de l'onde excitatrice afin d'étudier ces effets optiques.

Un des paramètres directement ajustable est la puissance laser P du faisceau incident. Si on fixe l'écart à la température critique de l'échantillon considéré ainsi que le rayon au

col du faisceau ω_0, focalisé au niveau de l'interface, nous pouvons en effet étudier l'évolution du comportement de l'interface liquide en fonction de P. La figure 7.2 présente cette évolution.

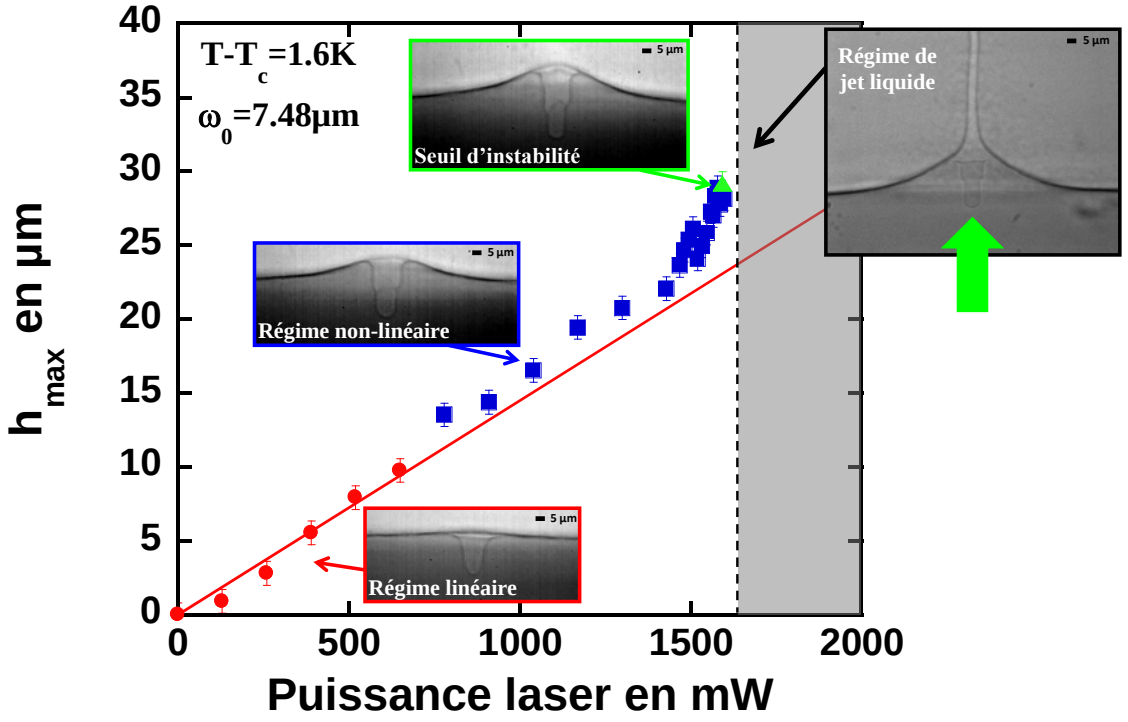


Fig. 7.2 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} en fonction de la puissance laser P. Observation de différents régimes de déformations. Caractéristiques expérimentales : $T - T_C = 1.6$ K et $\omega_0 = 7.48$ µm (faisceau laser ascendant).*

Lorsqu'on augmente progressivement la puissance laser P, délivrée au niveau de l'interface de l'échantillon, nous pouvons observer la succession de différents régimes de déformations. À faible puissance laser (*i.e.* pour $P < 800$ mW dans l'exemple présenté figure 7.2) nous observons des déformations d'interfaces de faible amplitude. La pente locale que fait l'interface par rapport à l'horizontale (*i.e.* par rapport à l'interface au repos) reste faible devant l'unité. Dans ce régime, la hauteur de déformation se comporte linéairement avec la puissance laser croissante comme cela est traduit par la régression linéaire effectuée sur la figure 7.2. Ainsi, nous appelons ce régime, le régime linéaire de déformation. Ce régime linéaire est présent quelque soit l'écart à la température critique $T - T_C$ appliqué à l'échantillon et quelque soit le rayon du faisceau au col, ω_0, choisi. C'est donc une caractéristique commune à tous les résultats expérimentaux présentés dans ce manuscrit. En effet, nous avons pu également observer ce régime linéaire de déformation (induite par la force diffusive) lors des expériences effectuées avec le système fluide ne présentant qu'une seule phase diffusante en coexistence avec une phase transparente (chapitre 6).

Au–delà de ce régime linéaire, le comportement de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser devient non–linéaire (de $P \sim 800$ mW à $P \sim 1600$ mW pour l'exemple présenté figure 7.2). Les formes adoptées par l'interface liquide dans ce nouveau régime de déformation exhibent une large « bosse » de déformation induite par la force

diffusive. La pente locale de l'interface n'est plus négligeable devant l'unité et les modèles développés dans les références citées plus haut ne sont plus valables dans ce régime.

Lorsqu'on augmente encore la puissance laser, nous atteignons un seuil d'instabilité au–delà duquel la déformation d'interface liquide induite par la force diffusive est caractérisée par la présence d'une « pointe liquide » (plus ou moins identifiable) au sommet de la bosse de déformation stationnaire, comme nous pouvons le voir sur la figure 7.2 pour une puissance de $P \sim 1600$ mW (dans l'exemple présenté figure 7.2).

Enfin, si on effectue une nouvelle augmentation de la puissance laser et donc que l'on franchit ce seuil en puissance, nous observons la déstabilisation de l'interface liquide soumise aux contraintes visqueuses exercées par les écoulements en volume générés par la force diffusive dans le milieu. Il en résulte une élongation de cette « pointe liquide » formée au sommet de la déformation d'interface donnant naissance à un jet liquide dont le diamètre est d'échelle micrométrique. Ce micro–jet liquide est donc induit uniquement par les effets de la force diffusive, dans le sens de propagation de l'onde incidente et parallèle à celle-ci (mais décalé radialement par rapport à l'axe de propagation du faisceau laser car l'indice de réfraction est inférieur à celui du milieu environnant). L'émergence de ce jet liquide peut satistiquement avoir lieu sur toute la « couronne » centrée sur la déformation induite par la pression de radiation optique (qui elle se trouve sur l'axe du faisceau laser). Un endroit précis sur cette « couronne » peut être privilégié en dérèglant très légèrement l'alignement du faisceau laser.

Ce nouveau régime d'instabilité, prédit numériquement au chapitre 5 et déjà rencontré au cours du chapitre 6 où seule une des deux phases liquides en coexistence diffusait la lumière incidente, n'est observable que sous certaines conditions. En effet, une très faible tension interfaciale de l'échantillon considéré est indispensable à l'observation de cette nouvelle instabilité d'interface liquide à l'aide de puissances laser « raisonnables » (*i.e.* $P < 3$ W).

Dans la suite, nous allons détailler chaque régime de déformation présenté ci-dessus.

7.2.2 Régime linéaire de déformation

Suite aux prédictions numériques réalisées au chapitre 5 où uniquement les effets de la force diffusive en volume étaient considérés lors de la déformation d'interfaces liquides, nous avons réalisé des simulations numériques prenant en compte à la fois cette force diffusive et les effets de la pression de radiation optique. Nous allons donc présenter une collection de différentes comparaisons entre expériences et simulations numériques obtenues dans le cadre de ce régime linéaire de déformation.

Profils stationnaires de déformations d'interfaces liquides dans le régime linéaire de déformation

Considérons le régime linéaire de déformation, les profils de déformations stationnaires présentent, comme nous l'avons évoqué plus haut, une faible « bosse » de déformation induite par les écoulements en volume générés par la force diffusive dans le milieu. Un modèle numérique a été développé au sein de notre équipe afin de résoudre l'équation d'équilibre de l'interface liquide soumise à la fois à la pression de radiation optique et aux

contraintes visqueuses exercées par les écoulements en volume générés par la force diffusive au niveau de l'interface liquide. Ce problème est résolu par l'intermédiaire d'une méthode des éléments de frontière (BEM) présentée brièvement section 3.2 et détaillée dans la thèse de H. Chraïbi [85]. La figure 7.3, extraite du manuscrit de thèse de H. Chraïbi [85], nous montre en effet une étude purement numérique de la déformation d'une interface liquide (pour le même système fluide que celui utilisé dans ce chapitre expérimental) en prenant en compte à la fois la pression de radiation optique et les effets de la force diffusive en volume. Cette étude confirme numériquement la présence de quatre tourbillons principaux (deux dans chaque phases de l'échantillon) responsables de l'élévation de l'interface dans le sens de propagation de l'onde incidente.

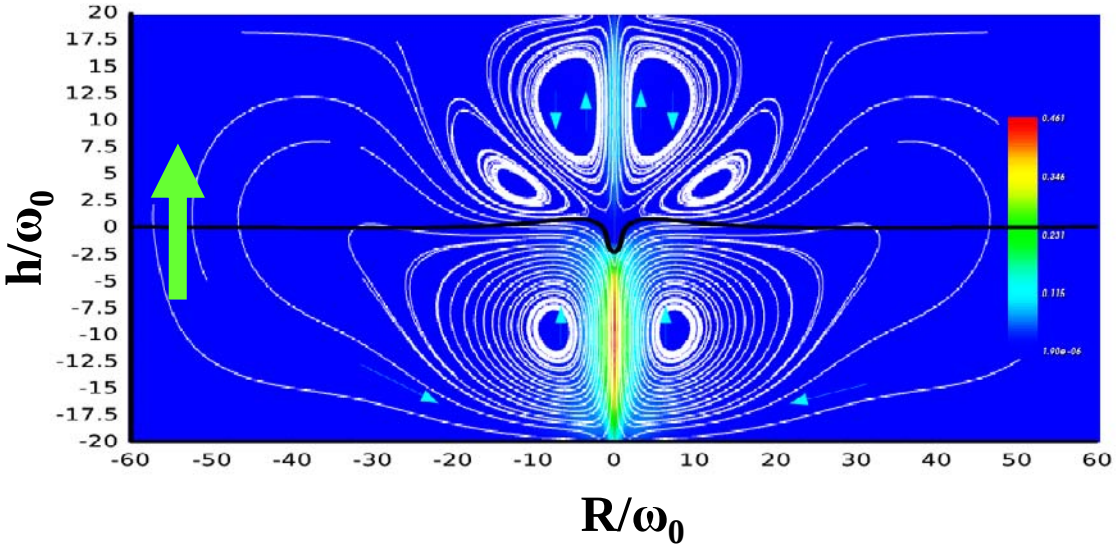


Fig. 7.3 – *Étude numérique de la déformation d'une interface liquide d'un système composé de phases micellaires de microémulsion identique à celui utilisé dans ce chapitre expérimental. La modélisation numérique prend en compte à la fois la pression de radiation optique à l'interface entre les deux phases de l'échantillon ainsi que les effets de la force diffusive en volume. Les lignes de courants stationnaires sont modélisées, le sens de l'écoulement est représenté schématiquement par les flèches et le champ scalaire correspond à l'intensité des vitesses (celles-ci étant plus importantes proche de l'axe du faisceau incident). La propagation de l'onde incidente est ascendante. Caractéristiques : $Bo = \left(\frac{\omega_0}{l_c}\right)^2 = 0.01$ et $\xi = \frac{4P}{\pi c \omega_0 \sigma} \frac{n_1(n_2-n_1)}{(n_2+n_1)} = 8$, représente le rapport entre la pression de radiation et les effets capillaires [85].*

Plus récemment, quelques comparaisons expériences – modélisations numériques ont été présenté dans la référence [74]. Nous proposons de compléter l'étude réalisée afin d'appuyer notamment la valeur du modèle physique. Les figures 7.4 et 7.5 regroupent les différents ajustements de profils stationnaires expérimentaux que nous avons réalisé à l'aide de ce modèle numérique. Ces ajustements sont effectués pour les écarts à la température critique $T - T_C = 1$ K et $T - T_C = 1.5$ K, pour différents rayons au col du faisceau laser ω_0 et pour quelques puissances laser décrivant le régime linéaire de déformation (ces puissances sont reportées sur les figures). Les figures 7.4 et 7.5 représentent la hauteur de déformation de l'interface liquide h normalisée par le rayon au col du faisceau ω_0 en fontion de l'extension radiale de la déformation R normalisée également à ω_0.

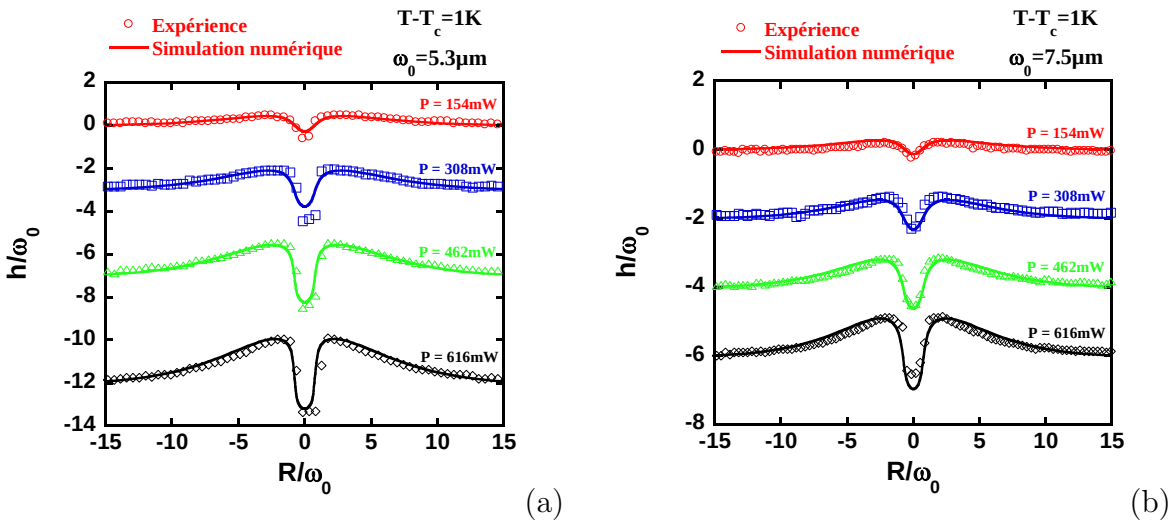


Fig. 7.4 – *Comparaisons des profils stationnaires expérimentaux avec les profils stationnaires simulés à l'aide du modèle numérique (la hauteur de déformation h ainsi que l'extension radiale de celle-ci R sont adimensionnées à ω_0). (a) $T - T_C = 1$ K et $\omega_0 = 5.3$ µm. (b) $T - T_C = 1$ K et $\omega_0 = 7.5$ µm. (Les profils sont décalés verticalement pour plus de clarté.)*

Les figures 7.4 et 7.5 montrent un très bon accord entre les résultats expérimentaux et les profils issus de la simulation numérique pour différentes puissances, différents cols de faisceau et différents écarts à la température critique. Ce résultat important permet de valider le modèle physique dans le régime linéaire de déformation. Ceci nous confirme également le fait que les effets inhérents à la force diffusive participent pleinement à l'élévation de l'interface liquide dans le sens de propagation de l'onde incidente (lorsque le système est thermalisé à une température proche de la température critique, de manière à ce que la tension interfaciale soit suffisamment basse pour que les effets de cette force diffusive deviennent perceptibles).

Évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser : comparaison expérience – modélisation numérique

Afin de compléter cette comparaison entre expériences et modélisation numérique dans le régime linéaire de déformation, nous avons réalisé une étude de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser dans ce régime.

Les figures 7.6 et 7.7 représentent les résultats obtenus lors des comparaisons expériences – modélisations numériques de l'évolution de la hauteur de déformation h_{max} normalisée à ω_0 en fonction de la puissance laser P dans le régime linéaire de déformation. Ces comparaisons sont réalisées pour les mêmes caractéristiques expérimentales que celles présentées sur les figures 7.4 et 7.5.

Une fois encore, on peut remarquer un bon accord entre expériences et simulations numériques, tout particulièrement pour $\omega_0 = 7.5$ µm (quelque soit l'écart à la température critique $T - T_C$) et pour $\omega_0 = 9.8$ µm ($T - T_C = 1.5$ K). L'ajustement numérique est plus discutable concernant le plus petit rayon au col du faisceau $\omega_0 = 5.3$ µm et $T - T_C = 1$ K. Il est à noter que toutes ces simulations numériques ont été réalisées en prenant en compte

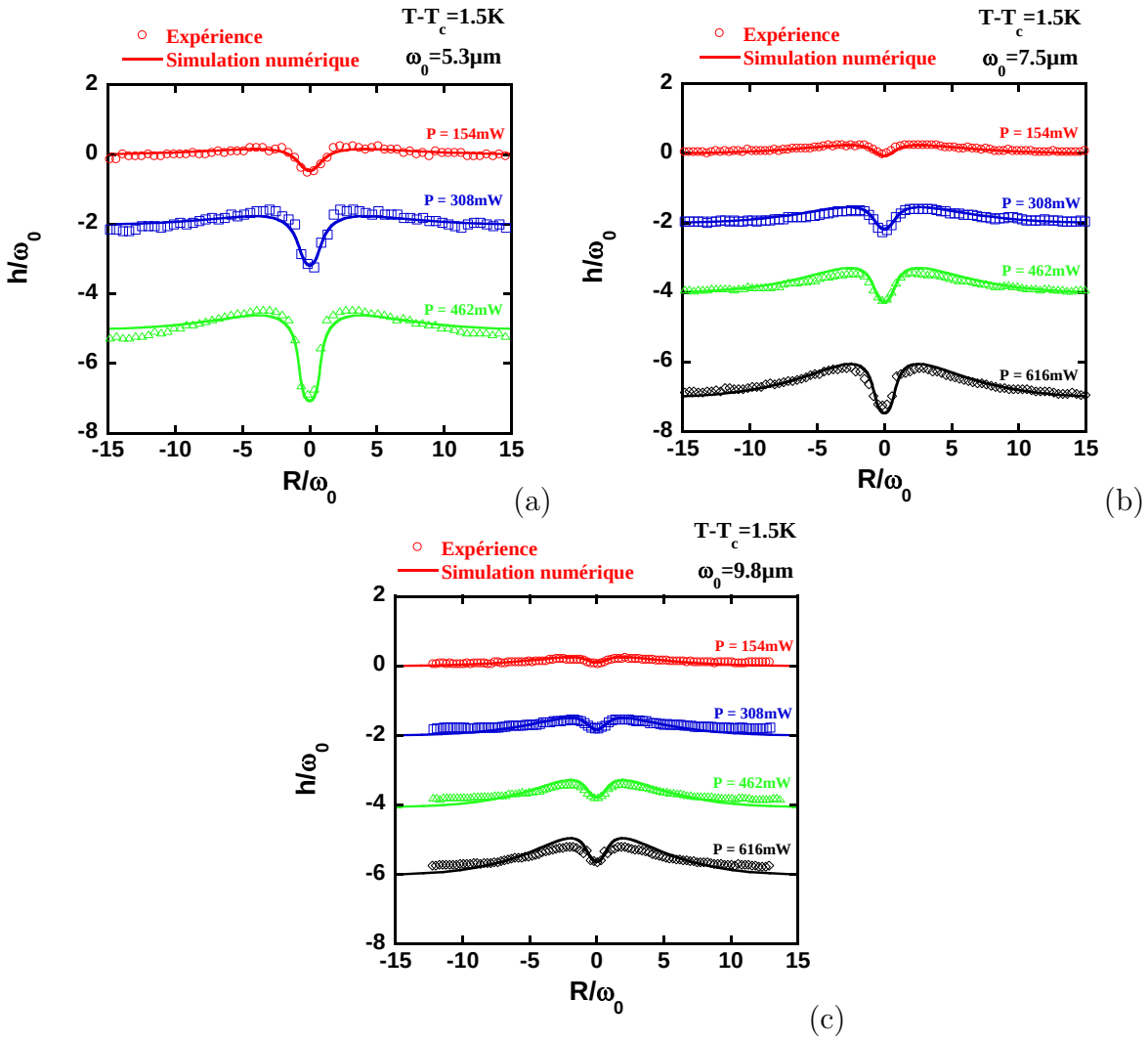


Fig. 7.5 – *Comparaisons des profils stationnaires expérimentaux avec les profils stationnaires simulés à l'aide du modèle numérique (la hauteur de déformation h ainsi que l'extension radiale de celle-ci R sont adimensionnées à ω_0). (a) $T - T_C = 1.5$ K et $\omega_0 = 5.3$ µm. (b) $T - T_C = 1.5$ K et $\omega_0 = 7.5$ µm. (b) $T - T_C = 1.5$ K et $\omega_0 = 9.8$ µm. (Les profils sont décalés verticalement pour plus de clarté.)*

exactement les même paramètres numériques que ceux utilisés en expérience ($T - T_C$, P et ω_0). Les meilleurs ajustements numériques des résultats expérimentaux présentés dans cette thèse ont été réalisés typiquement pour des rayons au col du faisceau plutôt « importants » ($\omega_0 > 7$ µm) et pour $T - T_c = 1.5$ K. Effectivement, c'est dans ces conditions que l'on obtenait une meilleure convergence du code numérique et les meilleurs résultats (*i.e.* les plus proches de ceux observés expérimentalement). À l'heure actuelle, nous n'avons pas d'explication claire concernant le désaccord à petits rayons au col du faisceau. Nous pensons, sans que cela soit prouvé, que ce désaccord vient des effets de la pression de radiation. En effet, plus le col du faisceau est petit, plus ceux–ci sont exacerbés de sorte que la déformation associée devient plus rapidement non–linéaire. Or, compte tenu du chapitre 4, il apparaît que cette non–linéarité est de deux ordres. D'une part, la pression de radiation devient non–linéaire en fonction de l'angle d'incidence de l'onde

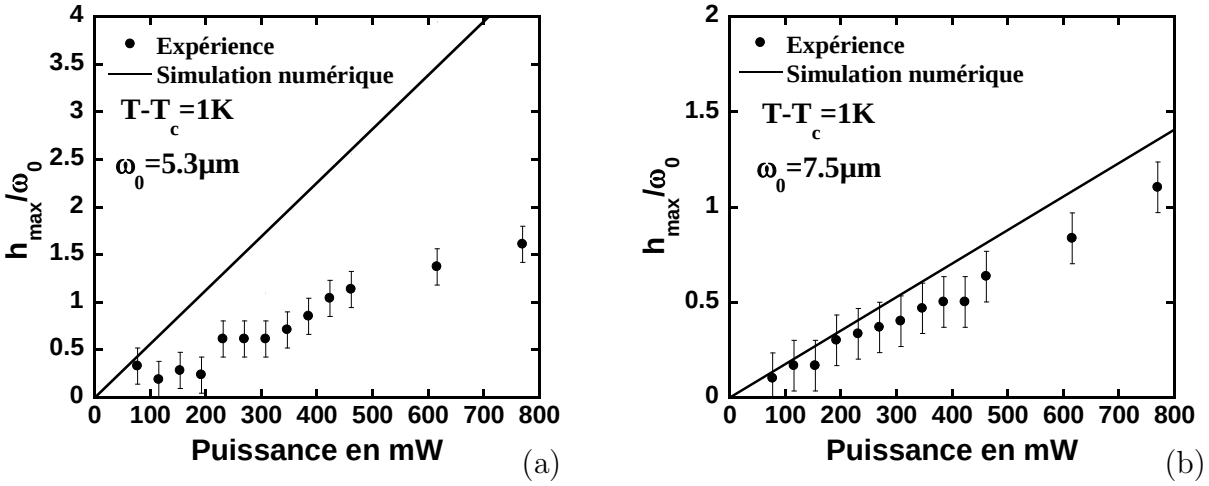


Fig. 7.6 – *Comparaison expérience – simulation numérique de l'évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} normalisée à ω_0 en fonction de la puissance laser P. (a) $T - T_C = 1$ K et $\omega_0 = 5.3$ µm. (b) $T - T_C = 1$ K et $\omega_0 = 7.5$ µm.*

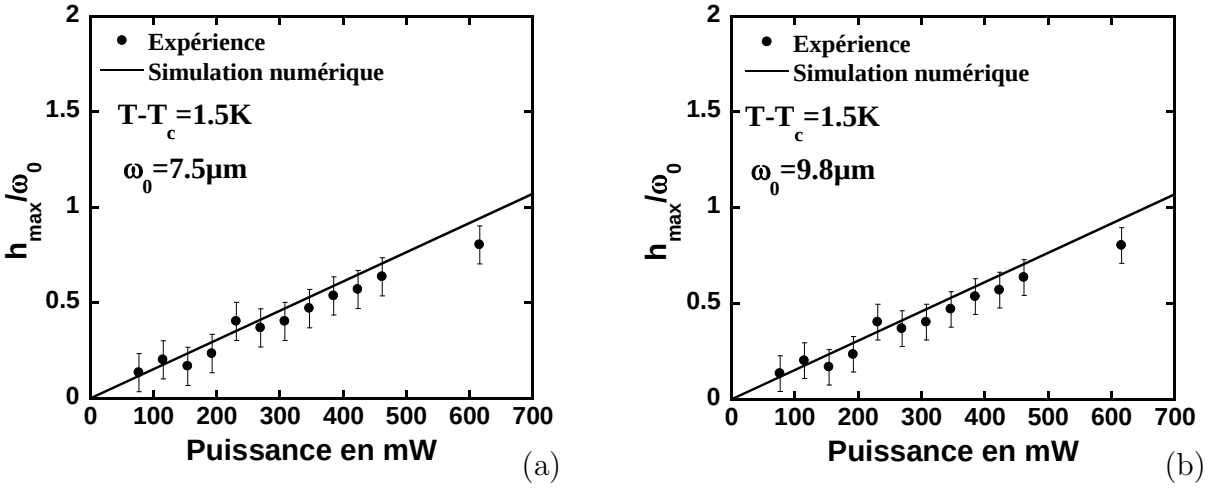


Fig. 7.7 – *Comparaison expérience – simulation numérique de l'évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} normalisée à ω_0 en fonction de la puissance laser P. (a) $T - T_C = 1.5$ K et $\omega_0 = 7.5$ µm. (b) $T - T_C = 1.5$ K et $\omega_0 = 9.8$ µm.*

excitatrice sur les déformations. Cet aspect est pris en compte dans le modèle. D'autre part, il apparaît un couplage entre la propagation de l'onde et la déformation d'interface qui modifie la forme de l'onde et amplifie l'amplitude des déformations. Ce couplage n'est pas pris en compte dans le modèle. Or, accroissant l'effet de la pression de radiation, on s'attend à ce qu'il allonge (ou « tire ») l'interface liquide vers le bas de manière plus importante que prévue et donc produise un abaissement général sur une extension radiale de quelque tailles de cols de faisceau. Ceci pourrait expliquer le désaccord observé.

Évolution temporelle de la hauteur de déformation

Dans cette partie, nous présentons quelques résultats expérimentaux issus d'une étude dynamique des déformations d'interfaces liquides observées dans le régime linéaire de déformation. Si une première étude près du point critique fut réalisée par A. Casner au cours de sa thèse [51], les résultats qu'il présentait ne prenaient aucunement en compte l'influence des effets de la force diffusive et il ne considérait que les effets inhérents à la pression de radiation optique. En effet d'une part, les expériences réalisées à l'époque étaient effectuées pour des écarts à la température critique bien supérieurs à ceux considérés dans le présent travail. D'autre part, l'existence de cette contrainte supplémentaire à la pression de radiation optique n'était pas soupçonnée. Néanmoins, une partie de la thèse de A. Casner présente des résultats expérimentaux pour des écarts à la température critique plus faibles ($T - T_C = 1.5$ K) où il a notamment pu observer, à forte puissance laser, l'élévation de l'interface liquide sous l'action de l'onde incidente dans le sens de propagation de l'onde excitatrice. À l'époque, il avait attribué cette élévation de l'interface à des effets thermiques au voisinage du point critique (typiquement un effet thermocapillaire). Depuis, nous avons démontré que cet effet est bien issu de la génération d'écoulements permanents au sein du fluide induits par une force diffusive en volume. Une étude temporelle de ces déformations « thermocapillaires » avait été réalisée mais sur un temps d'acquisition relativement court (quelques secondes). L'observation de la dynamique de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs exhibait une saturation au bout de quelques secondes (figure 7.8 (a)). Il a donc été conclut qu'un ajustement des points expérimentaux par une loi de saturation exponentielle classique permettait de décrire fidèlement la dynamique de la déformation de l'interface par cet « effet themocapillaire ». La loi de saturation exponentielle était du type [51] :

$$\frac{h_{th}(t)}{h_{th}(t \to \infty)} = 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{th}}\right), \tag{7.2}$$

où $h_{th}(t)$ était la hauteur de déformation au cours du temps et $h_{th}(t \to \infty)$, la hauteur aux temps longs. τ_{th} représentait le temps caractéristique de croissance de la déformation et était de l'ordre de la seconde dans les expériences de A. Casner.

Au cours de nos expériences, nous avons également réalisé des études temporelles de la dynamique de déformation de l'interface liquide soumise à une onde excitatrice. Nos travaux étant tous à des écarts à la température critique faibles ($T - T_C < 2$ K), la tension interfaciale de l'échantillon diphasique est très basse et les effets de la force diffusive sont exarcerbés en sus de la dynamique temporelle due à la pression de radiation. En observant les dynamiques de la hauteur de déformation induite par les effets diffusifs (en effet, il s'agit d'une mesure temporelle de la hauteur de l'« épaulement » formée par la bosse de déformation due aux effets diffusifs) sur un laps de temps de la dizaine à quelques dizaines de secondes, nous nous sommes aperçu que l'interface liquide présentait bien une élévation de sa hauteur durant les premières secondes de l'expérience, mais subissait une relaxation aux temps plus longs comme cela est montré sur la figure 7.8 (b). Cette relaxation n'avait pas été observée à l'époque (compte tenu de la durée trop courte de l'acquisition temporelle). Une séquence d'images expérimentales correspondant à la courbe présentée figure 7.8 (b) est donnée figure 7.9 permettant également de confirmer cette relaxation aux temps longs.

L'évolution temporelle de la déformation d'interface est donc similaire aux observations faites par A. Casner pour des temps courts mais diffère aux temps longs. La hauteur de déformation ne sature qu'après un certain laps de temps (typiquement d'une dizaine à une trentaine de secondes). Cette information est capitale d'un point de vue expérimental, car dès lors, nous savons qu'il est nécessaire d'attendre un certain temps avant de pouvoir observer une déformation d'interface stationnaire.

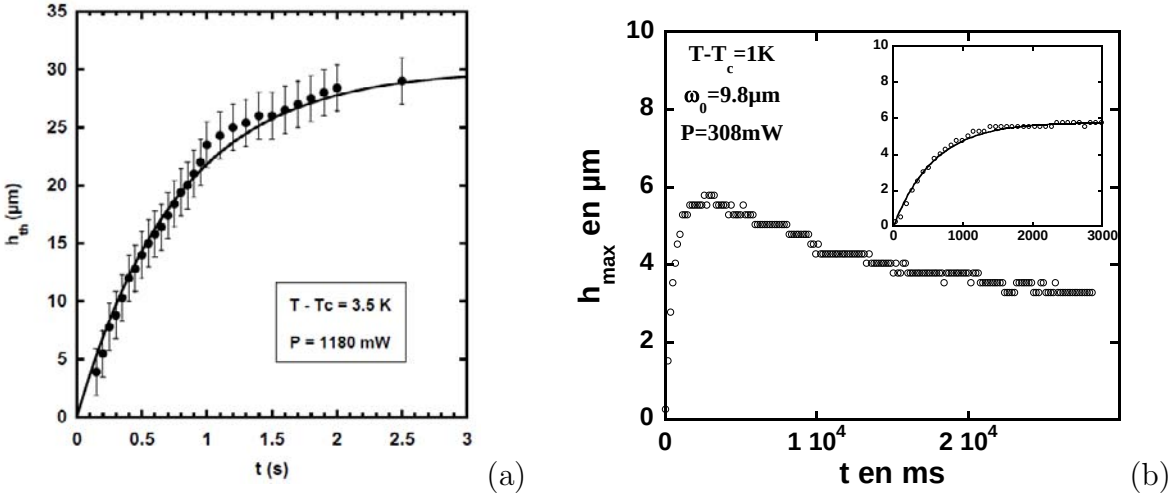


Fig. 7.8 – *(a) Évolution temporelle de la hauteur de déformation issue des études de A. Casner [51]. L'onde incidente (ascendante) est issue d'un laser Argon ionisé (Ar^+) de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 514.5$ nm, de rayon $\omega_0 = 4.8$ µm et de puissance $P = 1180$ mW. L'échantillon critique est régulé à $T - T_C = 3.5$ K. Les symboles représentent les résultats expérimentaux ajustés avec la loi de saturation exponentielle de la formule 7.2 et un temps caractéristique de $\tau_{th} = 1.3$ s. (b) Évolution temporelle de la hauteur de l'« épaulement » de la déformation induite par les écoulements en volume générés par la force diffusive et par la pression de radiation. Caractéristiques : $T - T_C = 1$ K, $\omega_0 = 9.8$ µm et $P = 308$ mW. En insert est réalisé un zoom de la partie croissante de l'évolution temporelle de la hauteur de déformation sur les 3 premières secondes de la dynamique. Un ajustement avec une loi de saturation exponentielle du même type que celle de la formule 7.2 donne un temps caractéristique de croissance $\tau_1 = 585$ ms.*

La différence des comportements temporels observés entre les figures 7.8 (a) et 7.8 (b) est immédiate et concerne essentiellement la durée d'acquisition sur laquelle est réalisée cette expérience. En effet, comme on peut le constater sur l'insert de la figure 7.8 (b), où est représenté la première partie de l'évolution temporelle de la hauteur de déformation durant les 3 premières secondes de l'expérience, nous retrouvons le comportement dynamique global observé par A. Casner. La hauteur de déformation croît en fonction du temps jusqu'à atteindre un semblant de saturation (au bout de quelques secondes).

Comme nous venons de le constater, le comportement temporel de la hauteur de déformation n'obeit pas simplement à une loi de saturation exponentielle, comme déduite par les expériences de A. Casner, mais de manière plus complexe. La croissance de la déformation aux temps courts semble se comporter suivant une loi du type 7.2, comme l'atteste l'ajustement réalisé sur les données expérimentales présentées dans l'insert de la figure 7.8 (b). Mais à ce stade, la déformation d'interface n'est pas stationnaire car on peut observer une relaxation aux temps longs. Il existe donc vraisemblablement deux

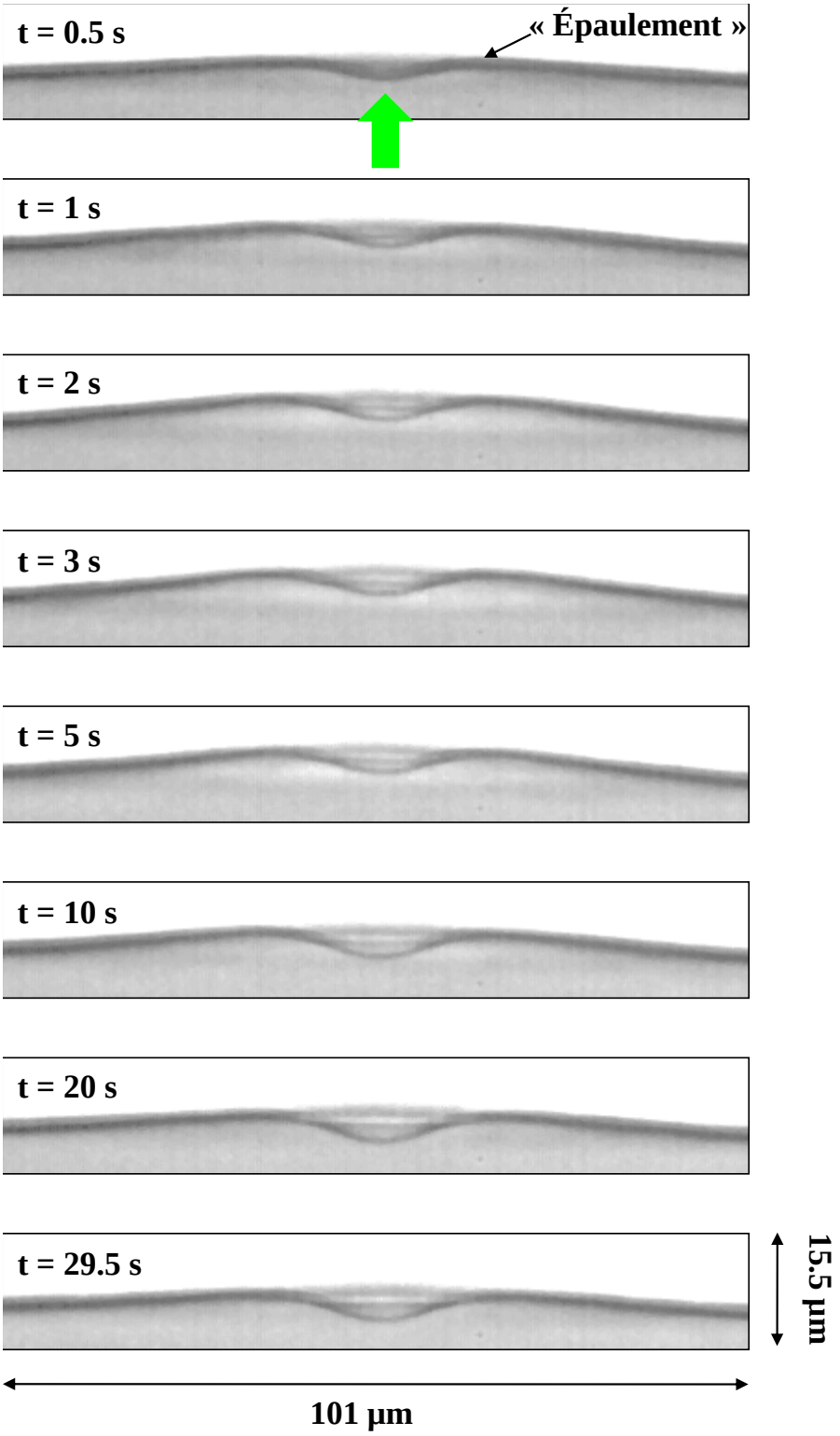


Fig. 7.9 – *Séquence d'images expérimentales décrivant l'évolution temporelle de la hauteur de déformation induite par les effets de la force diffusive. Cette séquence correspond aux résultats présentés sur la figure 7.8 (b). Caractéristiques :* $T - T_C = 1$ K, $\omega_0 = 9.8$ µm *et* $P = 308$ mW. *L'état stationnaire de la déformation d'interface n'est obtenu qu'au bout d'une trentaine de secondes.*

temps caractéristiques disctincts : l'un correspondant à la croissance de la déformation, aux temps courts et un autre aux temps longs caractérisant la relaxation de cette déformation.

Rappelons que la dynamique expérimentale présentée figure 7.8 (b) correspond à la mesure temporelle de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs. Si nous reprenons une dynamique similaire à celle présentée figure 7.8 (b) mais cette fois en confrontant l'évolution temporelle de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs avec l'évolution temporelle de la pointe de la déformation induite par les effets de la pression de radiation, obtenons–nous une allure dynamique similaire (moyennant un facteur multiplicatif sur l'amplitude de la déformation) ? La réponse à cette question est apportée par la figure 7.10.

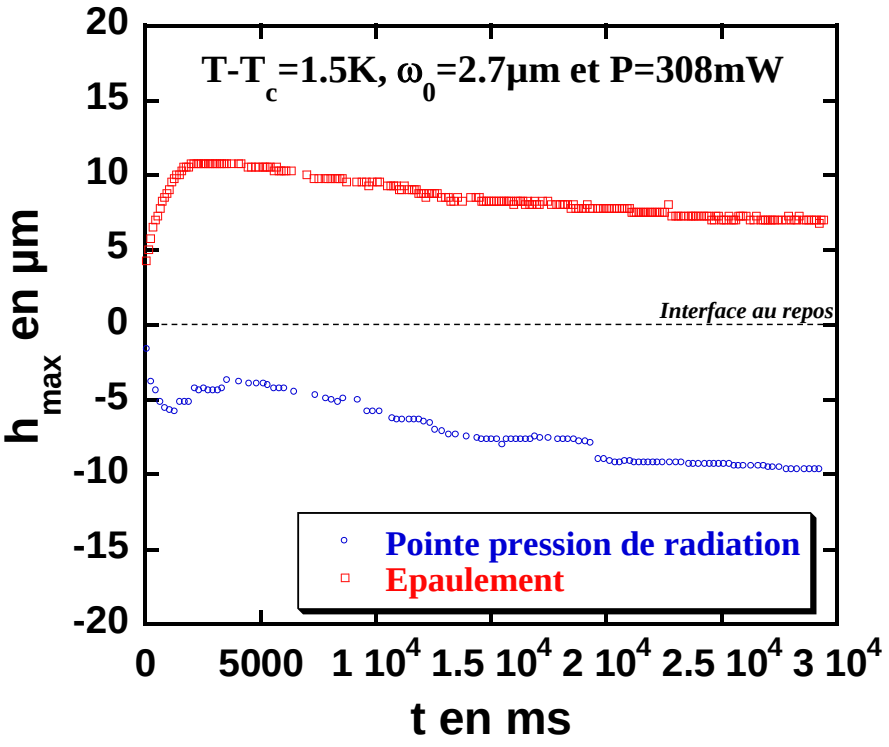


Fig. 7.10 – *Évolution temporelle de la hauteur de déformation de l'interface liquide pour* $T-T_C = 1.5$ K, $\omega_0 = 2.7$ µm *et* $P = 308$ mW. *Les cercles bleus correspondent à la mesure temporelle de la pointe de la déformation engendrée par la pression de radiation. La carrés rouges représentent l'évolution temporelle de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs.*

À l'aide de la figure 7.10, il apparaît très nettement que l'évolution temporelle de la pointe de la déformation engendrée par les effets de la pression de radiation optique se comporte différemment de celle de l'« épaulement » de la bosse de déformation relative aux effets diffusifs. Sur la dynamique de la pointe de la déformation (cercles bleus sur la figure 7.10), nous observons aux temps très courts l'influence de la pression de radiation qui tend à abaisser l'interface liquide. S'en suit une élévation de l'interface due aux effets relatifs à la force diffusive. Enfin, au temps très longs, une relaxation est une fois de plus observée. Il semble exister en définitive trois temps caractéristiques distincts : l'un aux temps très courts probablement représentatif des effets de la pression de radiation,

un autre aux temps un peu plus longs correspondant à l'élévation de l'interface liquide par les effets de la force diffusive et enfin un dernier aux temps très longs traduisant une relaxation de l'interface déformée.

D'après les travaux de R. Wunenburger *et al.* [83], le temps caractéristique relatif aux effets de la pression de radiation est apparenté à un temps visqueux s'exprimant [83] :

$$\tau_{visq} = \frac{4 \langle \eta \rangle \omega_0}{\sigma (1 + Bo)}, \tag{7.3}$$

où $\langle \eta \rangle$ est la viscosité dynamique moyenne et $Bo = (\omega_0/l_c)^2$, le nombre de Bond optique.

Pour un écart à la température critique de $T - T_C = 1.5$ K et un rayon au col du faisceau de $\omega_0 = 5$ µm, ce temps caractéristique visqueux est de l'ordre de $\tau_{visq} \sim 0.2$ s.

Si l'on s'intéresse à l'évolution temporelle de la pointe de la déformation, présentée figure 7.10, nous pouvons, en considérant que l'interface est faiblement déformée, supposer que les effets de la pression de radiation optique et les effets diffusifs ne sont pas couplés. Ainsi, en faisant abstraction de la relaxation de la dynamique aux temps longs, nous tentons d'interpréter l'évolution temporelle de la hauteur de déformation par une loi empirique additionnant les effets de la pression de radiation et de la force diffusive.

Sur la figure 7.11, nous avons ajusté l'évolution temporelle aux temps courts (durant les 4 premières secondes) par une loi empirique de la forme :

$$h(t) = \alpha \left[\left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_1} \right) \right) - \beta \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2} \right) \right) \right]. \tag{7.4}$$

À l'aide de l'ajustement présenté figure 7.11, nous obtenons deux temps caractéristiques. L'un aux temps courts, valant $\tau_1 = 0.363$ s et un autre aux temps longs, $\tau_2 = 3.759$ s.

Comme nous l'avons introduit plus haut, il a été démontré par le passé, que le temps caractéristique correspondant aux effets de la pression de radiation est apparenté à un temps visqueux qui est de l'ordre de $\tau_{visq} \sim 0.2$ s pour les paramètres expérimentaux utilisés ici. Nous remarquons ainsi que le temps caractéristique aux temps courts, τ_1, correspondant à un abaissement de la déformation de l'interface liquide, semble bien cohérent avec le temps caractéristique τ_{visq}, relatif aux effets de la pression de radiation optique. En revanche, τ_2 correspond à une élévation de l'interface liquide et pourrait être attribué aux effets de la force diffusive.

Toujours en considérant l'évolution temporelle de la pointe de la déformation, nous avons réalisé des simulations numériques, prenant en compte à la fois les effets de pression de radiation et les effets diffusifs, pour deux ω_0 différents. Ceci est représenté figure 7.12 pour $\omega_0 = 5$ µm et $\omega_0 = 10$ µm ($T - T_C = 1.5$ K et $P = 400$ mW).

D'une part, d'après la simulation numérique de la figure 7.12, nous constatons que le rayon au col du faisceau a une influence non négligeable sur l'évolution temporelle de la pointe de la déformation. En effet, plus ω_0 est petit, plus les effets de la pression de radiation optique sont exacerbés et provoquent une abaissement important de l'interface liquide aux temps courts. Cette particularité s'estompe fortement à mesure que ω_0 augmente. Pour $\omega_0 = 10$ µm, l'abaissement de l'interface aux temps courts est toujours

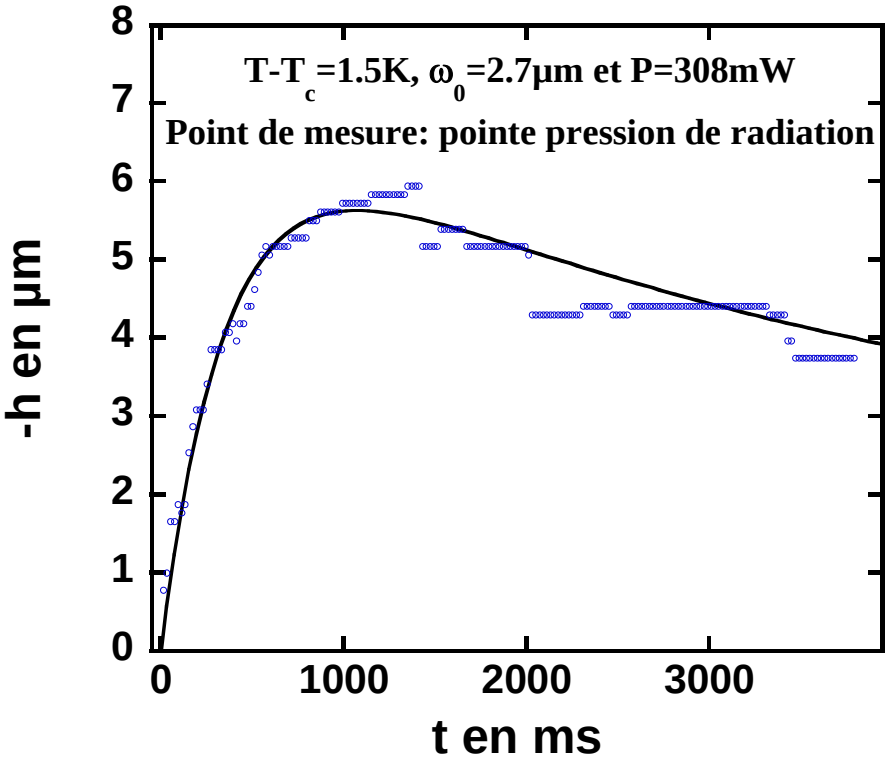


Fig. 7.11 – *Ajustement de l'évolution temporelle aux temps courts de la dynamique de déformation expérimentale de la pointe de la déformation, présentée figure 7.10, par la loi empirique 7.4 (l'ordonnée représente $-h$ pour plus de commodités par la suite). $T - T_C = 1.5$ K, $\omega_0 = 2.7$ µm et $P = 308$ mW. Le temps caractéristique aux temps très courts, représentatif des effets de la pression de radiation, vaut $\tau_1 = 0.363$ s et le temps caractéristique aux temps plus longs vaut $\tau_2 = 3.759$ s et semble caractériser les effets diffusifs car il correspond à une élévation de l'interface.*

présent mais beaucoup moins perceptible. Si on analyse ces dynamiques numériques de déformation à l'aide de la loi empirique 7.4, nous obtenons deux temps caractéristiques pour chaque courbe. Pour $\omega_0 = 5$ µm, nous avons $\tau_1 = 0.165$ s et $\tau_2 = 1.742$ s. Pour $\omega_0 = 10$ µm, on obtient $\tau_1 = 0.183$ s et $\tau_2 = 0.685$ s.

Concernant le temps caractéristique aux temps courts, τ_1, celui–ci est cohérent avec celui trouvé expérimentalement plus haut et *a fortiori* avec le temps visqueux τ_{visq}. Ce temps caractéristique aux temps courts est donc bien représentatif des effets de la pression de radiation. Aux temps plus longs, le temps caractéristique τ_2 traduit l'élévation de l'interface liquide due aux effets de la force diffusive.

Pour τ_2, les valeurs trouvées numériquement sont un peu plus disparâtres. Néanmoins nous pouvons remarquer que les valeurs de τ_1 et τ_2 sont relativement proches l'une de l'autre. Ceci traduit le fait qu'il est difficile de différencier, en terme de temps caractéristique, les effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive. La disparité observée numériquement pour τ_2 est donc probablement due à l'utilisation de la loi empirique, cette dernière n'ayant qu'une validité limitée car les différents effets semblent couplés et ne peuvent donc pas simplement s'additionner. La loi régissant ces évolutions temporelles est donc en réalité beaucoup plus complexe que notre simple analyse. En revanche, cette loi empirique a l'avantage de nous donner accès au bon ordre de grandeur

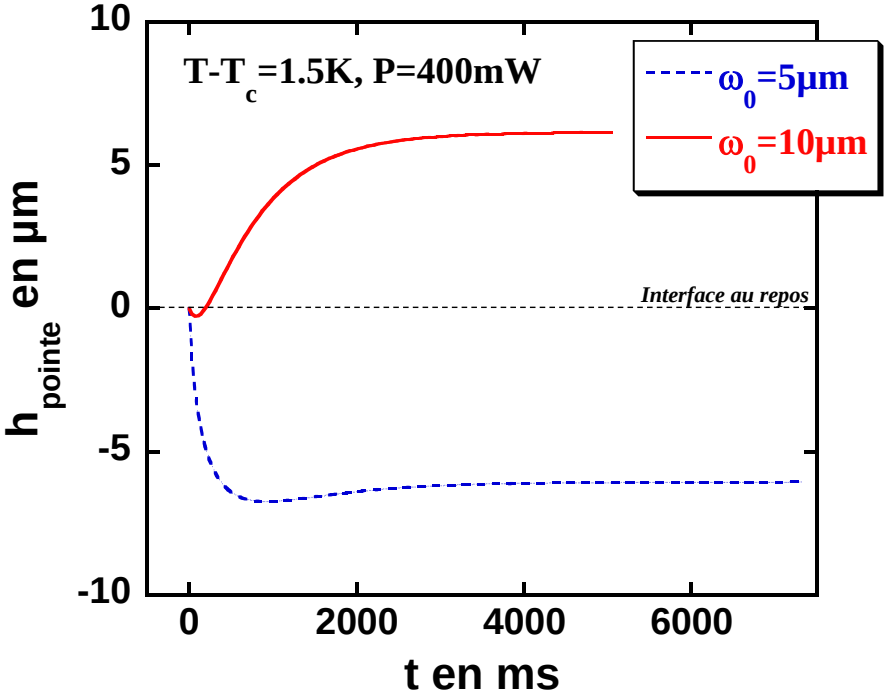


Fig. 7.12 – *Simulation numérique de l'évolution temporelle de la pointe de la déformation induite par la pression de radiation pour $T - T_C = 1.5$ K et $P = 400$ mW. Bleu : $\omega_0 = 5$ µm, rouge : $\omega_0 = 10$ µm. L'altitude $h_{pointe} = 0$ correspond à la position de l'interface liquide au repos. (Lors de ces simulations, à la fois les effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive sont pris en compte.)*

des temps caractéristiques relatifs à la pression de radiation et aux effets de la force diffusive.

Afin de faire le pendant numérique des observations expérimentales, nous avons repris les évolution temporelles numériques présentées figure 7.12 en analysant à présent l'évolution temporelle de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets de la force diffusive. Cette étude est donnée figure 7.13.

Premièrement, nous constatons que l'abaissement de l'interface liquide aux temps courts, mis en évidence par la figure 7.12, n'est plus observable lorsqu'on nous mesurons l'évolution temporelle de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs. L'interface liquide subit une élévation dans sa globalité et en ajustant ces dynamiques par une simple loi de saturation exponentielle du type 7.2, nous avons accès au temps caractéristique de cette élévation. Nous obtenons pour $\omega_0 = 5$ µm, $\tau = 0.740$ s et pour $\omega_0 = 10$ µm, $\tau = 0.692$ s. Ce temps caractéristique ne semble donc pas dépendre du rayon au col du faisceau ; de plus il est de l'ordre de grandeur de τ_2 trouvé numériquement en considérant la pointe de déformation pression de radiation, dont les évolutions temporelles sont étudiées figure 7.12. Ce temps caractéristique semble donc être celui associé à la dynamique diffusive. Afin de confirmer cette hypothèse, nous avons repris l'évolution temporelle de la figure 7.13 pour $\omega_0 = 5$ µm et nous l'avons confronté à l'évolution temporelle numérique en absence de pression de radiation. Ceci est exposé figure 7.14.

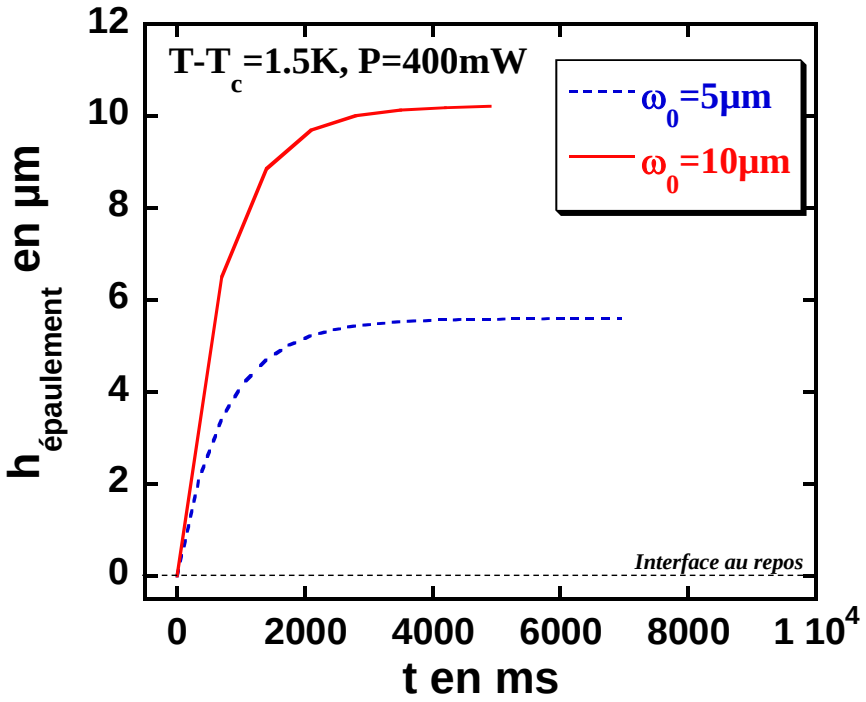


Fig. 7.13 – *Simulation numérique de l'évolution temporelle de l'« épaulement » de la déformation pour $T - T_C = 1.5$ K et $P = 400$ mW. En rouge : $\omega_0 = 5$ µm, en bleu : $\omega_0 = 10$ µm. Les effets de la pression de radiation et les effets de la force diffusive sont pris en compte lors de la simulation.*

D'après la comparaison entre les évolutions temporelles numériques figure 7.14, nous pouvons observer que les allures des dynamiques en présence et en absence de pression de radiation sont similaires. La différence d'amplitude est imputable aux effets de la pression de radiation qui ont tendance à abaisser l'interface liquide déformée.

De même que précédemment, si l'on effectue un ajustement des ces dynamiques numériques par une loi de saturation exponentielle classique, nous trouvons pour la simulation prenant en compte à la fois les effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive (courbe en pointillés sur la figure 7.14) : $\tau = 0.637$ s. Pour la simulation numérique réalisée en absence de pression de radiation (courbe en trait plein sur la figure 7.14), le temps caractéristique obtenu est exactement celui représentant les effets de la force diffusive car seuls ces effets engendrent une contrainte au niveau de l'interface liquide. Dans ce cas, le temps caractéristique, noté τ_{diff}, est égal à $\tau_{diff} = 0.740$ s.

Ainsi, au niveau de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs, les temps caractéristiques obtenus en présence et en absence de pression de radiation sont très voisins et sont de l'ordre de 0.7s pour les conditions expérimentales choisies. Cette étude prouve que l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs est le point de mesure permettant de décrire au mieux l'influence des effets inhérents à la force diffusive sur les déformations d'interfaces liquides engendrées sans se préoccuper de la présence d'une pression de radiation à l'interface.

Enfin, si l'on reprend les mesures dynamiques de la hauteur de l'« épaulement », dont un exemple est présenté au début de cette partie (figure 7.8 (b)), nous pouvons donc

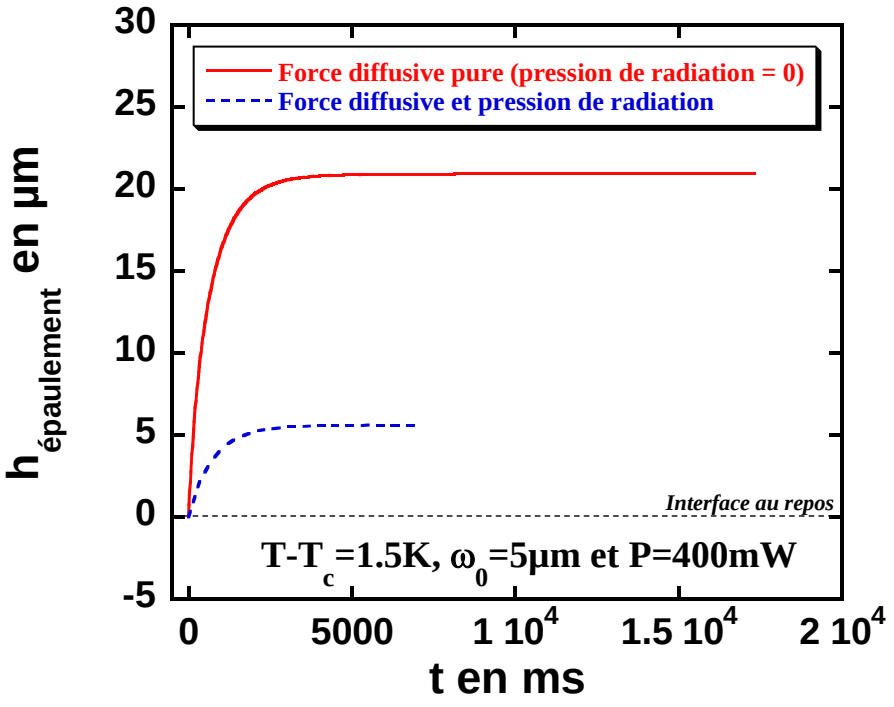


Fig. 7.14 – *Simulation numérique de l'évolution temporelle de l'« épaulement » de la déformation induite par la force diffusive pour* $T - T_C = 1.5$ K, $\omega_0 = 5$ µm *et* $P = 400$ mW. *En bleu, les effets de la pression de radiation et les effets de la force diffusive sont pris en compte lors de la simulation. En rouge, seul les effets diffusifs sont pris en compte.*

considérer deux temps caractéristiques. L'un est relatif aux effets diffusifs aux temps courts alors que l'autre, aux temps longs, est associé à la relaxation de l'interface déformée. L'ajustement par la relation empirique 7.4 d'un lot de dynamiques expérimentales nous permet d'étudier la variation de ce temps caractéritique aux temps courts, que l'on note τ_{diff}, en fonction du rayon au col du faisceau. Ceci est réalisé figure 7.15.

D'après la figure 7.15 (b), le temps caractéristique que l'on considère relatifs aux effets diffusifs, τ_{diff}, est indépendant du rayon au col du faisceau utilisé. Ceci nous confirme que ce temps caractéristique est bien associé à un effet non local et donc potentiellement aux écoulements en volume générés par la diffusion de la lumière dans le milieu. Ce temps caractéristique expérimental est de l'ordre de 0.5s, ce qui est cohérent avec les prédictions numériques réalisées plus haut.

En conclusion, les allures des évolutions temporelles obtenues expérimentalement et numériquement sont comparables aux temps courts (*i.e.* durant les premières secondes de l'expérience).

Si l'on considère l'évolution temporelle mesurée au niveau de la pointe de la déformation induite par les effets de la pression de radiation optique, le temps caractéristique aux temps très courts obtenu expérimentalement est cohérent avec un temps visqueux relatifs aux effets de la pression de radiation [83].

En considérant à présent l'évolution temporelle mesurée au niveau de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs, les temps caractéristiques obtenus aux temps courts sont indépendants du rayon au col du faisceau utilisé et sont de l'ordre de 0.5s. Ce temps caractéristique est donc relatif à un effet non local et concorde

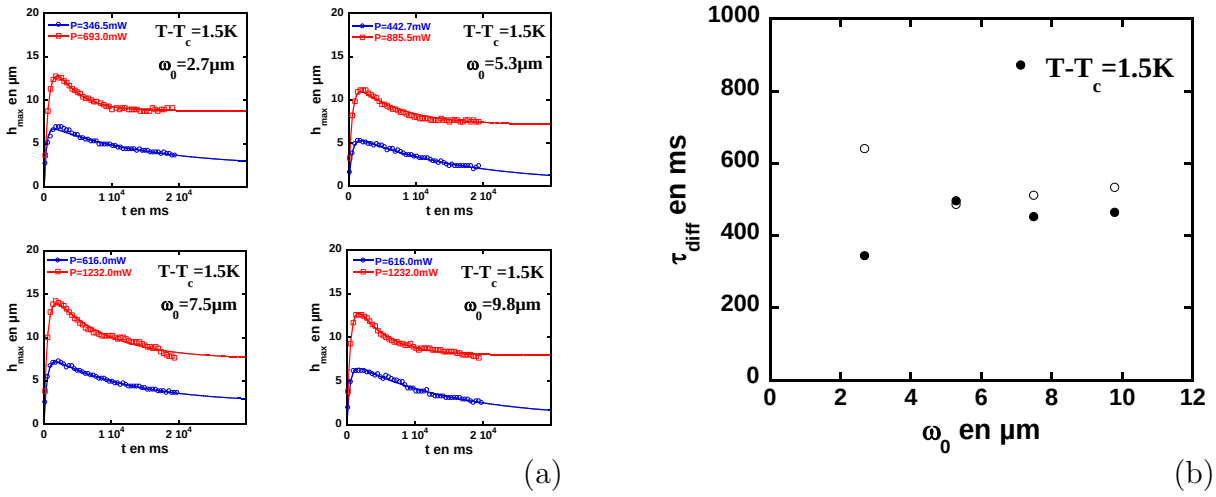


Fig. 7.15 – *(a) Ajustement des dynamiques de la hauteur de déformation induite par les effets de la force diffusive par la loi empirique 7.4, pour différents cols de faisceau et deux puissances par ω_0. $T - T_C = 1.5$ K et les différents ω_0 et P sont reportés sur les graphiques. (b) Évolution du temps caractéristique aux temps courts issu des ajustements réalisés sur les dynamiques de la figure 7.15 (a) en fonction du rayon au col du faisceau. Ce temps caractéristique, noté τ_{diff}, est assimilé aux temps caractéristique relatifs aux effets de la force diffusive. (Les ronds creux et pleins correspondent aux deux puissances étudiées pour chaque dynamique de la figure 7.15 (a).)*

avec l'ordre de grandeur du temps caractéristique prédit numériquement lorsque seuls les effets de la force diffusive participent à la déformation de l'interface liquide. La loi empirique 7.4 utilisée dans cette partie nous permet d'avoir accès à un bon ordre de grandeur des temps caractéristiques relatifs aux effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive. Néanmoins, ces temps caractéristiques étant relativement proches, il est difficile de dissocier proprement les deux effets et ce modèle se basant sur l'addiditivité de ces effets n'est plus valable. La loi régissant le comportement temporel de telles déformations d'interfaces liquides et donc vraisemblablement plus complexe, mettant en jeu un certain couplage entre ces effets, même pour de faibles déformations d'interfaces.

Enfin, considérant un ajustement avec l'expression empirique des expériences présentées en figure 7.15 (a), on trouve que le temps moyen de la relaxation lente aux temps longs est de l'ordre de 10s à 20s, ce qui est un ordre de grandeur plus grand que tous les autres temps caractéristiques mesurés. Cette relaxation lente de la dynamique de déformation observée expérimentalement aux temps longs n'est pas prédite numériquement, quand bien même un dernier couplage avec l'interface pourrait être envisagé.

L'échauffement du milieu est très faible à la longueur d'onde utilisée (*cf.* annexe A.2). Celui–ci peut néanmoins être moteur de couplages thermocapillaires près du point critique compte tenu du comportement en température de la tension interfaciale. Cependant, considérant les travaux de M. Robert de Saint Vincent [90], ni le temps caractéristique, ni le sens de déformation de l'interface aux temps longs ne sont compatibles avec un couplage opto–capillaire.

Cette relaxation lente, de l'interface déformée, aux temps longs demeure donc pour l'heure totalement inexpliquée.

7.2.3 Régime non–linéaire de déformation

Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser au–delà du régime linéaire de déformation

Comme nous l'avons remarqué lors de la partie 7.2.1, l'augmentation de la puissance laser nous permet de rencontrer différents régimes de déformations. Au–delà du régime linéaire, apparaît un nouveau régime de déformation pour lequel la « bosse » de déformation induite par les écoulements en volume générés par la force diffusive dans le milieu est significative (*i.e.* la pente locale que fait l'interface déformée par rapport à l'interface au repos n'est plus négligeable devant l'unité). De plus, lorsqu'on étudie l'évolution de la hauteur maximale de la déformation d'interface, nous observons que celle-ci dévie du comportement linéaire constaté aux plus basses puissances (figure 7.2). Ce nouveau régime est donc qualifié de régime non–linéaire de déformation. Une série d'images expérimentales, mettant en vis–à–vis le régime linéaire et non–linéaire de déformations, est présentée figure 7.16. Cette comparaison permet d'apprécier visuellement les différences de morphologies entre les deux régimes.

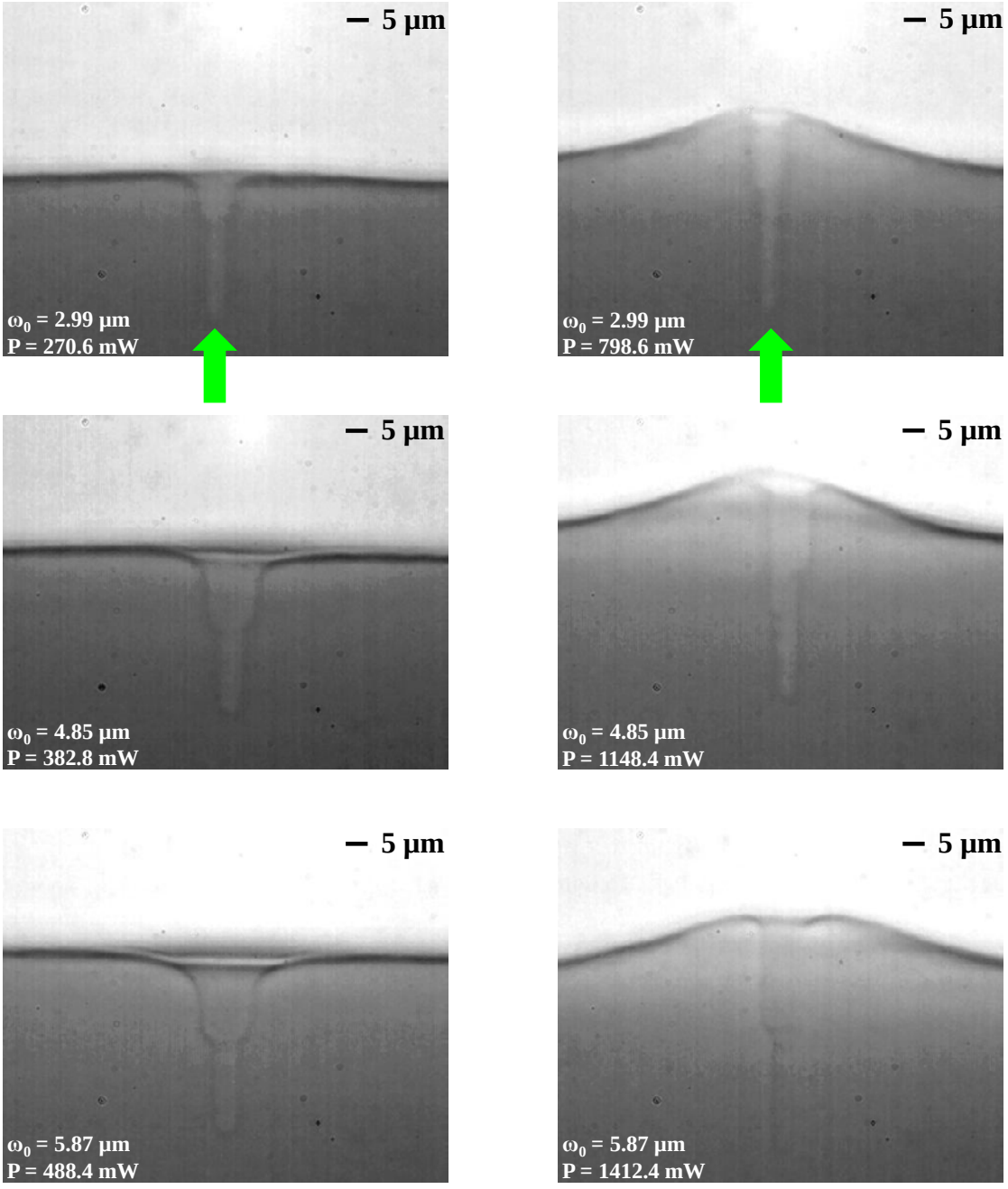
Nous pouvons donc observer directement sur la figure 7.16 l'évolution importante de la hauteur de déformation induite par les effets de la force diffusive lorsque la puissance laser est fortement augmentée. Cette évolution est traduite sur les figures 7.17 (a) et (b) où est reporté le comportement de la hauteur maximale de l'« épaulement » h_{max} en fonction de la puissance laser P, depuis le régime linéaire jusqu'au régime non–linéaire de déformation et pour deux écarts à la température critique, $T - T_C = 1.6$ K et $T - T_C = 1.9$ K, lesquels permettent d'obtenir une tension interfaciale extrêmement basse (de l'ordre de $\sigma \sim 5.10^{-8}$ N/m) et donc d'exacerber les effets de la force diffusive.

Sur les figures 7.17 (a) et (b), plusieurs comportements importants sont à identifier. Tout d'abord, proche du point critique nous pouvons confirmer la déviation du comportement linéaire de la hauteur de déformation en fonction de la puissance, lorsque cette dernière devient grande (typiquement de l'ordre du Watt).

D'autre part, si on se focalise sur un des deux écarts à la température critique représentés ici, il apparaît que pour une puissance laser P fixée, la hauteur de déformation h_{max} décroît lorsque le rayon au col du faisceau ω_0 augmente. Ce comportement est caractéristique de tous les résultats expérimentaux obtenus lors de l'étude des déformations d'interfaces liquides à l'aide d'un système composé de phases micellaires de microémulsion (où les deux phases de l'échantillon diphasique diffusent la lumière incidente). Afin de comprendre ce comportement particulier et systèmatique, nous proposons d'approcher le problème suivant deux axes différents.

Premièrement, si l'on considère l'intensité lumineuse et non la puissance laser reçue par le milieu, cela apparaît évident que lorsque la puissance laser est fixée, l'intensité reçue (c'est–à–dire la force diffusive appliquée) est beaucoup plus importante pour un petit rayon au col du faisceau ω_0 que lorsque celui–ci est grand.

Deuxièmement, si on s'intéresse cette fois-ci à la morphologie de l'interface déformée en fonction du rayon au col du faisceau, on s'aperçoit que la déformation induite par les effets de la force diffusive (écoulements en volume parallèles à l'axe du faisceau laser inci-



(a) (b)

Fig. 7.16 – *Images expérimentales de l'interface liquide d'un système fluide composé de phases micellaires de microémulsion thermalisé à $T - T_C = 1.9$ K déformée par l'action d'un faisceau laser ascendant. Comparaison des morphologies obtenues dans le régime linéaire (a) et dans le régime non–linéaire (b) de déformation pour lequel on observe une large « bosse » de déformation induite par les effets de la force diffusive.*

dent) exhibe un « épaulement » sur toute une couronne centrée autour de la déformation induite par la pression de radiation optique. Nous avons déjà évoqué cette caractéristique lors de l'introduction de cette partie concernant les résultats obtenus dans le cadre de la propagation du faisceau incident de manière ascendente. Cette caractéristique morphologique implique que lorsque la puissance laser est fixée, cet « épaulement » est d'extension

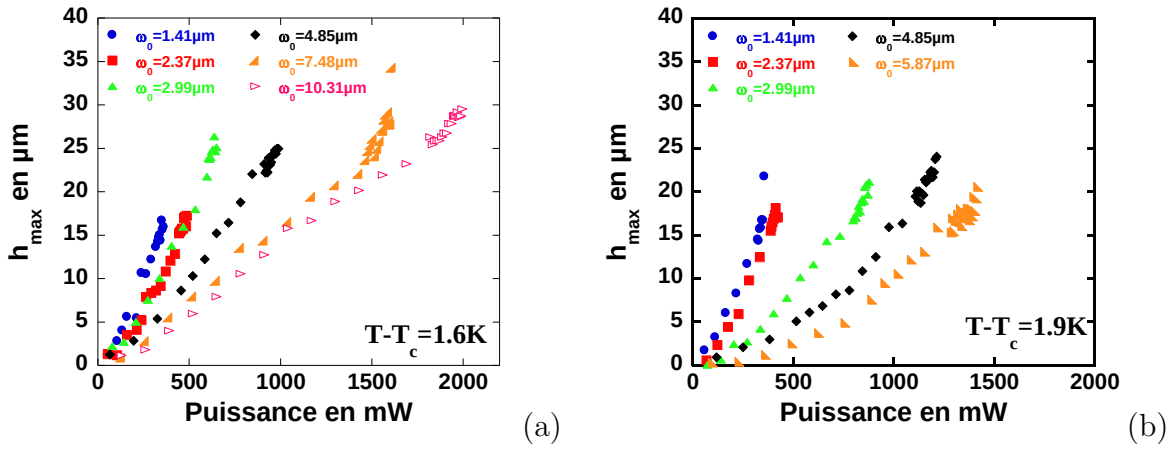


Fig. 7.17 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation, h_{max}, induite par les effets de la force diffusive en fonction de la puissance laser. Le faisceau laser se propage de manière ascendante. (a) $T - T_C = 1.6$ K. (b) $T - T_C = 1.9$ K.*

radiale d'autant plus faible que le rayon au col du faisceau ω_0 est petit (et donc plus proche de l'axe de propagation de l'onde incidente). Nous avons pu noter au paragraphe 7.2.2 que la vitesse axiale de l'écoulement induit par la force diffusive est beaucoup plus grande proche de l'axe de propagation du faisceau laser comme l'atteste le champ scalaire représenté sur la simulation numérique de la figure 7.3. L'« épaulement » exhibé par l'interface permettrait à l'écoulement induit, dont la vitesse axiale est plus importante à cet endroit que sur les bords de l'interface, de déformer plus facilement l'interface. Il en résulterait un accroissement de l'amplitude de la hauteur de déformation lorsque le rayon au col du faisceau diminue.

Afin de prouver la pertinence de cet argument, nous avons réalisé des simulations numériques de profils de déformations expérimentales pour une puissance fixée et deux rayons au col du faisceau laser différents ($T - T_C$ étant fixé). La comparaison des résultats expérimentaux et numériques est donnée figure 7.18.

Sur la comparaison expérience – simulation numérique effectuée figure 7.18, outre le fait que la simulation numérique reproduit de manière quantitive les résultats expérimentaux, il apparaît très nettement que la hauteur de déformation induite par les effets de la force diffusive devient de plus faible amplitude à mesure que le rayon au col du faisceau ω_0 augmente. Cette tendance est confirmée par l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance représentée en insert sur les figure 7.18 (a) et (b), représentant respectivement les résultats expérimentaux et ceux issus de la simulation numérique.

Enfin, il existe également un comportement en fonction de la température, moins visible ici (car la fenêtre de variation demeure faible entre les limitations expérimentales inférieures et la valeur maximale pour laquelle on peut expérimentalement observer des déformations d'origine diffusive), mais qui montre également que lorsque la puissance laser est fixée, la hauteur de déformation diminue lorsque l'écart à la température critique augmente. Ce dernier comportement est évident, compte tenu de la relation liant la tension interfaciale à l'écart à la température critique de l'échantillon (7.1). En effet, comme nous l'avons déjà évoqué au début de ce chapitre ainsi qu'à la section 3.3, l'intérêt d'un tel système fluide est le contrôle de sa tension interfaciale par l'intermédiaire d'une régula-

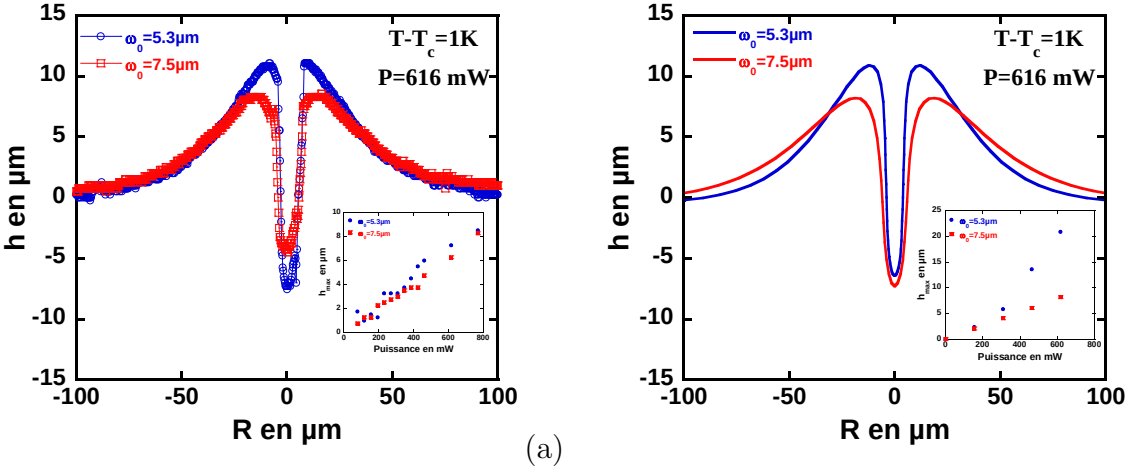


Fig. 7.18 – *Évolution du profil de déformation pour un écart à la température critique de $T - T_C = 1$ K et une puissance laser de $P = 616$ mW pour deux rayons au col du faisceau ω_0 différents. En insert est représenté l'évolution de la hauteur maximale h_{max} de la déformation en fonction de la puissance. (a) Résultats expérimentaux. (b) Simulation numérique.*

tion thermique. Ainsi, si on choisit d'augmenter l'écart séparant la température à laquelle l'échantillon est thermalisé par rapport à sa température critique, alors nous augmenterons la tension interfaciale de l'échantillon diphasique. De ce fait, l'interface sera rendue beaucoup moins déformable ; ainsi pour une puissance fixée, l'amplitude des déformations observées à $T - T_C = 1.9$ K (comme l'exemple présenté figure 7.17) sera moins importante que celle obtenue à $T - T_C = 1.6$ K.

Après avoir détaillé les différents comportements de la déformation induite par les effets de la force diffusive, nous pouvons remarquer que l'évolution de cette hauteur de déformation en fonction de la puissance atteint un seuil à forte puissance laser. L'étude de ce seuil fait l'objet de la partie suivante.

Étude du seuil en puissance atteint par la hauteur de déformation induite par les effets de la force diffusive

Lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide devient très importante, la hauteur de déformation atteint une puissance caractéristique (différente pour chaque ω_0 et chaque $T - T_C$), au–delà de laquelle l'interface liquide se déstabilise. L'étude détaillée de ce dernier régime de déformation fera l'objet d'un prochain paragraphe. Dans un premier temps, intéressons-nous à ce stade particulier qu'atteint la déformation de l'interface liquide et que l'on nomme puissance seuil d'instabilité.

Ainsi, lorsque nous continuons à augmenter la puissance laser au niveau de l'interface de l'échantillon utilisé, un stade est atteint où la déformation est caractérisée par la formation d'une « pointe liquide » sur la couronne de l'« épaulement » induit par les effets de la force diffusive (donc dans le sens de l'écoulement induit). Ce type de déformation, dont une collection non exhaustive est donnée figure 7.19, est stationnaire.

Un grand nombre de travaux concernant le comportement d'une interface liquide sous

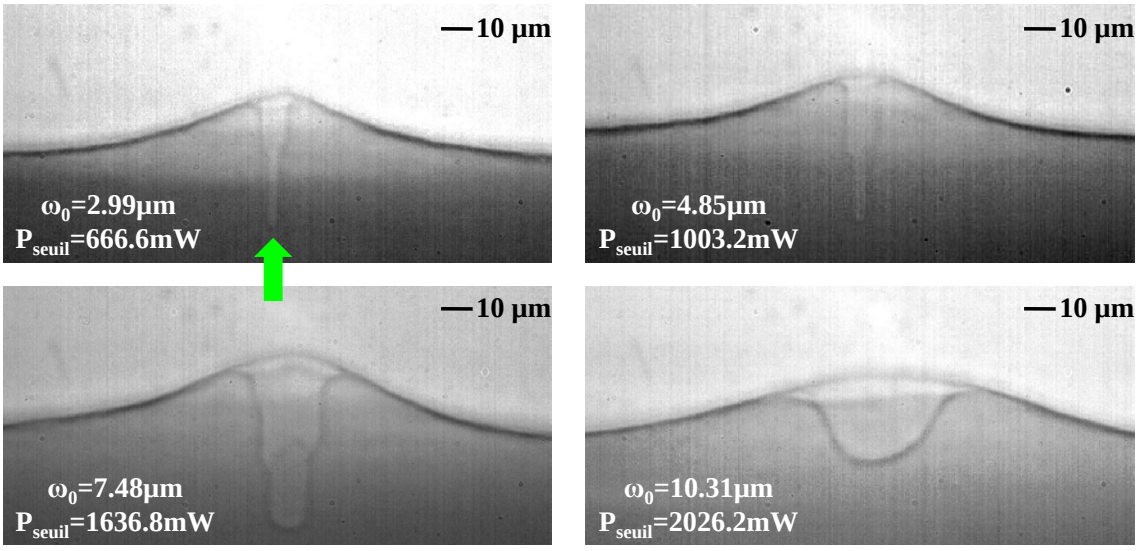


Fig. 7.19 – *Morphologie caractéristique adoptée par l'interface liquide au seuil d'instabilité. Le système quasi-critique est régulé à* $T - T_C = 1.9$ K. *Observation de la formation d'une « pointe liquide » au sommet de la déformation stationnaire induite par les effets de la force diffusive (faisceau incident se propageant de manière ascendante).*

champ (qu'elle soit confinée ou non) sont présents dans la littérature, à commencer par les travaux pionniers de J. Zeleny au début du XXème siècle [18]. Lors de cette expérience historique, une goutte liquide (un alcool), formée au bout d'un capillaire est soumise à un fort champ électrique. Les contraintes exercées sur l'interface de la goutte induites par le champ électrique transforment la morphologie de la goutte en une forme conique caractéristique. Sous certaines conditions de champ électrique et de pression hydrostatique, J. Zeleny avait observé cette forme conique particulière qu'adoptait la goutte liquide et la formation, au bout de ce cône, d'un jet liquide très fin qui se brisait en petites gouttes au bout d'une certaine longueur (phénomène connu sous le nom d'ionisation par électronébuliseur ou *electrospraying ionization* en anglais). Il fallu attendre 1964 pour que G. Taylor examine ce problème de manière théorique et convienne que la forme conique résulte principalement d'un équilibre entre les forces électrostatiques et la tension de surface [19, 20]. Le « cône de Taylor » est observé pour des liquides conducteurs ou non. Nous pouvons notamment citer les travaux de J. D. Sherwood [21], de F. K. Wohlhuter *et al.* [22] ou encore ceux de A. Ramos et A. Castellanos [23], qui ont étendu l'analyse réalisée par G. Taylor au cas de liquides diélectriques. L'angle du cône de Taylor a été calculé théoriquement, vérifié expérimentalement à maintes reprises et est égal à $\theta_{Taylor} = 49.29^\circ$. On peut également citer les travaux théoriques de A. M. Gañán–Calvo [24] décrivant une approche analytique de ce problème complexe ou encore ceux de H. Li *et al.* [25] et H. Stone *et al.* [26] concernant les morphologies coniques adoptées par une goutte sous champ électrique et magnétique. Pour plus de détails sur ce phénomène caractéristique, le lecteur est invité à consulter entre autres les articles de revue de D. A. Saville [27] et de J. Fernández de la Mora [28].

Ce phénomène de « cône liquide » (cône de Taylor) est donc caractéristique de la déformation d'interfaces liquides (séparant deux liquides ou un liquide et un gaz) sous l'action d'un champ extérieur. Il est donc légitme de s'interroger sur l'existence ou non d'une telle morphologie pour notre système lorsque nous atteignons la puissance seuil

d'instabilité.

À la vue des images expérimentales présentées figure 7.19, cette existence ne semble pas être pertinente. Néanmoins, d'autres séries d'expériences ont pu exhiber de temps à autre une forme plus ou moins conique. Afin de résoudre ce problème, nous avons analysé (sur les expériences présentant visuellement une forme d'aspect conique) l'évolution de l'angle que réalise l'interface liquide par rapport à l'axe vertical afin de conclure sur l'existence ou non de ce cône lors de nos expériences au seuil d'instabilité. Quelques exemples d'analyses sont regroupés sur la figure 7.20.

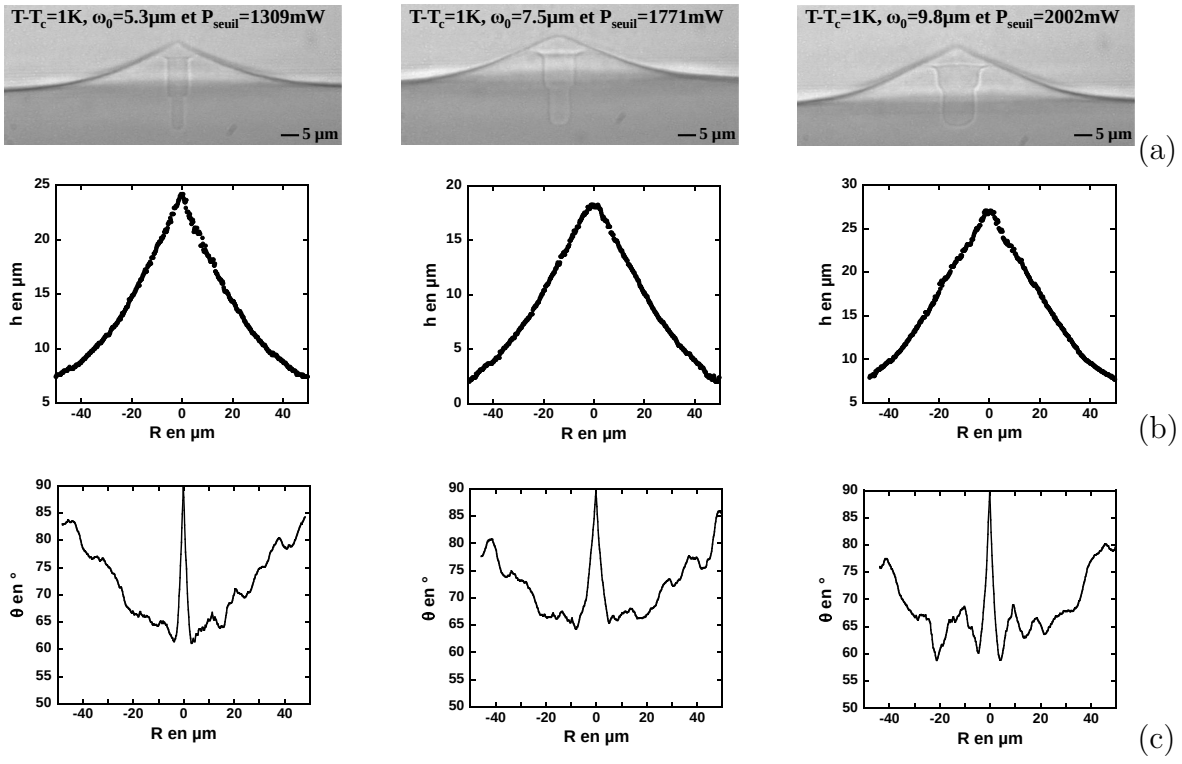


Fig. 7.20 – *Étude de l'angle que réalise l'interface liquide par rapport à l'axe vertical afin de déterminer l'existence ou non d'un cône de type cône de Taylor au sommet de la déformation d'interface induite par les effets de la force diffusive. Le système critique est régulé en température à* $T - T_C = 1.7$ K *et le faisceau se propage de façon ascendante. (a) Images expérimentales obtenues au seuil d'instabilité pour les rayons au col du faisceau* $\omega_0 = 5.3$ µm, $\omega_0 = 7.5$ µm *et* $\omega_0 = 9.8$ µm *(les puissances seuil correspondantes sont reportées sur les images). (b) Détection du profil de déformation induite par les effets de la force diffusive. (c) Détermination de l'angle* θ *(en degré) entre l'interface déformée et l'axe vertical en fonction de l'extension radiale de la déformation.*

La figure 7.20 nous informe sur le comportement au seuil d'instabilité de la morphologie de la déformation induite par les effets de la force diffusive. Le choix des images de cette figure est tel qu'une « pointe liquide » significative est observable au sommet de la déformation. De ce fait, s'il existe un cône de Taylor au sommet de cette déformation, nous devrions être en mesure de le mettre en exergue grâce à ces images. Or, d'après l'analyse de l'évolution de l'angle $\theta(R)$ que réalise l'interface déformée par rapport à l'axe vertical (figure 7.20 (c)), il n'est pas du tout évident d'en déduire un comportement conique clair. En effet, même si l'angle $\theta(R)$ fluctue de manière assez importante à l'approche du

sommet de la déformation ($R = 0$) nous n'observons aucun plateau. Si cône il y a, nous devrions observer un angle constant à l'approche de ce sommet, ce qui n'est pas le cas.

Nous pouvons donc en conclure que lors de nos expériences de déformations d'interfaces liquides induites par les effets de la force diffusive, nous n'avons jamais observé d'interfaces liquides déformées adoptant la morphologie caractéristique du cône de Taylor au seuil d'instabilité.

Suite à l'étude réalisée sur les morphologies particulières adoptées par l'interface liquide déformée au seuil d'instabilité, intéressons–nous à présent au comportement de ce seuil en fonction des paramètres de l'onde excitatrice et plus particulièrement à l'évolution de la puissance laser atteinte au seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau ω_0. Nous avons brièvement évoqué au chapitre 5 que les simulations numériques dans le cadre de cette configuration expérimentale (mais en absence de pression de radiation optique) prédisent que la puissance laser au seuil d'instabilité se comporte de manière affine (n'interceptant pas l'origine) lorsque ω_0 croît. Nous avons réalisé cette étude sur différents lots d'expériences (pour différents écarts à la température critique) impliquant différents lots d'échantillons critiques (rappelons que la confection de ces échantillons est très délicate et qu'il peut y avoir des petites variations de comportement d'un échantillon à l'autre ou d'une journée d'expérience à une autre (voir annexe A.2)).

La détermination expérimentale de la puissance seuil d'instabilité, notée P_{seuil}, correspond à la dernière puissance laser pour laquelle nous obtenons une déformation d'interface liquide stationnaire. Si nous appliquons une puissance supérieure telle que $P = P_{seuil} + \varepsilon$ (où ε représente la précision sur la puissance laser à laquelle nous avons accès avec notre dispositif expérimental, à savoir $\epsilon = 6.6$ mW), l'interface se déstabilise et nous observons l'émergence d'un jet liquide, comme nous le détaillerons par la suite. Cette investigation du seuil d'instabilité s'apparente donc à une méthode de dichotomie permettant d'encadrer, au maximum de notre précision, la puissance seuil d'instabilité.

La figure 7.21 regroupe une partie des résultats obtenus pour ce système fluide composé de phases micellaires de microémulsion.

Les résultats présentés figure 7.21 nous permettent de conclure que la puissance seuil d'instabilité P_{seuil}, induite par les effets de la force diffusive en présence de pression de radiation, se comporte linéairement lorsque le rayon au col du faisceau laser ω_0 augmente. Les droites représentées sur la figure 7.21 correspondent en effet aux régressions linéaires effectuées sur l'ensemble des points expérimentaux pour chaque écart à la température critique $T - T_C$. En insert de la figure 7.21, nous pouvons apprécier la variation de la pente de chaque régression linéaire de $P_{seuil}(\omega_0)$, en fonction de l'écart à la température critique. Ceci nous montre que $\frac{\mathrm{d}P_{seuil}}{\mathrm{d}\omega_0}$ se comporte comme $(T - T_C)^{1.33}$.

Les résultats expérimentaux nous informent, que lorsque les effets de la force diffusive ainsi que ceux inhérents à la pression de radiation optique sont pris en compte, la puissance seuil d'instabilité induite par les effets de la force diffusive se comporte linéairement avec ω_0. En effet, dans les systèmes fluides que nous avons utilisé, un contraste d'indice de réfraction est toujours présent entre les deux phases de l'échantillon, les effets de la pression de radiation optique ne pouvant être annulés.

Ainsi, les effets de la pression de radiation optique jouent un rôle non négligeable

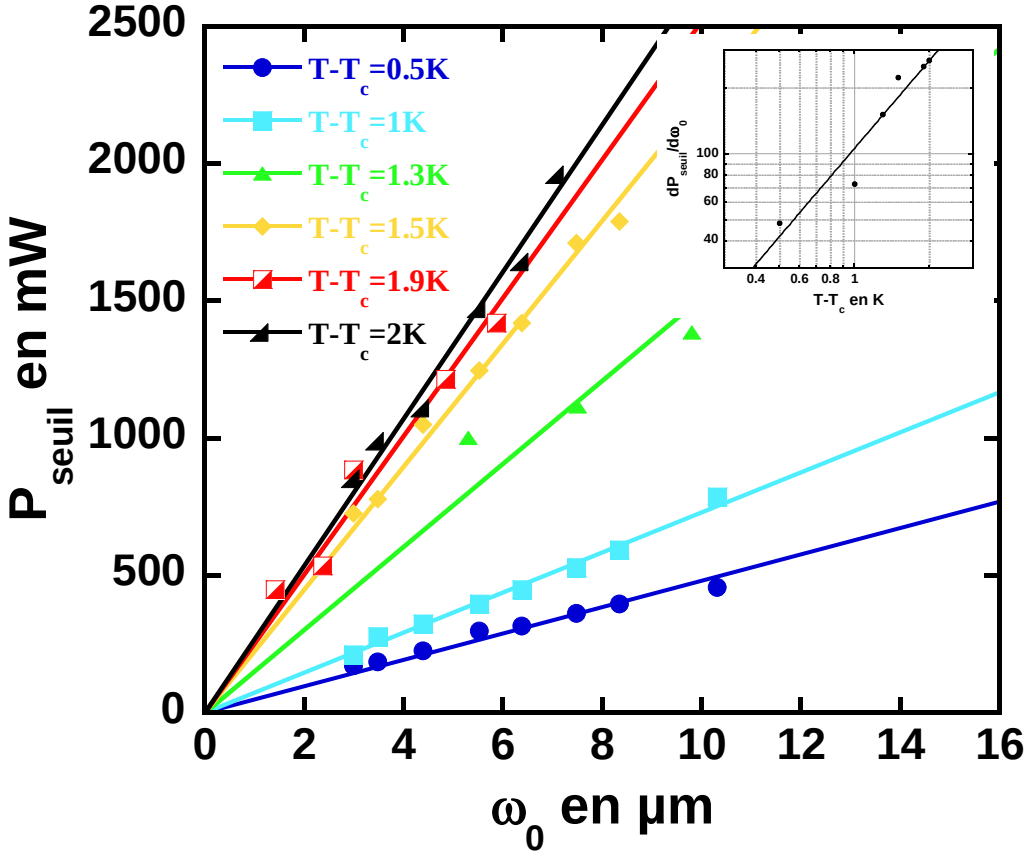


Fig. 7.21 – *Évolution de la puissance seuil d'instabilité P_{seuil}, induite par les effets de la force diffusive, en fonction du rayon au col du faisceau laser ω_0 pour différents écarts à la température critique de l'échantillon (de $T - T_C = 0.5$ K à $T - T_C = 2$ K). Les droites représentées correspondent aux régressions linéaires effectuées sur chaque ensemble de points expérimentaux. En insert est représenté l'évolution de $\frac{\mathrm{d}P_{seuil}}{\mathrm{d}\omega_0}$ en fonction de $T - T_C$. L'ajustement des points expérimentaux par une loi de puissance nous donne un exposant de 1.33.*

sur le seuil d'instabilité induite par les effets de la force diffusive, le comportement de la puissance seuil en fonction de ω_0 étant modifié en présence de pression de radiation. Nous avons reporté sur la figure 7.22 (a) l'évolution de la position radiale de l'« épaulement » en fonction de la puissance laser pour $T - T_C = 1.5$ K et différents ω_0. La figure 7.22 (b) représente le comportement de la position radiale moyenne en fonction du rayon au col du faisceau ω_0.

D'après la figure 7.22 (a) nous remarquons que lorsque ω_0 est fixé, la position radiale de l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets de la force diffusive est indépendante de la puissance laser appliquée. Compte tenu de cette conclusion, nous en avons déduit pour chaque col de faisceau la position radiale moyenne de l'« épaulement ». Ceci est représenté figure 7.22 (b). Nous pouvons observer que lorsque le rayon au col du faisceau augmente, cette position radiale augmente également.

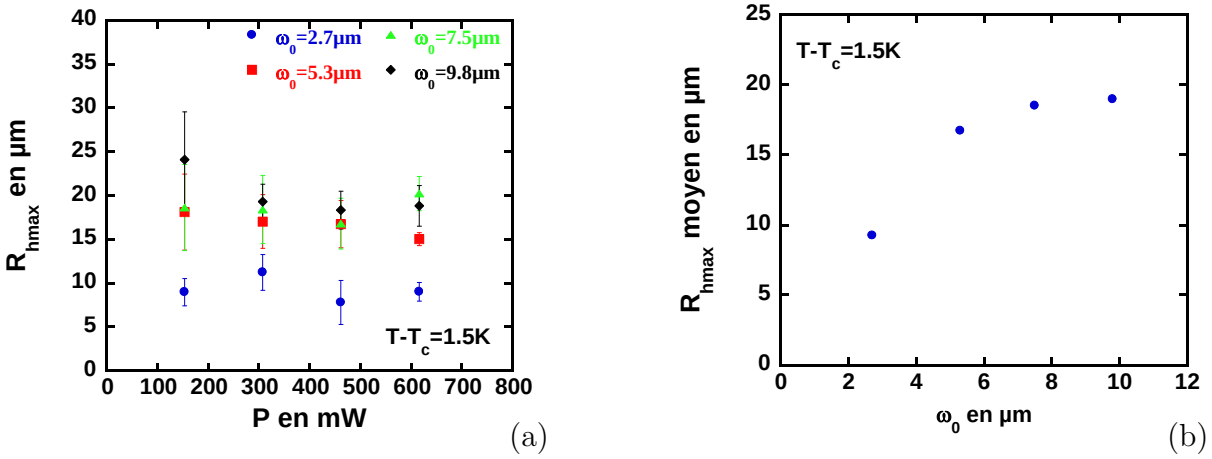


Fig. 7.22 – *(a) Évolution de la position radiale de l'« épaulement » de la déformation induite par les effets diffusifs en fonction de la puissance laser pour $T - T_C = 1.5$ K et différents ω_0 dont les valeurs sont reportées sur le graphique. (b) Évolution de la position radiale moyenne de l'« épaulement » en fonction de ω_0.*

Or comme nous l'avons introduit précédemment, la vitesse axiale de l'écoulement induit par la diffusion de la lumière dans le milieu est maximale proche de l'axe de propagation de l'onde incidente et diminue à mesure que l'on s'écarte radialement. Il apparaît donc évident que les contraintes visqueuses associées à l'écoulement généré seront beaucoup plus importantes à petit ω_0 (car plus proche de l'axe du faisceau laser). Ainsi, la puissance laser nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide au niveau de l'« épaulement » sera d'autant plus faible que ω_0 sera petit.

En revanche, si la prédiction numérique en absence de pression de radiation, présentée au chapitre 5 est vraie, nous devrions nous attendre à une saturation de la puissance seuil d'instabilité lorsque $\omega_0 \to 0$. Cette caractéristique n'est pas observée expérimentalement. Il serait par exemple intéressant d'étudier des systèmes fluides diphasiques diffusants la lumière mais présentant des indices de réfraction égaux afin de vérifier, ou non, la pertinence de cette prédiction numérique.

Nous avons donc pu caractériser le seuil d'instabilité, induite par les effets relatifs à la force diffusive. Dans la partie suivante nous allons reprendre l'étude effectuée sur l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser mais en prenant en compte le comportement relatif au seuil d'instabilité.

Évolution de la hauteur de déformation par rapport au seuil d'instabilité

La caractérisation du seuil d'instabilité que nous venons d'illustrer nous permet de mettre en exergue un comportement linéaire de la puissance seuil d'instabilité P_{seuil} en fonction du rayon au col du faisceau laser ω_0. À l'aide de cette information, nous avons analysé à nouveau l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser en prenant en compte cette caractéristique au seuil d'instabilité. Nous avons donc tracé l'évolution de la hauteur de déformation, normalisée à la hauteur atteinte par la déformation d'interface au seuil d'instabilité (notée h_{seuil}), en fonction de la puissance laser normalisée à la puissance seuil d'instabilité. La figure 7.23 regroupe les résultats

obtenus pour trois écarts à la température critique différents (les résultats sont représentés en échelle logarithmique).

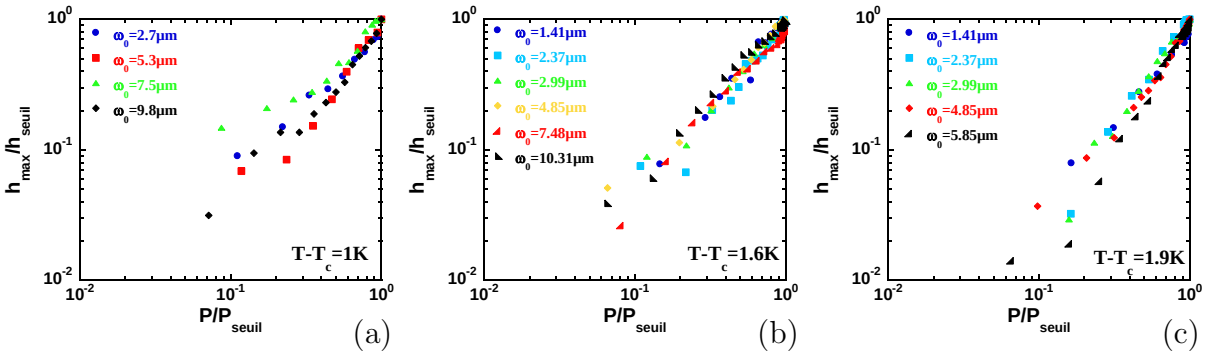


Fig. 7.23 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} (induite par les effets de la force diffusive) normalisée à la hauteur de déformation obtenue au seuil d'instabilité h_{seuil} en fonction de la puissance P normalisée à la puissance seuil P_{seuil}. (a) $T - T_C = 1$ K. (b) $T - T_C = 1.6$ K. (c) $T - T_C = 1.9$ K. (Les différents rayons au col du faisceau utilisés sont reportés sur chaque courbe.)*

Tout d'abord, nous pouvons remarquer que lorsque nous appliquons cet adimensionnement par rapport au seuil d'instabilité, pour chaque écart à la température critique $T - T_C$, tous les résultats expérimentaux tendent à se superposer suivant un seul comportement. Ensuite, si on reporte les résultats des trois écarts à la température critique sur un même graphique (figure 7.24), un comportement universel semble émerger.

En effet, lorsque tous les résultats expérimentaux sont regroupés sur un même graphique, il apparaît très nettement l'émergence d'un comportement universel de la hauteur de déformation normalisée à la hauteur atteinte au seuil d'instabilité en fonction de la puissance laser normalisée à la puissance seuil. Nous avons réalisé un ajustement de tous les points expérimentaux à l'aide d'une loi de puissance (représenté en trait plein sur la figure 7.24). Le comportement universel observé semble être de la forme :

$$\left(\frac{h_{max}}{h_{seuil}}\right) \propto \left(\frac{P}{P_{seuil}}\right)^{1.5}. \tag{7.5}$$

Nous avons également reporté sur la figure 7.24 le comportement prédit en absence de pression de radiation (figure 5.7, chapitre 5) qui montrait déjà un comportement unique en fonction du rayon au col du faisceau. Ce comportement prédit numériquement donne des valeurs de h_{max}/h_{seuil} plus grandes ques les mesures pour les petites valeurs de P/P_{seuil} et les deux variations se rejoignent lorsqu'on se rapproche du seuil. Cet écart peut se comprendre compte tenu de la présence de la pression de radiation qui a tendance à freiner le développement des effets diffusifs.

Suite à l'étude du régime non–linéaire de déformation et en particulier du seuil d'instabilité, nous allons analyser dans la partie suivante le comportement adopté par la déformation d'interface liquide lorsque nous appliquons, au niveau de l'interface, une puissance laser supérieure à ce seuil d'instabilité.

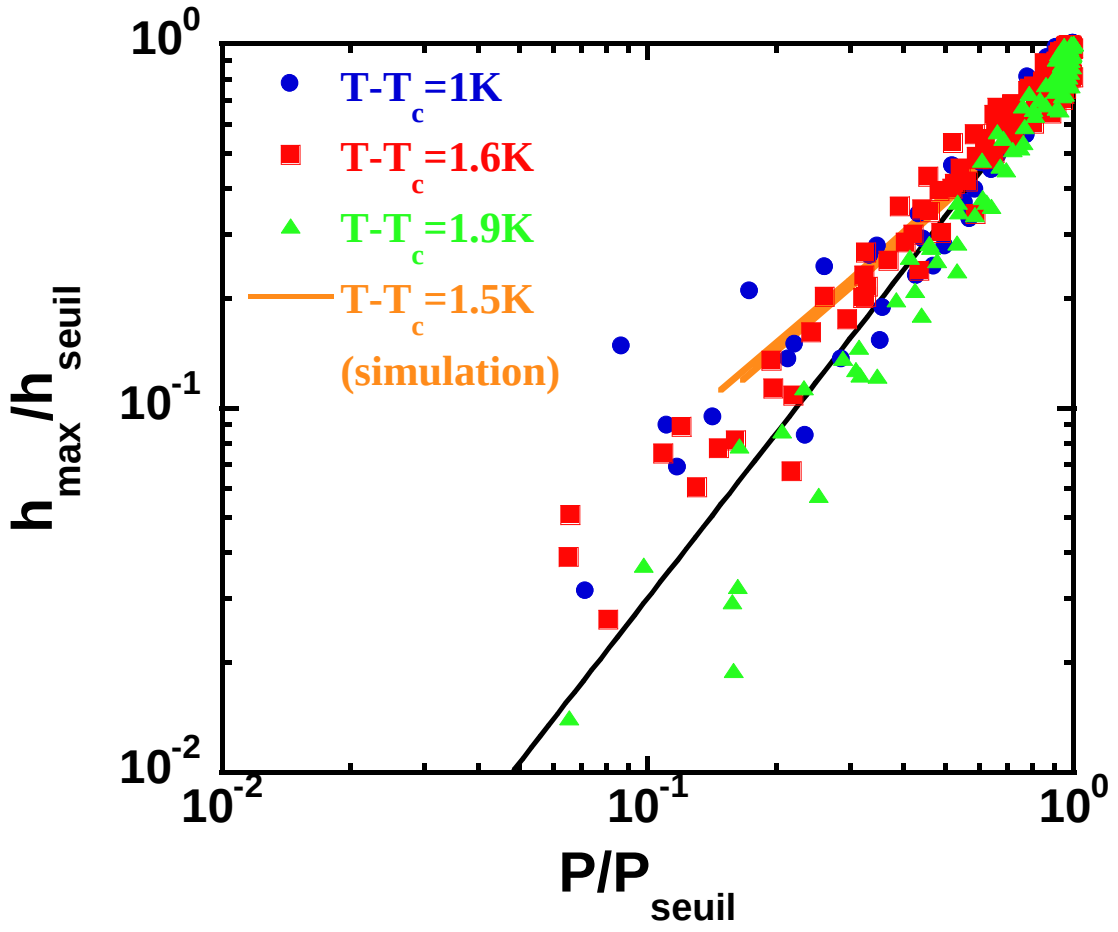


Fig. 7.24 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} (induite par les effets de la force diffusive) normalisée à la hauteur de déformation obtenue au seuil d'instabilité h_{seuil} en fonction de la puissance P normalisée à la puissance seuil P_{seuil}. Les résultats expérimentaux des trois $T - T_C$ présentés figure 7.23 sont regroupés sur le même graphe. Le trait plein correspond à un ajustement de tous les résultats expérimentaux suivant une loi de puissance telle que : $(h_{max}/h_{seuil}) \propto (P/P_{seuil})^{1.5}$. La courbe orange représente le comportement prédit numériquement en absence de pression de radiation pour $T - T_C = 1.5$ K.*

7.2.4 Au–delà du seuil d'instabilité : apparition d'un nouveau mécanisme d'instabilité de jet liquide

Dans la partie précédente, nous avons détaillé le régime non–linéaire de déformation jusqu'à un point caractéristique apparenté à un seuil d'instabilité. L'étude de ce seuil d'instabilité nous a permis d'identifier quelques caractéristiques importantes. À présent, intéressons–nous au comportement de la déformation d'interface liquide lorsqu'une puissance laser supérieure à la puissance seuil est appliquée. Comme nous l'avons introduit au début de cette section, au–delà de la puissance seuil d'instabilité, l'interface liquide se déstabilise. En effet, la déformation d'interface n'est plus stationnaire, la « pointe liquide » formée au sommet de la déformation induite par les effets de la force diffusive, caractéristique du seuil d'instabilité, s'allonge dans le sens de propagation de l'onde incidente lorsque $P > P_{seuil}$. Cette élongation donne naissance à un jet liquide de diamètre

micrométrique, dans le sens de propagation de l'onde excitatrice. Le micro–jet liquide peut statistiquement émerger sur toute la « couronne » entourant la déformation induite par les effets de la pression de radiation ; il est donc parallèle à l'axe de propagation de l'onde incidente mais décalé radialement.

Nous avons donc observé un nouveau mécanisme d'instabilité conduisant à la formation d'un jet liquide, dont les effets de la force diffusive, à savoir les écoulements en volume générés par cette force dans le milieu turbide, sont seuls responsables de son déclenchement. Ce mécanisme d'instabilité, prédit lors des simulations numériques ne prenant en compte que la force diffusive (en absence de pression de radiation) et discuté au chapitre 5, est donc vérifié expérimentalement à l'aide d'un système fluide composé de phases micellaires de microémulsion lorsque les deux phases liquides de l'échantillon diphasique diffusent la lumière incidente. Ce mécanisme d'instabilité avait déjà été observé au chapitre 6, où seule l'une des phases liquides en coexistence était diffusante. La recherche de cette instabilité avec ce dernier système s'était avérée beaucoup plus délicate que dans le cas présent, car les tensions interfaciales accessibles sont plus élevées d'un facteur 10 que celles obtenues près d'un point critique des phases micellaires de microémulsion utilisées ici.

La figure 7.25 présente l'évolution temporelle de l'interface liquide lors de sa déstabilisation et de l'émergence d'un jet liquide induit par les effets de la force diffusive ($P > P_{seuil}$).

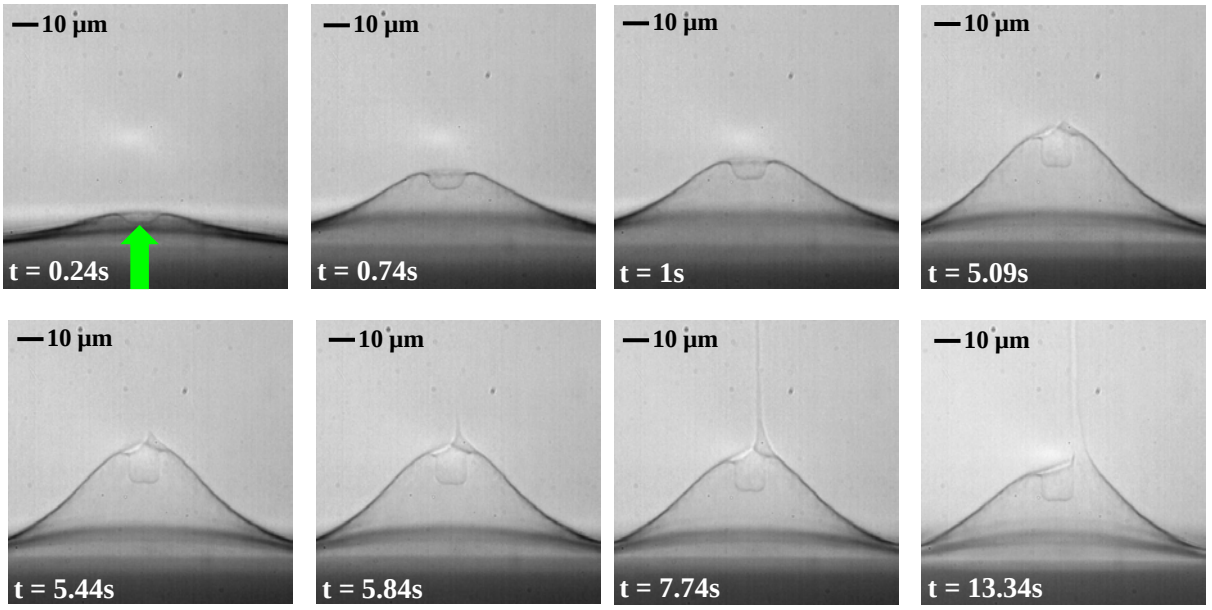


Fig. 7.25 – *Scénario de l'évolution temporelle de l'interface liquide d'un système critique, composé de phases micellaires de microémulsion, lors de sa déstabilisation et de la formation d'un jet liquide induit par les effets de la force diffusive (le faisceau laser se propage de manière ascendante). Le système fluide est régulé à* $T - T_C = 0.5$ K, *la puissance laser appliquée au niveau de l'interface est* $P = 1540.0$ mW *(la puissance seuil étant égale à* $P_{seuil} = 400.4$ mW*) et le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.5$ µm. *L'instant t considéré lors de l'évolution temporelle de l'interface est reporté sur chaque image expérimentale (cet échantillon d'images expérimentales est issu d'une acquisition dynamique de 1500 images à une cadence de 100 images par seconde). L'origine des temps est fixée lors du début de l'excitation laser.*

Afin de caractériser ce nouveau mécanisme d'instabilité, induit uniquement par les effets de la force diffusive, nous proposons d'étudier tout d'abord le comportement de cette instabilité de jet liquide à l'aide des paramètres de l'onde excitatrice, tels que la

puissance laser P et le rayon au col du faisceau laser ω_0. L'écart à la température critique ne nous permet ici que d'obtenir une tension interfaciale suffisamment basse de manière à pouvoir déclencher cette instabilité de jet liquide pour une puissance laser raisonnable et sur une gamme assez large de ω_0.

Comportement du rayon du jet liquide induit par les effets de la force diffusive en fonction des paramètres de l'onde excitatrice

Nous avons tout d'abord étudié l'évolution du rayon du jet liquide émis en fonction de la puissance laser appliquée P, dont un exemple est présenté sur la figure 7.26 (a).

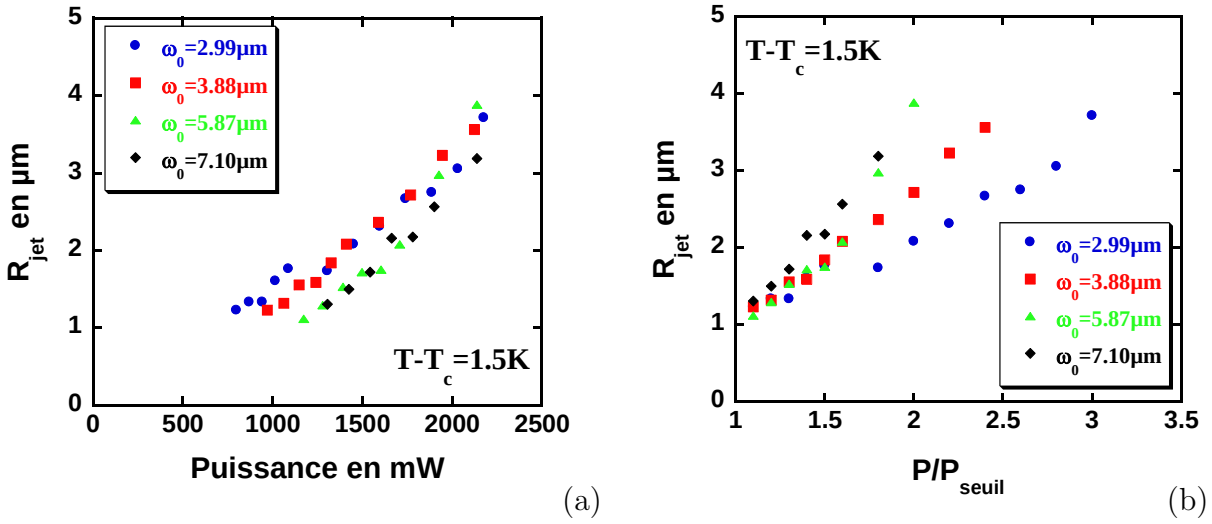


Fig. 7.26 – *(a) Évolution du rayon du jet liquide R_{jet}, induit par les effets de la force diffusive dans le sens de propagation de l'onde incidente, en fonction de la puissance laser P. (b) Évolution du rayon du jet liquide R_{jet} en fonction du rapport P/P_{seuil}. Le système est régulé en température à $T - T_C = 1.5$ K et les rayons au cols du faisceau utilisés sont reportés sur la figure.*

Lorsqu'on considère la représentation exposée figure 7.26 (a), il semble très difficile d'en dégager le moindre comportement particulier concernant l'évolution du rayon du jet en fonction de la puissance. Au mieux, nous pouvons observer que le rayon du jet croît avec la puissance laser P à $T - T_C$ et ω_0 constants.

Comparer les différents rayons, correspondant aux différents rayons au col du faisceau laser ω_0, entre eux à puissance fixée n'a pas de sens physique dans cette configuration. En effet, nous avons vu lors de l'étude du seuil d'instabilité que la puissance seuil d'instabilité se comporte linéairement lorsque ω_0 augmente. Ainsi, on pourrait imaginer que lorsqu'on se place à une puissance fixée et que l'on compare les résultats à petits ω_0 et à grands ω_0, un jet peut être émis dans le premier cas alors que pour ω_0 grand, l'interface ne serait pas encore déstabilisée !

En prenant en compte cet argument, il convient donc de comparer les résultats obtenus en se référant au seuil d'instabilité. C'est–à–dire que pour comparer des situations physiquement semblables, il faut considérer les résultats obtenus en fonction du rapport P/P_{seuil} (de cette façon, nous pouvons comparer les résultats de différents cols de faisceau pour une « distance » séparant la puissance laser considérée de la puissance seuil propre à chaque col de faisceau). La figure 7.26 (b) correspond donc à l'évolution du rayon du

jet liquide représentée en fonction de ce rapport P/P_{seuil}. Il apparaît que le rayon du jet liquide croît en fonction du rapport P/P_{seuil}. Dans cette représentation, nous pouvons remarquer que le « rayon au seuil d'instabilité » que l'on notera par la suite R_{seuil} semble constant en fonction de ω_0. R_{seuil} correspond à la valeur du rayon du jet lorsqu'on extrapole les comportements obtenus pour chaque ω_0 par un ajustement linéaire à la valeur pour $P/P_{seuil} = 1$.

Une fois la valeur de R_{seuil} établie pour chaque ω_0 étudié, nous pouvons essayer de représenter les résultats obtenus en fonction de ce seuil. Parallèlement, d'après les résultats présentés figure 7.26 (b), le rayon de jet semble évoluer (ou plus précisement augmenter) en fonction du rayon au col du faisceau utilisé. Nous avons donc représenté, sur la figure 7.27, $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ en fonction de $(P/P_{seuil}) - 1$ (le fait de retrancher 1 à P/P_{seuil} permet de visualiser tous les comportements à partir du seuil d'instabilité).

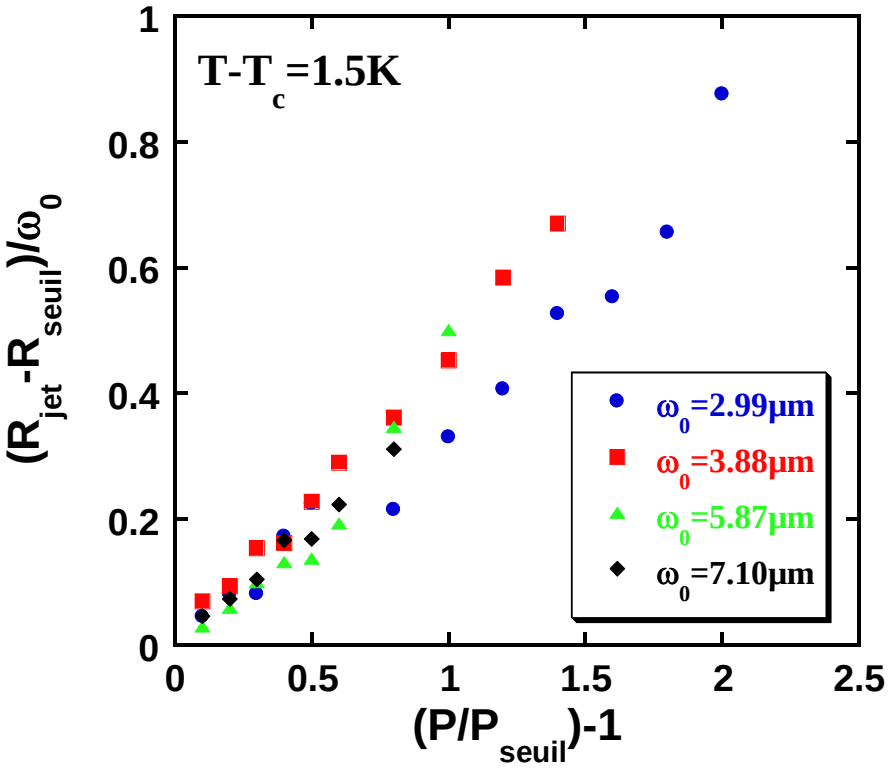


Fig. 7.27 – *Évolution de $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ en fonction de $(P/P_{seuil}) - 1$ pour les différents rayons au col du faisceau utilisés et $T - T_C = 1.5$ K. Émergence d'un comportement unique.*

D'après la représentation des résultats donnée par la figure 7.27, nous observons l'émergence d'un comportement unique quelque soit le rayon au col du faisceau utilisé.

Nous avons effectué ce même raisonnement pour un autre ensemble de résultats expérimentaux obtenu à une température un peu plus élevée, $T - T_C = 1.9$ K. La figure 7.28 (a) représente l'évolution du rayon du jet en fonction de la puissance laser et la figure 7.28 (b) expose le comportement d'échelle pour cette expérience, à savoir l'évolution de $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ en fonction de $(P/P_{seuil}) - 1$.

D'après la figure 7.28 (a), nous pouvons tout d'abord constater que le « rayon au seuil d'instabilité » est plus important, typiquement de l'ordre de 2 µm alors que pour un

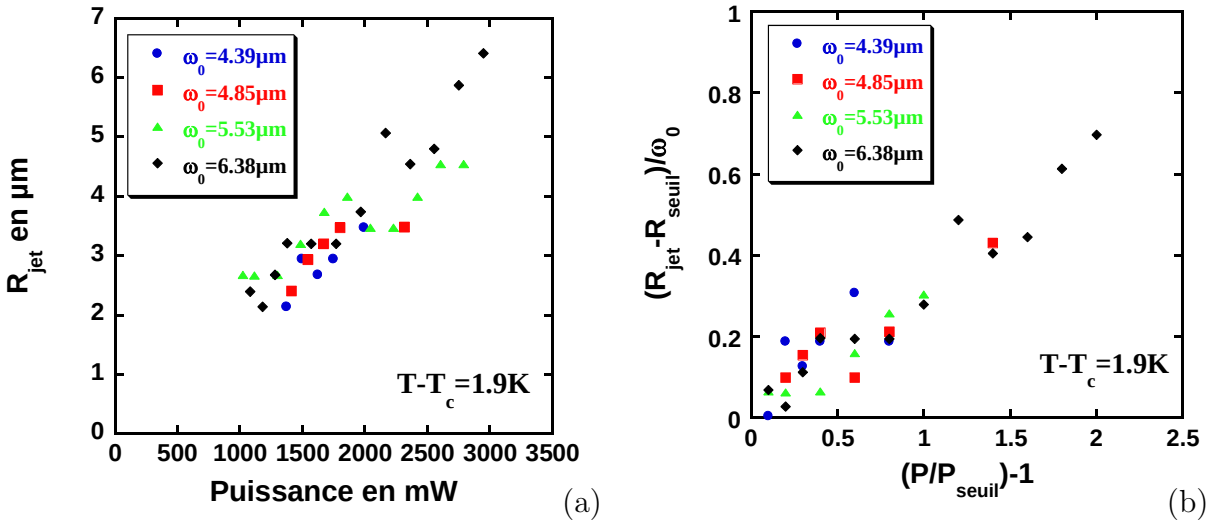


Fig. 7.28 – *(a) Évolution du rayon du jet liquide R_{jet}, induit par les effets de la force diffusive dans le sens de propagation de l'onde incidente, en fonction de la puissance laser P. (b) $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ en fonction de $(P/P_{seuil}) - 1$ pour les différents rayons au col du faisceau utilisés. Le système est régulé en température à $T - T_C = 1.9$ K et les rayons au cols du faisceau utilisés sont reportés sur la figure.*

écart à la température critique de $T - T_C = 1.5$ K, présenté plus haut, $R_{seuil} \sim 1$ µm. Il y a donc un dépendance du rayon du jet en fonction de l'écart à la température critique. Ceci signifie que le rayon du jet dépend de la tension interfaciale. Ce qui paraît logique car, plus la tension interfaciale sera importante (*i.e.* plus l'écart à la température critique sera important) plus l'interface sera difficile à déformer et donc le jet sera d'autant plus large.

La représentation utilisée figure 7.28 (b) permet à nouveau, pour $T - T_C = 1.9$ K, de mettre en exergue l'existence d'un comportement unique. Comme, R_{seuil} augmente avec $T - T_C$, la représentation en $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ prend en compte cette dépendance en température et il apparaît que $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ ne dépend plus que de P/P_{seuil}. La figure 7.29, regroupant les résultats pour $T - T_C = 1.5$ K et $T - T_C = 1.9$ K, semble démontrer ce point.

En effet, lorsque nous regroupons les résultats de l'évolution de $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ en fonction de $(P/P_{seuil}) - 1$ pour les deux écarts à la température critique, un même comportement est mis en évidence tel que :

$$\left(\frac{R_{jet} - R_{seuil}}{\omega_0}\right) \propto \left(\frac{P}{P_{seuil}} - 1\right)^{0.98}. \tag{7.6}$$

Études réalisées sur le débit des micro–jets induits par les effets de la force diffusive

Afin de compléter la caractérisation de ce nouveau mécanisme d'instabilité de jet liquide, nous avons dédié plusieurs travaux expérimentaux à l'étude du débit de ces micro–jets.

Ces jets liquides étant le résultat d'une instabilité provoquée par les écoulements en volume générés par la présence d'une force diffusive dans chaque phase de l'échantillon

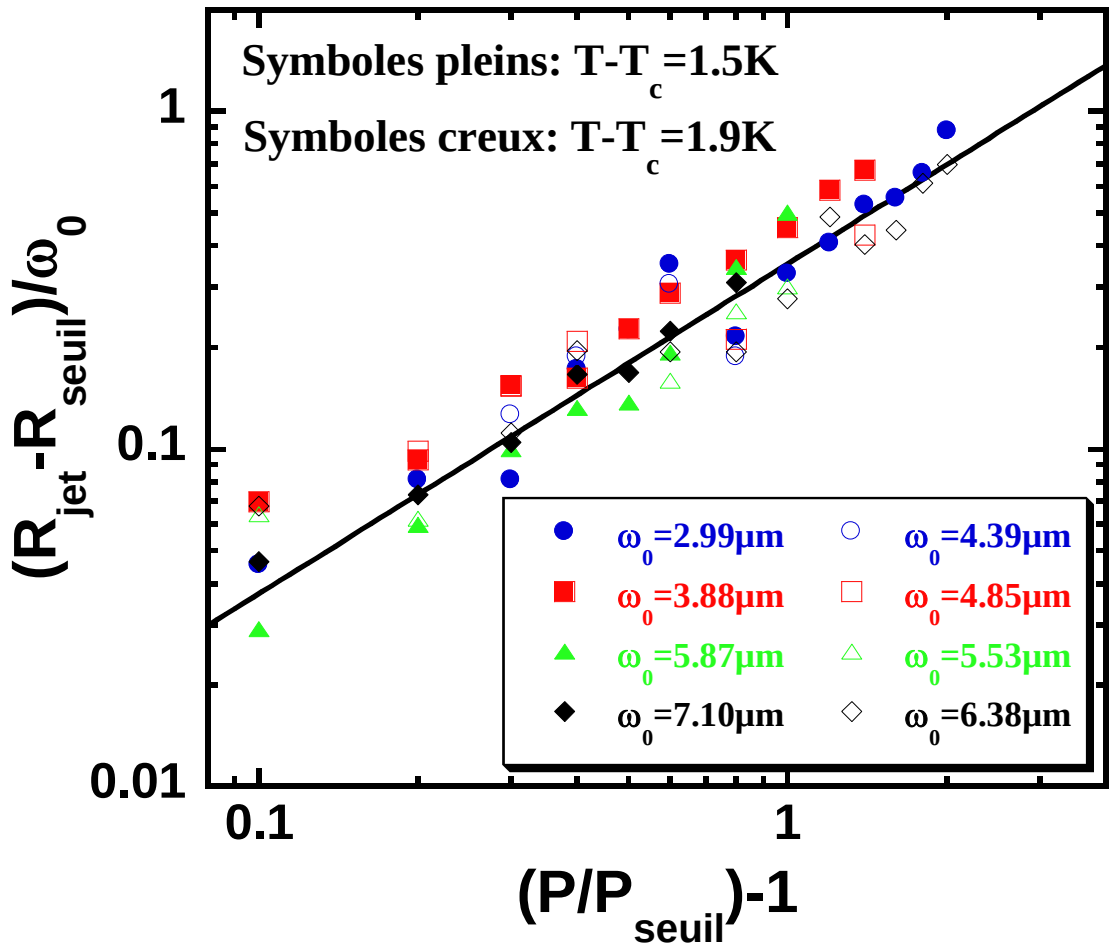


Fig. 7.29 – *Superposition des résultats de l'évolution de* $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0$ *en fonction de* $(P/P_{seuil}) - 1$ *pour tous les* ω_0 *utilisés et pour* $T - T_C = 1.5$ K *(symboles pleins) et* $T - T_C = 1.9$ K *(symboles creux). Les axes sont représentés en échelle lograthmique et le trait plein correspond à l'ajustement de tous les points expérimentaux par une loi de puissance :* $(R_{jet} - R_{seuil})/\omega_0 \propto [(P/P_{seuil}) - 1]^{0.98}$.

diphasique, nous pouvons observer la brisure de ces objets liquides au–delà d'une certaine distance par rapport à leur point d'origine. Le protocole adopté pour mesurer le débit d'un jet liquide fut donc de repérer les gouttes émises en bout de jet et d'estimer le volume total de N gouttes sur un certain laps de temps Δt. Une détection du contour de chaque goutte liquide est effectuée à l'aide d'un programme développé sous Matlab. Nous réalisons par la suite un ajustement de ce contour par une ellipsoïde afin d'avoir accès au grand rayon (noté a) et au petit rayon (noté b) (dans la majorité des cas, les gouttes sont quasi–sphériques) et ainsi nous pouvons calculer le volume de chaque goutte émise en bout de jet. L'estimation du débit $\mathcal{D}$ correspond donc à la somme des volumes de chaque goutte $V_{goutte,\ i} = \frac{4}{3}\pi a_i b_i^2$, sur une certaine durée Δt, tel que :

$$\mathcal{D} = \frac{\sum_i V_{goutte,\ i}}{\Delta t}. \tag{7.7}$$

La figure 7.30 regroupe l'ensemble des débits mesurés à l'intérieur des jets liquides en

fonction de la puissance laser. Les résultats expérimentaux présentés correspondent à un écart à la température critique de $T - T_C = 1.5$ K et différents rayons au col du faisceau, ω_0.

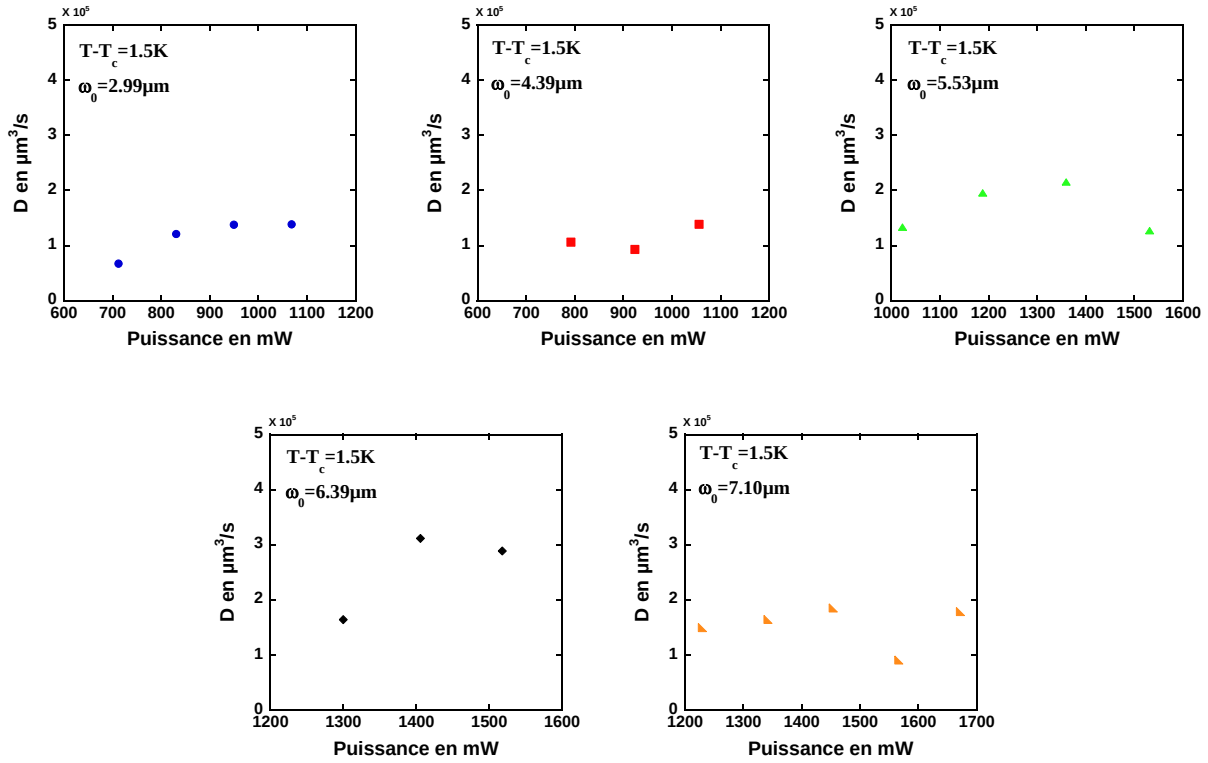


Fig. 7.30 – *Représentation de l'évolution du débit du jet liquide, induit par les effets relatifs à la force diffusive, en fonction de la puissance laser appliquée. L'échantillon critique est thermalisé tel que* $T - T_C = 1.5$ K *et les rayons au col du faisceau sont :* $\omega_0 = 2.99$ µm, $\omega_0 = 4.39$ µm, $\omega_0 = 5.53$ µm, $\omega_0 = 6.39$ µm *et* $\omega_0 = 7.10$ µm. *(L'échelle de représentation du débit en ordonnée est en* 10^5 µm^3/s.*)*

Nous pouvons remarquer que le débit du jet liquide semble être indépendant de la puissance laser appliquée, lorsque ω_0 est fixé. Ce résultat est plutôt surprenant et contre–intuitif. En effet, si on raisonne pour un rayon au col du faisceau fixé, le débit peut s'écrire :

$$\mathcal{D} \sim v \times R_{jet}^2, \tag{7.8}$$

avec v, la vitesse du fluide à travers une section du jet de rayon R_{jet}. Comme la position radiale du jet, R_{hmax}, ne varie pas avec la puissance laser (*cf.* figure 7.22 (a)), on s'attend d'une part à ce que la vitesse du fluide augmente avec la puissance. D'autre part, nous avons démontré plus haut (*cf.* figure 7.26 (a)) que le rayon du jet liquide induit augmente avec la puissance. Par conséquent, le débit devrait augmenter avec la puissance laser, ce qui est incohérent avec ce que nous observons expérimentalement.

Ensuite, afin d'étudier l'évolution du débit en fonction du rayon au col du faisceau ω_0, nous adoptons le même protocole que celui utilisé lors de l'étude des rayons des jets induits par les effets relatifs à la force diffusive. En effet, de manière à comparer des situations physiquement semblables, nous n'utilisons pas la puissance laser « brute » mais le rapport P/P_{seuil} (avec $P > P_{seuil}$ et P_{seuil} la puissance seuil d'instabilité de jet). Ainsi, lorsque le

rapport P/P_{seuil} est fixé, nous constatons une augmentation du débit lorsque ω_0 augmente, comme cela est présenté figure 7.31.

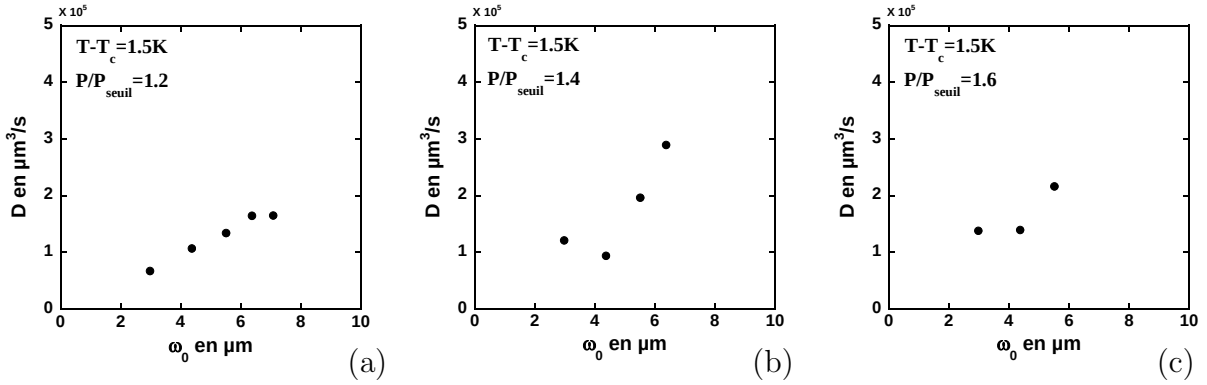


Fig. 7.31 – *Comportement du débit du jet liquide en fonction du rayon au col du faisceau ω_0 pour un rapport P/P_{seuil} fixé. (a) $P/P_{seuil} = 1.2$. (b) $P/P_{seuil} = 1.4$. (c) $P/P_{seuil} = 1.6$. (L'échelle de représentation du débit en ordonnée est en 10^5 µm^3/s.)*

Procédons à un raisonnement du même type que pour l'évolution du débit en fonction de P. Cette fois, nous considérons la puissance laser fixe et le rayon au col du faisceau varie. Si ω_0 augmente, nous avons étudié précédemment que la position radiale de l'« épaulement » augmente (*cf.* figure 7.22 (b)). Or, plus la position radiale de l'« épaulement » est grande, plus la vitesse de l'écoulement est faible. Ainsi, lorsque ω_0 augmente, la vitesse v diminue.

Nous avons établi à la section précédente que le rayon du jet liquide se comporte comme :

$$R_{jet} = R_{seuil} + \beta\omega_0 \left(\frac{P}{P_{seuil}} - 1 \right). \tag{7.9}$$

D'un autre côté, nous avons mis en évidence le comportement linéaire de la puissance seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du faisceau, tel que : $P_{seuil} = \alpha\omega_0$ (à $T - T_C$ fixé). Ainsi, en développant la relation 7.9, on obtient :

$$R_{jet} = R_{seuil} + \frac{\beta}{\alpha} P - \beta\omega_0. \tag{7.10}$$

Donc, lorsque le rayon au col du faisceau augmente, R_{jet} diminue et comme v diminue également, le débit devrait diminuer. Une fois de plus ceci est incohérent avec les observations expérimentales.

Les expériences réalisées pour mesurer les débits des micro–jets liquides induits par les effets de la force diffusive sont assez délicates en terme de visualisation et de détection. Cette difficulté expérimentale pourrait être à l'origine d'erreurs sur l'estimation des volumes des gouttes liquides émises en bout de jet. Ainsi, de nouvelles expériences sont à envisager afin de vérifier si l'évolution du débit en puissance est bien constante ou s'il s'agit d'un artefact de mesure.

7.2.5 Bilan

Au cours de cette section, nous avons pu extraire différents comportements relatifs à la déformation de l'interface liquide d'un système critique composé de phases micellaires

de microémulsion sous l'action d'un faisceau laser se propageant de manière ascendante. Tout au long de cette partie, notre attention s'est exclusivement porté sur les effets liés à la diffusion de la lumière dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique. En effet, les déformations d'interfaces liquides induites par la pression de radiation optique ont déjà fait (et font toujours aujourd'hui) l'objet de nombreuses études [51, 64, 82, 83]. Une investigation très intéressante fut réalisée récemment par N. Bertin lors de sa thèse en accomplissant notamment un parallèle entre les effets de la pression de radiation optique et acoustique sur des interfaces liquides [32].

Un ensemble de résultats se dégage de cette première étude des déformations d'interfaces liquides sous l'action de la diffusion de lumière, à commencer par l'exploration de différents régimes de déformations accessibles via un contrôle de la puissance laser appliquée au niveau de l'interface. Nous avons donc pu envisager tout d'abord un régime linéaire de déformation, où la déformation induite par les effets relatifs à la force diffusive n'est pas très prononcée et où la hauteur de déformation se comporte linéairement lorsque la puissance augmente. Dans ce régime, nous avons notamment pu réaliser de manière fructueuse des ajustements de profils stationnaires de déformation. Ceci a été effectué à l'aide d'un modèle numérique développé au sein de notre équipe et prenant en compte à la fois les effets inhérents à la pression de radiation optique ainsi que les écoulements en volume générés par la force diffusive. Une étude dynamique fut réalisée dans ce régime de déformation traduisant une croissance de la déformation aux temps courts, due aux effets diffusifs, suivie d'une relaxation de la dynamique aux temps longs.

Pour des puissances plus fortes, la déformation induite par les effets diffusifs est beaucoup plus importante et l'évolution de la hauteur de déformation dévie du comportement linéaire, observé aux plus basses puissances. Il s'agit du régime non–linéaire de déformation. Nous avons pu étudier le comportement de la déformation en faisant varier à la fois le rayon au col du faisceau, ω_0, ainsi que l'écart à la température critique, $T - T_C$.

Ce régime de déformation se conclut par une puissance caractéristique, appelée puissance seuil d'instabilité, pour laquelle nous observons l'apparition d'une pointe liquide au sommet de la déformation induite par les effets relatifs à la force diffusive. Ce seuil d'instabilité en puissance se comporte linéairement lorsque le rayon au col du faisceau ω_0 croît. Nous avons pu reprendre les résultats présentés précédemment en tenant compte de ce comportement au seuil d'instabilité. Nous en avons déduit un comportement universel de la hauteur de déformation normalisée à la hauteur au seuil en fonction de la puissance laser normalisée à la puissance seuil d'instabilité. Ce comportement universel suit une loi de puissance telle que : $(h_{max}/h_{seuil}) \propto (P/P_{seuil})^{1.5}$.

Lorsque $P > P_{seuil}$, nous constatons l'allongement de cette pointe liquide et la déstabilisation de l'interface liquide. Il en résulte l'émergence d'un micro–jet liquide parallèle à l'axe de propagation de l'onde incidente. Nous avons tenté de caractériser ce nouveau mécanisme d'instabilité induit uniquement par les écoulements permanents générés par la présence de la force diffusive dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique. Il en ressort que le rayon du jet liquide induit augmente avec la puissance laser. Une étude préliminaire du débit des jets liquides induits fut également réalisée, semblant montrer que le débit est indépendant de la puissance laser P.

Dans la suite, tout en conservant ce système fluide, nous allons changer le sens de propagation de l'onde incidente afin d'illuminer l'interface liquide de manière descendante.

Il a été démontré par le passé [51,81] que dans cette configuration expérimentale, l'interface liquide peut devenir instable pour une puissance laser suffisante. Cette fois, la déformation issue de la pression de radiation optique et les écoulements générés par la force diffusive sont dans le même sens. Plus récemment, un étude concernant le rôle de cette force diffusive dans le mécanisme d'instabilité de l'interface a été réalisée [67]. Nous proposons donc d'étendre cette étude au cours de la section suivante.

7.3 Propagation de l'onde incidente depuis la voie haute (faisceau laser descendant)

Lors de cette partie, nous avons modifié la configuration du dispositif expérimental afin d'illuminer l'interface non plus de manière ascendante mais de façon descendante (le faisceau incident se propage donc depuis milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent). L'onde incidente, toujours issue d'un laser Nd^{3+}–YAG doublé en fréquence possédant une longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 532$ nm, parcourt à présent la voie haute du montage optique. Nous allons exposer les différents résultats obtenus lorsque l'onde électromagnétique continue intéragit avec l'interface de l'échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion (annexe A.2). Dans cette configuration expérimentale, les effets inhérents à la pression de radiation optique et les effets relatifs à la force diffusive agissent dans le même sens. Il y a donc vraisemblablement une collaboration de ces deux effets aux déformations d'interfaces liquides observées. Nous tenterons d'évaluer cette collaboration, en « annulant » les effets diffusifs, lors d'une prochaine section. Pour le moment, intéressons–nous à l'évolution des déformations d'interfaces liquides engendrées par l'action de ces deux effets très près du point critique. L'un des paramètres important lors de cette investigation sera donc l'écart à température critique $T - T_C$ pour lequel est régulé l'échantillon critique. Ce paramètre ajustable nous permettra d'explorer plus d'un ordre de grandeur en terme de tensions interfaciales et ainsi d'observer la réponse à l'excitation laser, du système fluide soumis à cette modulation.

De nombreuses études, tant expérimentales que numériques, ont été réalisées par le passé concernant cette configuration expérimentale [51, 63, 81–83] ne considérant que l'action de la pression de radiation optique avec une attention toute particulière plutôt « loin » du point critique ($T - T_C \sim 2 - 20$ K) comme dans la thèse de A. Casner [51]. Plus récemment, R. Wunenburger et al. [67] ont évalué l'influence de la pression de radiation conjuguée aux effets relatifs à la force diffusive lors de déformations d'interfaces liquides (issues du même système fluide que celui que nous utilisons). Lors de ces différentes études, il a été montré que pour une puissance laser suffisamment importante, l'interface liquide se déstabilise et un jet liquide, centré sur l'axe du faisceau laser incident, est observé.

Ainsi, cette section n'a pas pour vocation d'exposer une étude complète des déformations d'interfaces liquides observées lorsque le montage optique est réglé dans cette configuration (cela ayant déjà été réalisé), mais de proposer un tour d'horizon des différentes phénoménologies observées en tentant d'apporter des compléments d'informations aux déformations observées, par une étude fine en $T - T_C$.

Enfin, cette section permet de mettre en place une base de résultats expérimentaux concernant cette configuration expérimentale, où les effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive agissent dans le même sens. Le but final est de pouvoir évaluer, lors de la prochaine section (où nous tenterons d'« annuler » les effets relatifs à la force

diffusive) le rôle de la force diffusive dans le mécanisme des déformations et instabilités d'interfaces liquides observées.

7.3.1 Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser.

Tout d'abord, nous allons présenter l'évolution de la hauteur de déformation lorsque nous augmentons la puissance laser P. La figure 7.32 représente l'évolution typique adoptée par l'interface liquide lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface augmente.

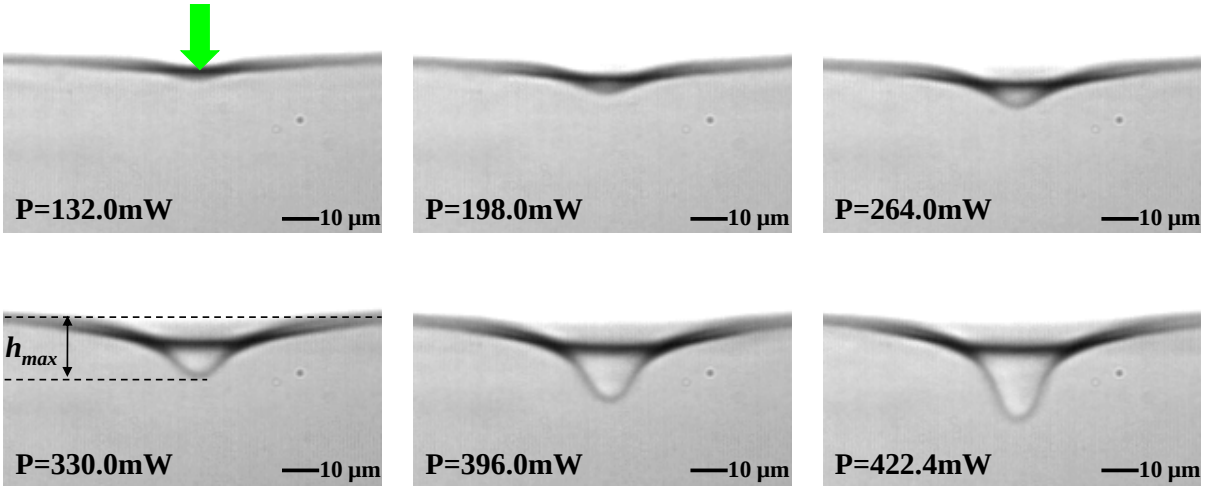


Fig. 7.32 – *Évolution de l'allure de la déformation, de l'interface liquide d'un système composé de phases micellaires de microémulsion, lorsque le faisceau laser se propage de manière descendante. L'échantillon critique est régulé en température à $T - T_C = 5$ K et le rayon au col du faisceau utilisé est $\omega_0 = 7.48$ µm. L'augmentation de la puissance engendre un léger allongement de la déformation selon l'axe du faisceau laser incident.*

L'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance correspondant à cette configuration expérimentale est représentée figure 7.33 pour trois écarts à la température critique différents. Dans cette configuration, la hauteur maximale de déformation, notée h_{max}, correspond à la distance séparant l'interface au repos du bout de la déformation, comme cela est schématisé sur l'une des images présentées figure 7.32. Tout comme lors de la section 7.2.3, nous remarquons une fois de plus qu'à puissance laser fixée (et ω_0 fixé), la hauteur de déformation décroît lorsque l'écart à la température critique augmente.

Alors qu'une indépendance des morphologies des déformations d'interfaces suivant le sens de propagation de l'onde incidente avait été observée dans le régime linéaire de déformation par A. Casner [51], il n'en n'est plus de même lorsque nous appliquons des puissances plus fortes au niveau de l'interface liquide. En effet, comme nous pouvons l'apprécier sur la figure 7.33 (et comme nous l'avons étudié pour les déformations d'interfaces induites par les effets relatifs à la force diffusive d'une onde laser se propageant de manière ascendante, présentées section 7.2.1), lorsque la puissance laser augmente, l'évolution de

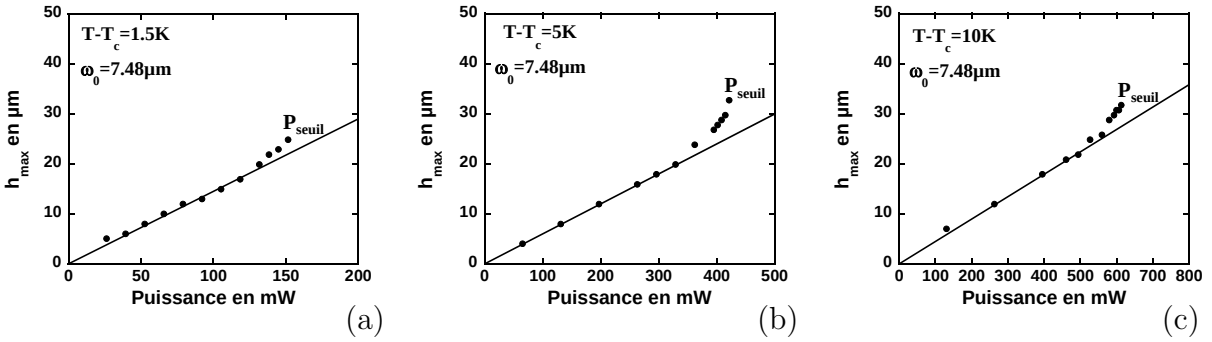


Fig. 7.33 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation induite par les effets de pression de radiation et les effets de la force diffusive d'un faisceau incident se propageant de manière descendante et de rayon au col du faisceau de* $\omega_0 = 7.48$ µm. *(a)* $T - T_C = 1.5$ K *(*$P_{seuil} =$ 151.8 mW*). (b)* $T - T_C = 5$ K *(*$P_{seuil} = 422.4$ mW*). (c)* $T - T_C = 10$ K *(*$P_{seuil} = 613.8$ mW*). Le trait plein représenté sur chaque graphique correspond à un ajustement linéaire des résultats expérimentaux pour les basses puissances. La hauteur de déformation dévie de ce comportement linéaire aux plus fortes puissances pour finalement donner naissance à une déformation de grand rapport d'aspect pour une puissance particulière appelée puissance seuil d'instabilité et notée* P_{seuil}.

la hauteur de déformation, induite cette fois-ci à la fois par les effets de la pression de radiation optique et ceux relatifs à la force diffusive, dévie du comportement linéaire observé aux plus basses puissances. Un régime non–linéaire de déformation est atteint, se concluant par un saut de la hauteur de déformation pour une puissance particulière, notée ici P_{seuil}. Cette puissance seuil d'instabilité correspond à la dernière puissance laser pour laquelle l'interface est stable et forme une bosse de déformation. Sur la figure 7.32, la dernière image expérimentale présentée, pour $P = 422.4$ mW, correspond à ce seuil d'instabilité pour l'écart à la température critique de $T - T_C = 5$ K et $\omega_0 = 7.48$ µm. Lorsque la puissance laser appliquée est supérieure à ce seuil, l'interface se déstabilise et forme un jet liquide centré sur l'axe de propagation de l'onde incidente. L'émission de gouttes au bout du jet liquide nous confirme la présence d'un écoulement dans le sens de propagation de l'onde incidente. La figure 7.34 est un exemple de l'évolution brutale de la morphologie de l'interface déformée lorsque l'on passe de P_{seuil} à $P_{seuil} + \varepsilon$ (où $\varepsilon = 6.6$ mW et correspond à la précision à laquelle nous avons accès à l'aide de notre dispositif expérimental). L'exemple présenté figure 7.34 correspond à un écart à la température critique de $T - T_C = 12$ K, un rayon au col du faisceau de $\omega_0 = 7.48$ µm et la puissance seuil correspondante est $P_{seuil} = 825$ mW.

7.3.2 Caractérisation du seuil d'instabilité

Comportement de la puissance seuil d'instabilité en fonction de l'écart à la température critique

La déstabilisation de l'interface, lorsque la puissance laser appliquée devient importante, est un mécanisme assez brutal comme le montre l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de P (figure 7.33) ou encore la comparaison réalisée entre les images expérimentales au seuil d'instabilité et à une puissance légèrement supérieure à ce seuil (figure 7.34). La caractérisation de ce seuil d'instabilité en fonction du rayon au col du

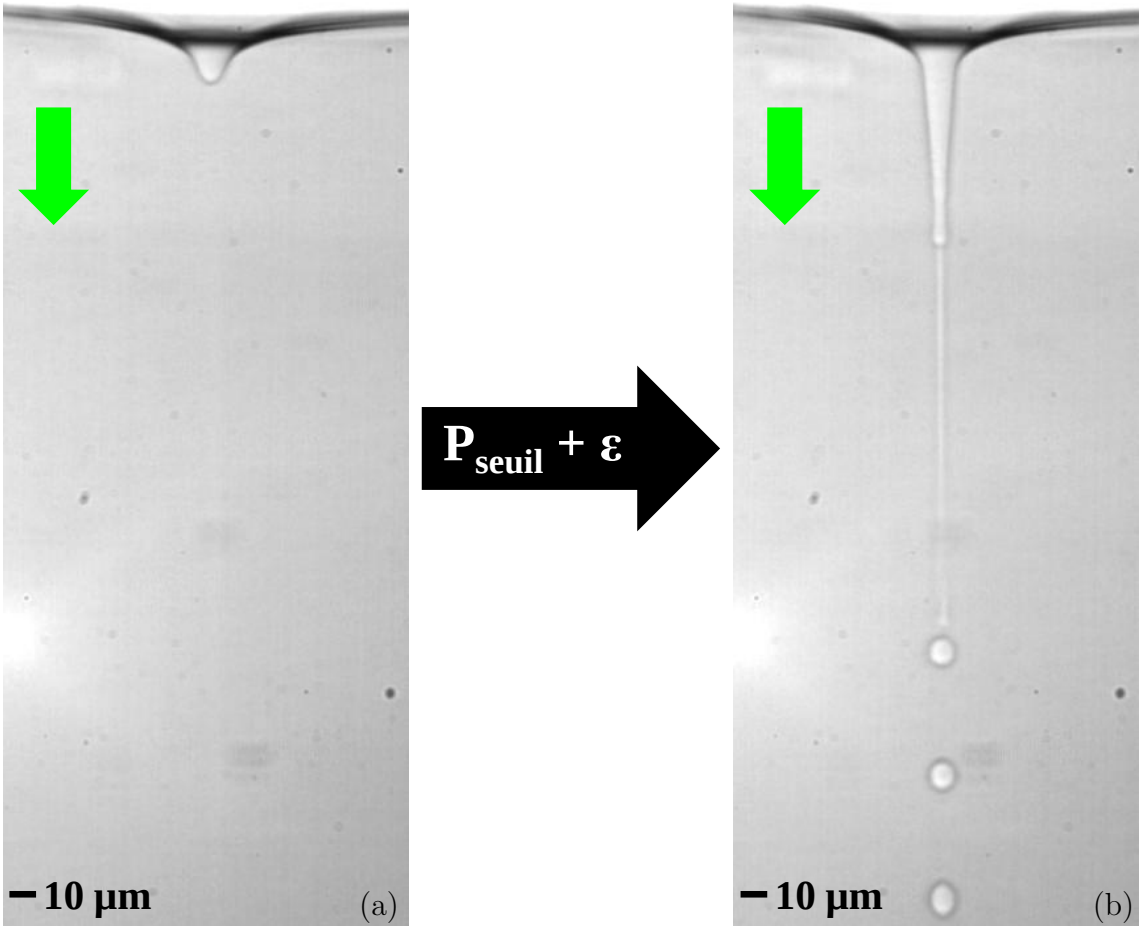


Fig. 7.34 – *(a) Morphologie adoptée par l'interface liquide au seuil d'instabilité* $P_{seuil} = 825$ mW. *(b) Rupture de l'interface en jet liquide émettant des gouttes en bout de jet lorsque* $P = P_{seuil} + \varepsilon = 831.6$ mW *(où* $\varepsilon = 6.6$ mW *et correspond à la précision en puissance laser de notre dispositif expérimental). Le système est régulé en température à* $T - T_C = 12$ K *et* $\omega_0 = 7.48$ µm.

faisceau, ω_0 a déjà été réalisée par A. Casner au cours de sa thèse [51] montrant que la puissance seuil d'instabilité est linéaire en ω_0.

Lors de nos expériences, nous n'avons pas fait varier le rayon au col du faisceau mais nous avons modifié l'écart à la température critique $T - T_C$. En effet, rappelons que la modification de l'écart à la température critique de l'échantillon permet à la fois de faire varier la tension interfaciale mais aussi l'amplitude de la force diffusive présente dans chaque phase de l'échantillon diphasique. Nous avons donc adopter ce protocole car notre intérêt, au cours de cette thèse, se porte principalement sur les effets relatifs à cette force diffusive. Lors de sa thèse, A. Casner a également démontré que la puissance seuil d'instabilité varie linéairement lorsque l'écart à la température critique, $T - T_C$, croît. Nous confirmons l'existence de ce comportement à partir de nos résultats expérimentaux comme le montre la figure 7.35 représentant l'évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction de $T - T_C$. En parallèle, nous avons réalisé une simulation numérique, prenant en compte à la fois les effets de la pression de radiation optique et ceux relatifs à la force diffusive, dans cette configuration expérimentale (figure 7.35) afin de confirmer numériquement ce comportement.

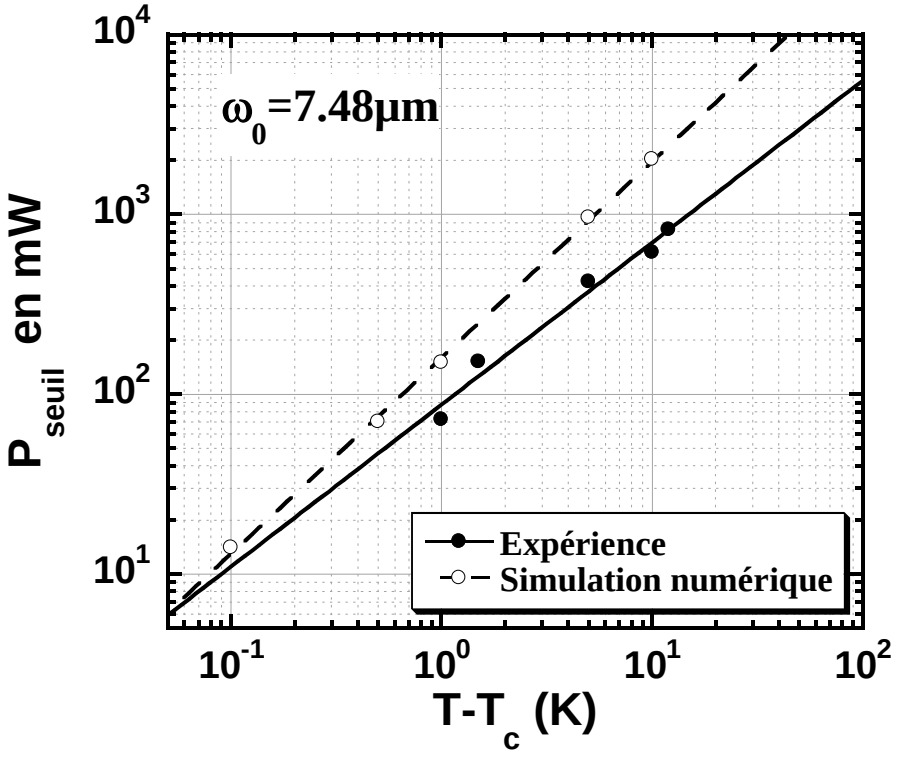


Fig. 7.35 – *Évolution de la puissance seuil d'instabilité P_{seuil} en fonction de l'écart à la température critique $T - T_C$ lorsque le faisceau, de rayon $\omega_0 = 7.48$ µm, se propage de façon descendante. Les symboles pleins correspondent aux résultats expérimentaux alors que les symboles creux représentent les résultats issus de simulations numériques prenant en compte à la fois la pression de radiation et la force diffusive. Les traits plein et en pointillés correspondent à l'ajustement des données par une loi de puissance.*

D'après les ajustements en loi de puissance effectués sur les résultats expérimentaux et sur ceux issus de la simulation numérique (figure 7.35), nous obtenons respectivement les comportements de la puissance seuil d'instabilité :

$$P_{seuil}^{Expérimental} \propto (T - T_C)^{0.90}\,, \tag{7.11}$$

$$P_{seuil}^{Simulation} \propto (T - T_C)^{1.09}\,. \tag{7.12}$$

Nous confirmons donc expérimentalement ainsi que numériquement que la puissance seuil d'instabilité se comporte comme une loi de puissance en fonction de l'écart à la température critique $T - T_C$ avec un exposant proche de 1.

Un écart est observé entre expérience et simulation numérique. Nous attribuons celui–ci à la prise en compte numérique des deux couplages, pression de radiation et force diffusive. Pour des raisons évidentes de complications numériques, d'ailleurs actuellement en cours de développement au sein de notre équipe, ni le couplage propagation – déformation en pression de radiation, ni les potentiels couplages collaboratifs entre pression de radiation et force diffusive n'ont été pris en compte. Or nous avons vu précédemment que non seulement ces couplages existent (d'autres preuves seront apportées plus avant) mais que leurs collaborations réduisent les seuils d'instabilité. C'est donc probablement ce qu'il se passe ici.

À l'aide de la figure 7.35 nous constatons que cette instabilité de jet liquide induite par les effets de la pression de radiation et ceux relatifs à la force diffusive est accessible sur une très grande plage de $T - T_C$ à l'inverse de l'instabilité de jet induite uniquement par les effets de la force diffusive que nous avons étudié section 7.2.4 où nous étions beaucoup plus limité en $T - T_C$ (compte tenu de l'accroissement de la tension interfaciale en liaison avec la puissance laser disponible) pour observer la déstabilisation de l'interface.

Caractérisation de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice sur l'interface au seuil d'instabilité : comparaison avec l'angle à la réflexion totale

Afin de parfaire la caractérisation du seuil d'instabilité, nous avons réalisé une étude concernant l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide. Cette recherche permet de tester la validité de l'hypothèse faite par A. Casner [51] invoquant l'intervention de la réflexion totale de l'onde incidente sur l'interface déformée. La réflexion totale que subirait l'onde incidente permettrait une accumulation d'énergie lumineuse vers le bout de la déformation de l'interface liquide et donc pourrait engendrer la déstabilisation de celle–ci. Les études suivantes [82] ont mis à mal cette hypothèse montrant que l'angle maximal d'incidence de l'onde laser au niveau de l'interface, lorsque $P = P_{seuil}$, était toujours inférieur à l'angle à la réflexion totale. Nous avons confirmé cet état de fait au chapitre 4 pour la déstabilisation d'interfaces entre liquides transparents par la pression de radiation. Néanmoins cette hypothèse ne semble pas totalement écartée du mécanisme régissant l'instabilité.

L'angle à la réflexion totale est défini comme :

$$\theta_{RT} = \arcsin\left(\frac{n_1}{n_2}\right), \tag{7.13}$$

où n_1 correspond à l'indice de réfraction de la phase 1 et n_2 correspond à l'indice de réfraction de la phase 2 et tel que $n_2 > n_1$ (la phase 2 étant au-dessus de la phase 1, l'onde incidente se propage depuis la phase 2 vers la phase 1).

Sa dépendance en écart à la température critique est la suivante [82] :

$$\theta_{RT} = \arcsin \frac{n_0 - \frac{\Delta n_0}{2}\left(\frac{T-T_C}{T_C}\right)^{0.325}}{n_0 + \frac{\Delta n_0}{2}\left(\frac{T-T_C}{T_C}\right)^{0.325}}, \tag{7.14}$$

où $n_0 = 1.464$ est l'indice de réfraction de la solution mère, $\Delta n_0 \simeq \left(\frac{\partial n}{\partial \rho}\right)_T \Delta\rho_0$ (avec $\left(\frac{\partial n}{\partial \rho}\right)_T = -1.22.10^{-4}$ m^3/kg et $\Delta\rho_0 = 284$ kg/m^3).

L'angle d'incidence θ_i correspond à celui représenté schématiquement figure 7.36.

Lorsque le seuil d'instabilité en puissance est approché, l'angle maximal d'incidence, noté $\theta_{i\ max}$, de l'onde excitatrice au niveau de l'interface croît jusqu'à une valeur finale au seuil d'instabilité. La position de cet angle correspond à celle de l'inflexion dans le profil de déformation. Un exemple de cette croissance est représenté figure 7.37 (a), pour un écart à la température critique de $T - T_C = 1$ K. Le graphique en insert de la figure 7.37 (a) expose l'évolution du profil de la déformation stationnaire d'interface liquide pour quelques puissances laser, à l'approche du seuil d'instabilité.

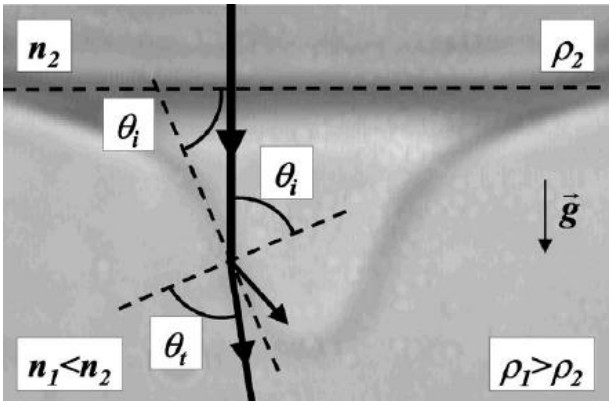


Fig. 7.36 – *Illustration de la mesure de l'angle d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide. θ_i correspond à l'angle d'incidence alors que θ_t est l'angle de transmission. L'image est extraite de [82], le faisceau laser incident se propage de façon descendante avec un rayon au col du faisceau de $\omega_0 = 3.47$ µm. L'échantillon critique est régulé à $T - T_C = 6$ K.*

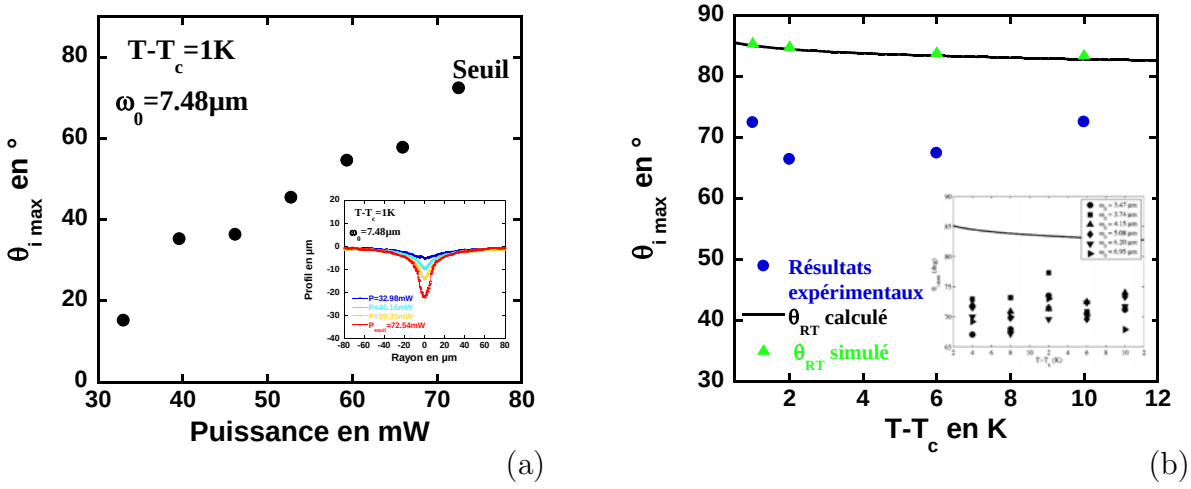


Fig. 7.37 – *(a) Évolution de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface déformée en fonction de la puissance laser. Le dernier point correspond à l'angle maximal d'incidence au seuil d'instabilité ($\theta_{i\ max} \sim 72$ °). Le système est régulé en température tel que $T - T_C = 1$ K et le rayon au col du faisceau laser se propageant de façon descendante est $\omega_0 = 7.48$ µm. Le graphique en insert représente l'évolution du profil de déformation stationnaire de l'interface liquide pour quelques puissances laser à l'approche du seuil d'instabilité. (b) Comportement de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide lorsque la puissance laser est égale à la puissance seuil d'instabilité pour différents écarts à la température critique $T - T_C$. Le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 7.48$ µm. Le trait plein correspond à l'évolution de l'angle à la réflexion totale θ_{RT} calculé analytiquement avec 7.14 et les triangles correspondent à θ_{RT} simulé avec notre code numérique. Le graphique en insert présente les résultats obtenus par R. Wunenburger et al., issus de [82].*

Le dernier point exposé sur la figure 7.37 (a), correspondant à la valeur de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface lorsque la puissance laser est égale à la puissance au seuil d'instabilité, est reportée sur la figure 7.37 (b) pour différents écarts à la température critique de l'échantillon. $\theta_{i\ max}$ est comparé à l'angle à

la réflexion totale θ_{RT} pour chaque $T - T_C$. Le trait plein de la figure 7.37 (b) correspond au calcul analytique de θ_{RT} réalisé à l'aide de 7.14 alors que les triangles représentent la valeur de θ_{RT} pour chaque $T - T_C$ calculé à partir des données et de la formule 7.13. Si maintenant on compare l'évolution de θ_{RT} à celle de l'angle maximal d'incidence de l'onde au niveau de l'interface, $\theta_{i\ max}$, nous constatons (et nous confirmons) que $\theta_{i\ max}$ reste bien inférieur à θ_{RT} quelque soit l'écart à la température critique considéré. Cet angle maximal d'incidence semble être constant en fonction de $T - T_C$ et nous pouvons encadrer sa valeur de la façon suivante :

$$65\ ^\circ \leq \theta_{i\ max} \leq 75\ ^\circ < \theta_{RT}. \tag{7.15}$$

Les résultats que nous obtenons sont en très bon accord avec ceux obtenus précédemment par R. Wunenburger *et al.* dont le graphique en insert de la figure 7.37 (b) est issu de leurs travaux [82].

Robustesse de l'instabilité de jet liquide

Une fois que l'interface liquide est déstabilisée par l'action de l'onde laser incidente, un jet liquide, émettant des gouttes, est établi. Si à présent on diminue continuement la puissance laser au niveau de l'interface et que l'on repasse à une puissance légèrement inférieure à P_{seuil}, nous observons que le jet est toujours présent jusqu'à un second seuil en puissance en deçà duquel nous retrouvons une bosse de déformation similaire à celles présentées figure 7.32. Ainsi, pour une variation croissante ou décroissante de la puissance laser, des formes stables différentes peuvent coexister lorsque $P < P_{seuil}$ comme cela est présenté figure 7.38. Il y a donc existence d'un cycle d'hystérésis en puissance nous indiquant la nature sous–critique de l'instabilité.

Cette instabilité ainsi que le cycle d'hystérésis ont notamment été étudié par R. Wunenburger *et al.* [83] invoquant l'intervention de la réflexion totale de la lumière incidente sur l'interface déformée afin de concentrer l'énergie de l'onde incidente au bout de la déformation et donc engendrer la déstabilisation de celle–ci. Or, comme nous l'avons vu ci–dessus, l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice sur l'interface déformée au seuil d'instabilité reste bien inférieur à l'angle à la réflexion totale, quelque soit l'écart à la température critique. La réflexion totale ne semble donc pas être le moteur de cette instabilité. La force diffusive non plus puisque le même résultat a été obtenu à l'aide de fluides transparents, suggérant de fait une origine de l'instabilité basée sur le couplage entre la propagation de l'onde et la déformation de l'interface.

7.3.3 Instabilité de type sous–critique : mise en évidence d'un cycle d'hystérésis

Comme cela fut démontré par le passé [83], l'instabilité de jet liquide induite à l'aide de cette configuration expérimentale conduit à un cycle d'hystérésis. Cela signifie que suivant la façon de délivrer la puissance laser au niveau de l'interface (de manière croissante ou décroissante), deux morphologies de l'interface liquide peuvent coexister (une simple bosse de déformation ou un jet liquide comme cela est présenté figure 7.38). Lorsque nous avons effectué nos expériences en fonction de l'écart à la température critique, cette recherche de cycle d'hystérésis s'est donc naturellement greffée à notre protocole expérimental.

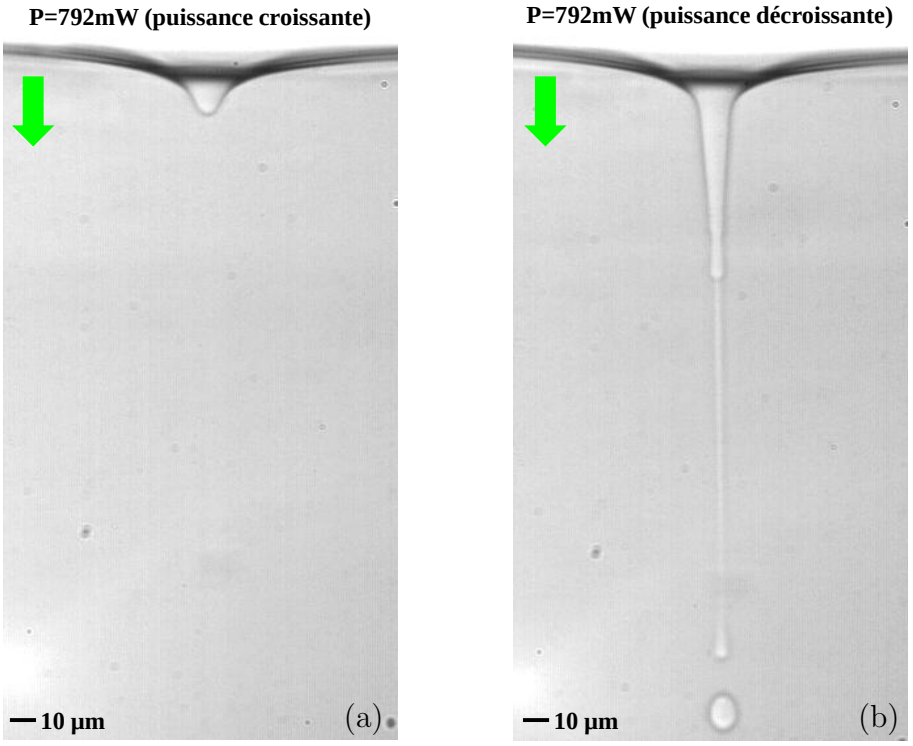


Fig. 7.38 – *Allure de la déformation d'interface liquide lorsque l'onde incidente, de rayon au col de faisceau* $\omega_0 = 7.48$ µm, *se propage de façon descendante. Le système critique est régulé en température tel que* $T - T_C = 12$ K *(*$P_{seuil} = 825$ mW*). (a) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 792$ mW *délivrée de manière croissante. (b) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 792$ mW *délivrée de manière décroissante.*

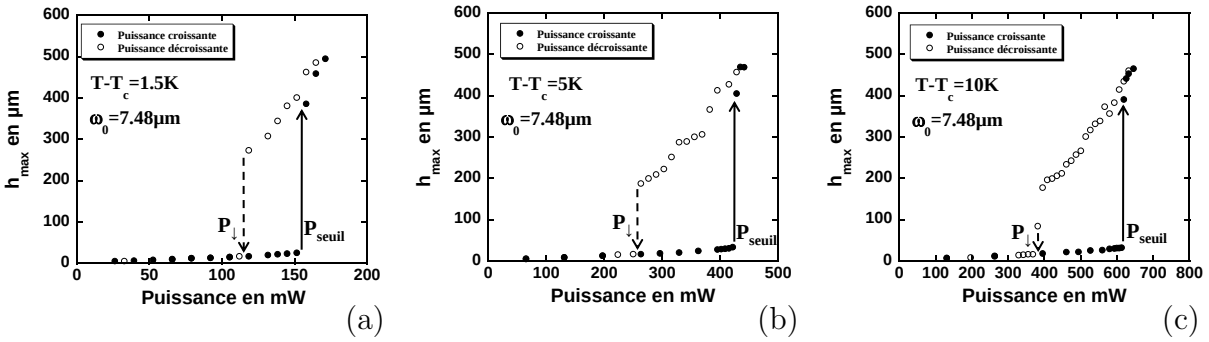


Fig. 7.39 – *Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance délivrée de manière croissante et décroissante au niveau de l'interface liquide. Le faisceau incident se propage de manière descendante et comporte un rayon au col du faisceau de* $\omega_0 = 7.48$ µm. *(a)* $T - T_C = 1.5$ K, $P_{seuil} = 151.8$ mW *et* $P_\downarrow = 112.2$ mW. *(b)* $T - T_C = 5$ K, $P_{seuil} = 422.4$ mW *et* $P_\downarrow = 250.8$ mW. *(c)* $T - T_C = 10$ K, $P_{seuil} = 613.8$ mW *et* $P_\downarrow = 369.6$ mW. *La puissance seuil d'instabilité (*P_{seuil}*) est représentée ainsi que la puissance seuil décroissante, notée* $P_\downarrow$*, pour laquelle le jet liquide disparaît et l'interface liquide recouvre une simple bosse de déformation.*

Nous confirmons une fois de plus l'existence de cette bistabilité et nous présentons quelques exemples pour différents $T - T_C$, figure 7.39.

L'instabilité de jet liquide, lorsque l'onde incidente se propage de façon descendante, semble résulter d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation qu'elle engendre. Cette dernière ayant une rétroaction sur la propagation de l'onde [63]. Cette hypothèse n'a pour le moment pas été vérifiée, par l'intermédiaire de simulations numériques, mais est actuellement en cours de développement au sein de notre équipe.

Notons que lors de ses travaux de thèse, N. Bertin [32] a étudié cette instabilité dans le cadre d'une comparaison entre les effets de la pression acoustique et optique. Ce dernier n'a pas observé cette hystérésis de forme lorsqu'une onde acoustique focalisée déforme une interface liquide.

7.3.4 Bilan

Lors de cette section, nous avons pu établir un certain nombre de comportements significatifs de la déformation d'une interface liquide sous l'action d'une onde laser continue se propageant de manière descendante. La plupart des résultats présentés ne sont que des rappels ou confirmations d'observations déjà réalisées par le passé [32, 51, 63, 67, 81–83]. Cette partie nous permet donc de présenter une base solide de comportements particuliers de la déformation de l'interface liquide lorsque celle–ci est illuminée depuis la voie haute du dispositif expérimental. Dans ce cas, les effets inhérents à la pression de radiation optique et ceux relatifs à la force diffusive agissent dans le même sens correspondant au sens de propagation de l'onde incidente.

Ainsi, nous avons pu déduire de nos expériences que lorsque la puissance laser est fixée, la hauteur maximale de déformation diminue quand l'écart à la température critique augmente, ce résultat étant une observation commune avec le comportement issu d'une configuration expérimentale où le faisceau incident se propage de manière ascendante, comme nous l'avons étudié section 7.2.3. En effet, lorsque l'écart à la température critique augmente, la tension interfaciale qui en dépend (telle que $\sigma \propto \left(\frac{T-T_C}{T_C}\right)^{1.26}$) augmente également et donc l'interface liquide devient de moins en moins déformable. De ce fait, la hauteur maximale de déformation de l'interface liquide sera d'amplitude moindre à mesure que $T - T_C$ croît.

Nous avons pu conclure que l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser comporte également différents régimes de déformations. Suite à un régime linéaire de déformation aux basses puissances où la hauteur de déformation se comporte linéairement avec la puissance, le comportement dévie en un régime non–linéaire de déformation qui se conclut par une puissance particulière pour laquelle la hauteur de déformation subit un saut. Cette puissance particulière est apparentée à une puissance seuil d'instabilité. En effet, au–delà de cette puissance seuil, l'interface se déstabilise et donne naissance à un jet liquide émettant des gouttes. Cette instabilité de jet liquide est centrée sur l'axe de propagation du faisceau laser car composée du liquide d'indice de réfraction le plus élevé.

Le seuil d'instabilité a été caractérisé et nous sommes en mesure d'affirmer que la puissance seuil d'instabilité se comporte linéairement en fonction de l'écart à la température critique : $P_{seuil} \propto (T - T_C)$. D'autre part, l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice

au niveau de l'interface liquide, au seuil d'instabilité, est inférieur à l'angle à la réflexion totale ($\theta_{i\ max} < \theta_{RT}$). Sa valeur semble constante en fonction de $T - T_C$ et est comprise entre 65° et 75°, ce qui est cohérent avec les travaux précédents de R. Wunenburger *et al.* [82]. Enfin, nous pouvons remarquer que les puissances seuil obtenues dans le cadre de cette configuration expérimentale sont bien plus faibles (en terme d'amplitude) que celles nécessaires à la déstabilisation de l'interface lorsque l'onde incidente se propage de façon ascendante. Cette instabilité de jet est donc observable sur une très grande plage en $T - T_C$ contrairement à celle étudiée section 7.2.4 où nous sommes assez limité en $T - T_C$ et donc en terme de tension interfaciale pour que les écoulements en volume induits par les effets de la force diffusive engendrent la déstabilisation de l'interface liquide.

Enfin nous avons pu confirmer l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser. En effet, si la puissance laser varie continuement de manière croissante au niveau de l'interface liquide jusqu'à une puissance supérieure à la puissance seuil d'instabilité, nous observons l'émergence d'un jet liquide. Si maintenant la puissance varie de manière décroissante, une fois l'instabilité de jet établie, il est possible (sur une certaine plage en puissance) de conserver cet objet liquide pour des puissances laser inférieures à la puissance nécessaire au déclenchement de cette instabilité. Cela signifie que pour une même puissance fixée inférieure à la puissance seuil ($P < P_{seuil}$), deux morphologies différentes de l'interface liquide déformée sont accessibles suivant le chemin suivit (soit une simple bosse de déformation ou un jet liquide). Cette bistabilité nous renseigne sur le caractère sous–critique de l'instabilité. Un fort couplage existant entre la propagation de l'onde incidente et la déformation de l'interface liquide semble exister et pourrait être à l'origine de l'instabilité observée. Des études, notamment d'un point de vue numérique, sont en cours de réalisation afin de valider cette hypothèse.

Dans la dernière section de ce chapitre expérimental, nous allons effectuer de nombreuses comparaisons avec les résultats présentés dans cette section. En effet, nous allons exposer les différents résultats obtenus pour une configuration expérimentale où deux faisceaux lasers contra–propageants illuminent l'interface liquide de la même façon (rayon au col du faisceau ω_0 et puissance laser P identiques). Le but de cette partie réside dans l'étude de l'influence des effets relatifs à la force diffusive lors des déformations d'interfaces liquides et notamment concernant l'établissement de l'instabilité de jet observée dans cette section. Cette instabilité est–elle toujours présente lorsque les effets de la force diffusive sont annihilés ? Quelle est son influence sur les objets liquides ainsi créés ? Nous verrons tout d'abord s'il est possible de s'affranchir des effets de la force diffusive et nous développerons les différents résultats obtenus dans cette configuration expérimentale originale.

7.4 Illumination de l'interface liquide à l'aide de deux faisceaux lasers contra–propageants

L'objectif de cette section est l'étude de l'influence des effets relatifs à la force diffusive lors de la déformation de l'interface liquide de notre système fluide, composé de phases micellaires de microémulsion, sachant que les deux phases de l'échantillon critique diphasique diffusent la lumière incidente. La diffusion de l'onde incidente par le milieu est à

l'origine d'une force en volume permettant l'établissement d'écoulements permanents au sein du fluide (section 2.2) pouvant engendrer la déformation de l'interface liquide (lorsque la tension interfaciale est suffisamment faible) comme nous l'avons étudié section 7.2. Nous avons vu que cette force volumique peut, sous certaines conditions, impliquer des déformations d'interfaces de forte amplitude allant jusqu'à la déstabilisation et à la rupture de l'interface en jet liquide. Section 7.3, nous avons montré que les écoulements générés par cette force diffusive étaient dans le même sens que les effets inhérents à la pression de radiation optique. La participation des effets de la force diffusive au déclenchement de l'instabilité d'interface mise en évidence est beaucoup moins évidente que lorsque l'onde incidente se propage de manière ascendante. En effet lorsque l'onde incidente est issue de la voie basse du dispositif expérimental, les effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive étant de sens opposés, il apparaît évident que l'instabilité de jet observé (dans le sens de propagation de l'onde incidente) résulte uniquement des contraintes visqueuses exercées au niveau de l'interface par les écoulements en volume générés par la force diffusive. Néanmoins, la puissance laser pour la déclencher est typiquement dix fois plus importante que lorsque la pression de radiation optique et la force diffusive agissent dans le même sens.

Dans la présente section, nous allons donc tout abord évaluer la possibilité ou non de s'affranchir des effets relatifs à la force diffusive afin d'en étudier, par la suite, l'influence sur l'établissement et les caractéristiques des objets liquides formés.

7.4.1 Compensation des effets relatifs à la force diffusive

La configuration expérimentale utilisée (présentée figure 7.40 (a)) permet–elle « d'annuler » les effets relatifs à la force diffusive ? En réalité, il ne s'agit pas « d'annuler » les effets de la force diffusive mais plutôt de compenser en moyenne les écoulements induits par la force diffusive dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique. Pour réaliser cette compensation, le dispositif expérimental est donc réglé en configuration double propagation par l'intermédiaire d'une rotation de la lame $\lambda/2$, qu'il comporte. Le réglage de cette lame d'onde (moyennant un étalonnage présenté section 3.1.5) permet d'obtenir exactement la même puissance laser au niveau de l'interface liquide. D'autre part, les longueurs des trajets optiques de la voie haute et de la voie basse du dispositif expérimental étant identiques, nous nous assurons de la même focalisation du faisceau laser au niveau de l'interface.

La figure 7.40 (b) expose les profils des déformations stationnaires de l'interface liquide suivant les différentes configurations expérimentales (faisceau ascendant (en vert), descendant (en bleu) ou double propagation (en rouge)). Nous pouvons apprécier que lorsque le faisceau se propage de manière ascendante (en vert), une large bosse de déformation significative est obtenue, due aux contraintes visqueuses exercées par les écoulements en volume générés par la force diffusive au niveau de l'interface liquide. Lorsque le faisceau incident se propage de façon descendante (en bleu), la déformation d'interface est dirigée vers le bas et pour les conditions de rayon au col du faisceau et de puissance laser présentées ici, nous obtenons la déstabilisation de l'interface et la rupture de celle–ci en jet liquide. Il apparaît des « ailes » à la déformation qui sont dues aux contraintes exercées par les écoulements au niveau de l'interface. Enfin, le profil en rouge sur la figure 7.40 (b) est obtenu lorsque deux faisceaux lasers contra–propageants de puissance identique inter-

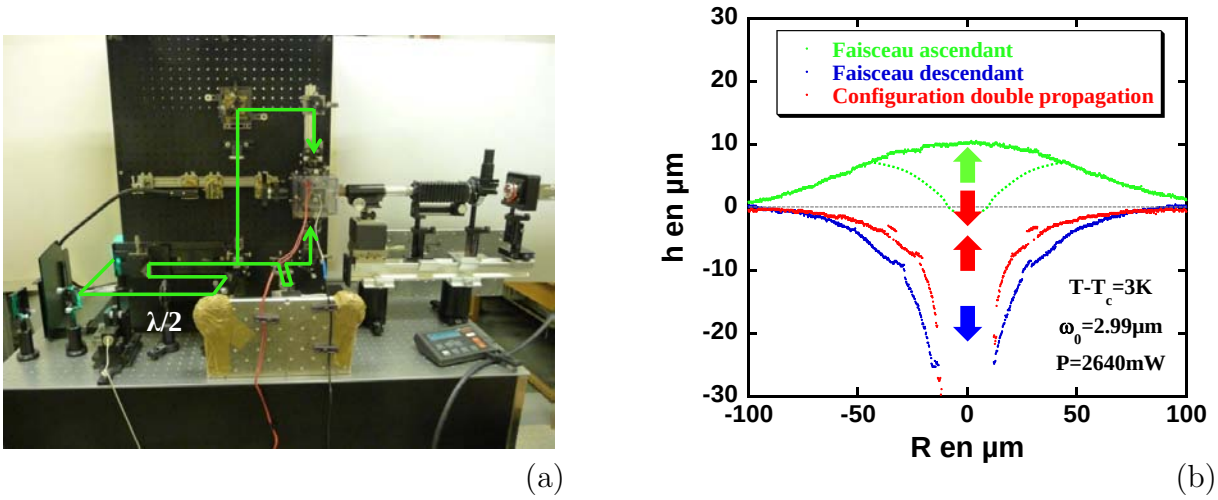


Fig. 7.40 – *(a) Photographie du dispositif expérimental réglé en configuration double propagation où deux faisceaux lasers contra–propageants illuminent l'interface liquide de l'échantillon critique. La puissance laser et la focalisation de l'onde incidente sont identiques au niveau de l'interface. Les trajets optiques de chaque faisceau laser empruntant la voie haute et la voie basse du dispositif expérimental sont représentés schématiquement. (b) Comparaison des profils de déformation stationnaire de l'interface liquide obtenus suivant la configuration expérimentale. En vert, le faisceau incident se propage de façon ascendante, en bleu l'onde incidente se propage de manière descendante alors qu'en rouge nous pouvons observer l'allure du profil de déformation stationnaire obtenu lorsque deux faisceaux contra–propageants interceptent l'interface. L'échantillon est régulé en température à* $T - T_C = 3$ K, *le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 2.99$ µm *et la puissance totale appliquée au niveau de l'interface est égale à* $P = 2640$ mW. *(La ligne en pointillés représente schématiquement la position de l'interface au repos.)*

ceptent l'interface liquide. La déformation est plus étroite que dans le cas précédent ; il apparaît très clairement que l'interface liquide reste plane sauf très proche de l'axe de propagation ($R = 0$) où les effets de la pression de radiation optique agissent toujours. Ainsi, les effets inhérents à la force diffusive sont significativement réduits. Cela est une preuve directe (visuelle) de la compensation des écoulements établis au sein de chaque phase de l'échantillon diphasique par l'intermédiaire de cette configuration expérimentale.

Il est donc *a priori* aisé de compenser les effets moyens dus à la force diffusive. Nous allons ainsi par la suite pouvoir étudier leur(s) influence(s) sur les différents phénomènes physiques observés.

7.4.2 Évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser : comparaison avec les résultats obtenus en simple propagation (section 7.3.1)

Tout comme en section 7.3.1, nous n'avons utilisé qu'un seul rayon au col du faisceau laser incident ($\omega_0 = 7.48$ µm), notre intérêt étant porté exclusivement sur la variation de l'écart à la température critique $T - T_C$. Dans cette partie nous allons comparer les résultats décrivant l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser pour la configuration expérimentale simple propagation d'un faisceau laser descendant avec la configuration double propagation où les effets relatifs à la force diffusive sont

compensés dans chaque phase de l'échantillon (rappelons que la diffusion de l'onde incidente par les diffuseurs est élastique et que la concentration en diffuseurs est considérée suffisamment faible de manière à négliger la diffusion multiple).

Les graphiques de la figure 7.41 représentent l'évolution de la hauteur maximale de déformation pour ces deux configurations expérimentales et pour trois écarts à la température critique différents : $T - T_C = 1.5$ K, $T - T_C = 5$ K et $T - T_C = 10$ K.

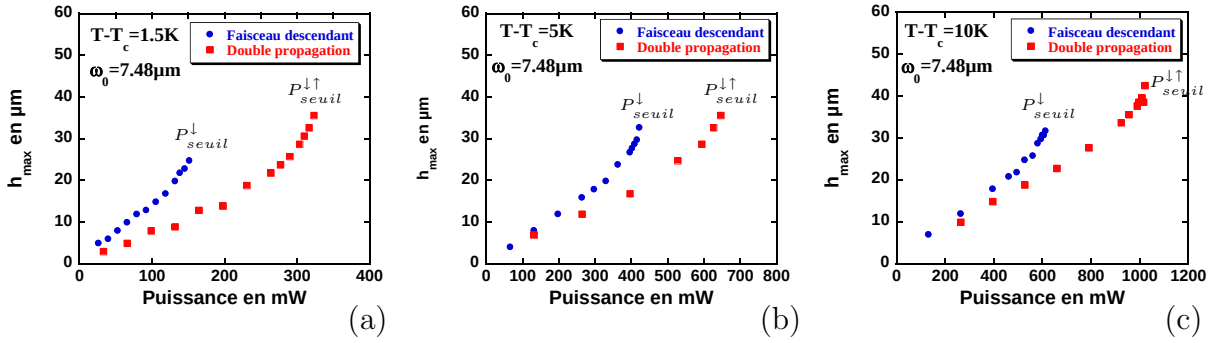


Fig. 7.41 – *Évolution de la hauteur maximale de déformation h_{max} en fonction de la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide de l'échantillon critique. Comparaison entre les résultats issus d'une simple propagation d'un faisceau laser descendant (en bleu) avec les résultats obtenus en double propagation (en rouge). Dans les deux configurations expérimentales présentées, le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 7.48$ µm. (a) $T - T_C = 1.5$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 151.8$ mW et $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 323.4$ mW. (b) $T - T_C = 5$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 422.4$ mW et $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 646.8$ mW. (c) $T - T_C = 10$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 613.8$ mW et $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 1023.0$ mW. ($P^{\downarrow}_{seuil}$ représente la puissance seuil d'instabilité en configuration simple propagation descendante et $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}$, la puissance seuil d'instabilité en double propagation.)*

L'évolution de la hauteur maximale de déformation se comporte de façon similaire à celle observée en simple propagation. Un régime linéaire de déformation est visible aux basses puissances. Par la suite, lorsque la puissance augmente, le comportement dévie du régime linéaire en un régime non–linéaire de déformation pour se conclure par la déviation de la hauteur de déformation à une puissance caractéristique appelée puissance seuil d'instabilité et notée $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}$. Au–delà de cette puissance caractéristique ($P > P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}$), comme lorsqu'une seule onde incidente se propage de façon descendante, l'interface est déstabilisée.

Nous pouvons tout d'abord analyser les comparaisons présentées figure 7.41 et en conclure que lorsque la puissance laser est fixée, la hauteur de déformation en configuration double propagation est d'amplitude plus faible qu'en configuration simple propagation descendante. Cette différence se réduit lorsque l'écart à la température critique augmente. D'autre part, la puissance seuil d'instabilité nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est également plus forte en double propagation que lorsqu'un seul faisceau laser descendant intercepte l'interface liquide. Dans la suite, nous allons revenir sur ces différents points afin de tenter de leur apporter une justification physique.

Lorsque l'interface est déstabilisée sous l'action de deux faisceaux lasers contra – propageants, la déformation d'interface obtenue correspond à l'émergence d'un objet liquide stationnaire allongé apparenté à une « aiguille liquide » qui ne produit aucune goutte à

son bout (et qui ne gonfle pas dans le temps), contrairement au jets liquides observés à la section 7.3 précédente. Cette caractéristique nous apporte une preuve supplémentaire de la compensation des écoulements induits par les effets de la force diffusive lorsque le dispositif expérimental est configuré en double propagation (la rupture de l'interface en goutte étant la signature de la présence d'un écoulement). Afin d'appuyer notre propos, nous avons reporté sur la figure 7.42 des comparaisons de morphologies de déformations d'interface liquide au–delà du seuil d'instabilité pour les deux configurations expérimentales (simple propagation descendante et double propagation).

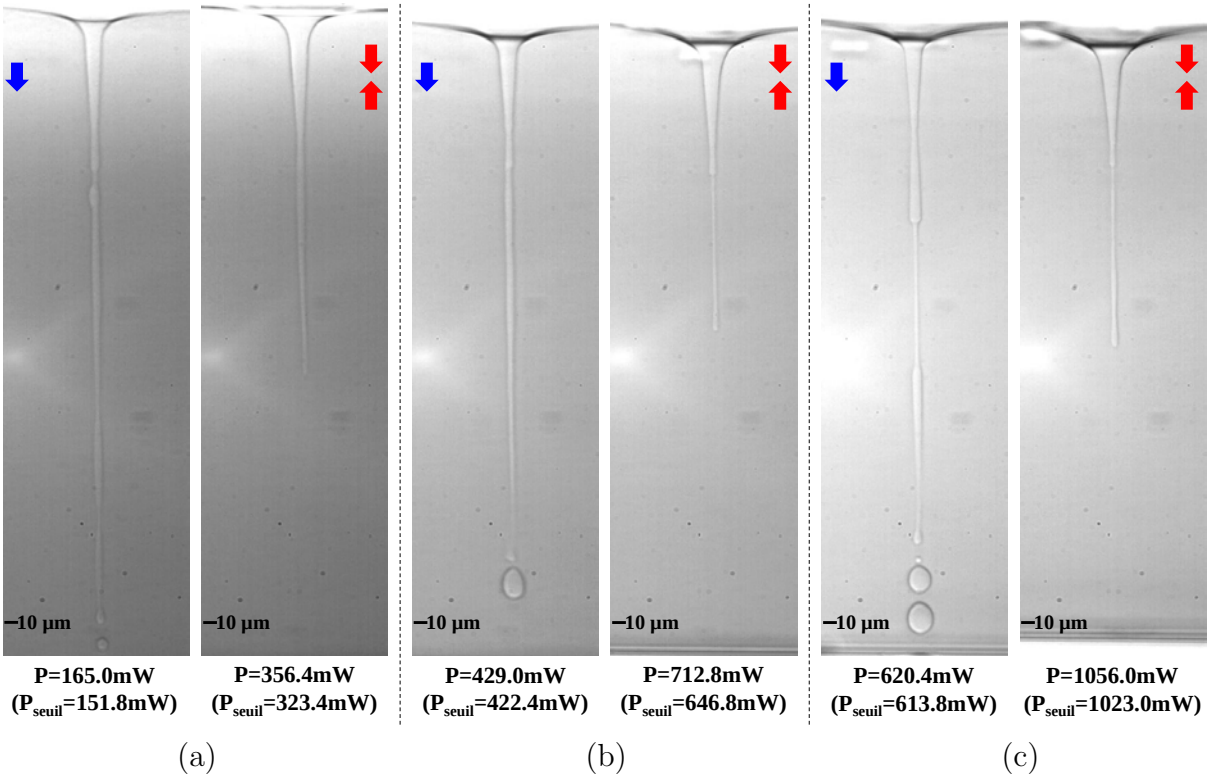


Fig. 7.42 – *Comparaison des morphologies adoptées par l'interface liquide au–delà de la puissance seuil d'instabilité suivant la configuration expérimentale choisie : simple propagation d'un faisceau laser descendant (flèche bleue dirigée vers le bas) ou double propagation (flèches rouges en sens opposé). Le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm. *(a)* $T - T_C = 1.5$ K. *(b)* $T - T_C = 5$ K. *(c)* $T - T_C = 10$ K. *(Les puissances lasers appliquées ainsi que les puissances seuil relatives à chaque configuration et chaque* $T - T_C$ *sont reportées sur les images.)*

En tout premier lieu, nous démontrons que l'instabilité observée en configuration simple propagation descendante est toujours viable lorsque le dispositif expérimental est réglé en configuration double propagation. Cette dernière configuration expérimentale étant à l'origine de la compensation des écoulements en volume générés, nous confirmons ainsi que l'instabilité d'interface n'est pas induite par la force diffusive, tout au moins pour $T - T_C \geq 1.5$ K. Cette conclusion n'est pas étonnante compte tenu des résultats présentés au chapitre 4 où la force diffusive n'était pas présente (les deux phases de l'échantillon diphasique étant transparentes) et où, pourtant, une instabilité d'interface, sensiblement similaire à celle observée ici en double propagation, était mise en évidence.

7.4.3 Influence des effets inhérents à la force diffusive sur les morphologies des déformations et sur l'instabilité d'interface mise en évidence

Nous venons de démontrer que la configuration du dispositif expérimental en double propagation nous permet d'annihiler les effets relatifs à la force diffusive. Par le biais de nombreuses comparaisons entre les résultats de cette configuration expérimentale et ceux présentés section 7.3 nous allons pouvoir évaluer l'influence des effets relatifs à la force diffusive sur les morphologie adoptées par l'interface liquide avant le seuil d'instabilité mais également sur l'instabilité d'interface observée tant au niveau du seuil que des objets liquides créés au–delà de ce seuil.

Influence des effets de la force diffusive sur les morphologies de déformations d'interfaces liquides avant le seuil d'instabilité

Lorsque la puissance laser est fixée, nous avons pu remarquer sur la figure 7.41 représentant l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser pour les deux configurations expérimentales étudiées (simple propagation descendante et double propagation) que la hauteur maximale de déformation présente une amplitude plus importante lorsqu'un seul faisceau intercepte l'interface liquide de façon descendante. Afin de confirmer cette observation, nous avons représenté sur la figure 7.43 une comparaison entre les profils de déformations stationnaires obtenus pour les deux configurations expérimentales à une puissance donnée ($P < P_{seuil}$).

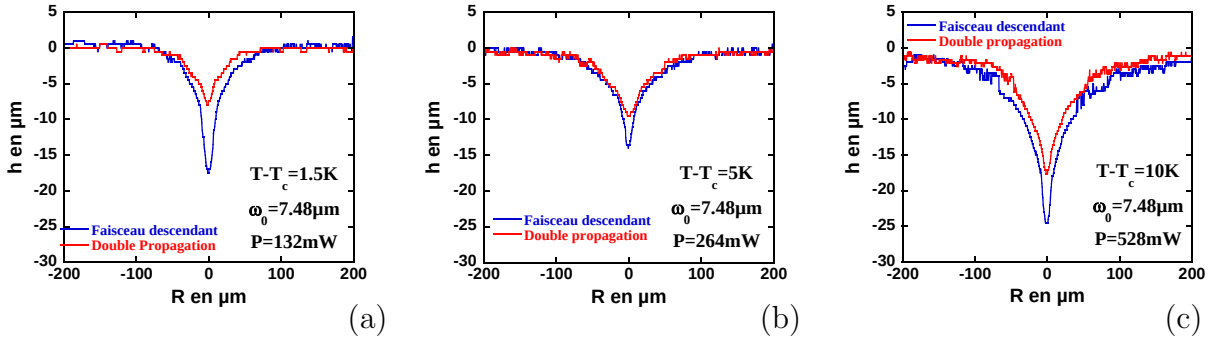


Fig. 7.43 – *Profils de déformations stationnaires de l'interface liquide de l'échantillon critique composé de phases micellaires de microémulsion régulé à différents écarts à la température critique. Comparaison entre les résultats issus d'une simple propagation d'un faisceau laser descendant (en bleu) avec les résultats obtenus en double propagation (en rouge). Dans les deux configurations expérimentales présentées, le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm *et* $P < P_{seuil}$. *(a)* $T - T_C = 1.5$ K, $P = 132$ mW. *(b)* $T - T_C = 5$ K, $P = 264$ mW. *(c)* $T - T_C = 10$ K, $P = 528$ mW.

La figure 7.43 confirme que l'amplitude des déformations stationnaires à puissance fixée ($P < P_{seuil}$) diffère entre les deux configurations expérimentales. D'autre part, nous pouvons remarquer une différence au niveau de l'extension radiale des profils de déformations. En effet, lorsque le dispositif expérimental est réglé de telle manière qu'un seul faisceau laser se propage de façon descendante, la largeur de la déformation est plus importante

qu'en double propagation. Les écoulements permanents établis au sein du fluide (générés par la diffusion de la lumière incidente) participent donc fortement à l'élargissement des « ailes » de la déformation.

À mesure que l'on s'éloigne de la température critique de l'échantillon, les profils de déformations stationnaires correspondants aux deux configurations expérimentales tendent à se superposer, les effets relatifs à la force diffusive devenant de moins en moins efficaces.

Ainsi, l'influence des effets de la force diffusive modifie de façon significative la morphologie des déformations stationnaires observées avant le seuil d'instabilité, tant au niveau de leur amplitude que de leur extension radiale, lorsque la température à laquelle l'échantillon est régulée est proche de sa température critique.

Comportement de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface en configuration double propagation

Nous avons vu section 7.3.2 que lorsque le dispositif expérimental est configuré en simple propagation descendante, l'angle maximal d'incidence au seuil d'instabilité sur l'interface est constant en fonction de $T - T_C$ et sa valeur est comprise entre 65° et 75°, c'est–à–dire bien inférieure à l'angle à la réflexion totale. Dans le cas présent où le montage optique est configuré de telle manière que deux faisceaux lasers contra–propageants interceptent l'interface liquide, le comportement de cet angle maximal d'incidence est–il modifié ?

Nous avons reporté sur la figure 7.44 les résultats de la mesure de l'angle maximal d'incidence en configuration double propagation. La figure 7.44 (a) représente l'évolution de cet angle maximal d'incidence à l'approche du seuil d'instabilité correspondant au dernier point de mesure présenté. L'insert de cette figure regroupe quelques profils de déformations stationnaires à l'approche du seuil. En parallèle, la figure 7.44 (b) décrit l'évolution de l'angle maximal d'incidence $\theta_{i\ max}$, lorsque la puissance laser est égale à la puissance seuil d'instabilité, en fonction de l'écart à la température critique. La valeur de $\theta_{i\ max}$ en double propagation est comparée à celle obtenue en simple propagation descendante et à la valeur de l'angle à la réflexion totale, θ_{RT}, pour ce système fluide.

Sur la figure 7.44 (a), l'angle d'incidence maximal augmente continuement en fonction de la puissance laser à l'approche du seuil d'instabilité. L'évolution de $\theta_{i\ max}$ en fonction de $T - T_C$ est présentée sur la figure 7.44 (b). Nous pouvons en déduire d'une part que $\theta_{i\ max}$ reste constant en fonction de $T - T_C$. Sa valeur est sensiblement la même qu'en simple propagation et est comprise entre 65° et 75°. En configuration double propagation, l'angle maximal d'incidence reste donc bien inférieur à l'angle à la réfexion totale θ_{RT}.

Ce changement de configuration expérimentale n'a donc vraisemblablement aucune influence sur le comportement de $\theta_{i\ max}$.

Caractérisation de la puissance seuil d'instabilité

À l'aide des graphiques représentés figure 7.41, il apparaît très clairement que la puissance seuil d'instabilité en configuration double propagation est plus élevée qu'en simple propagation descendante. Cet écart est d'autant plus important que l'écart à la température critique est faible.

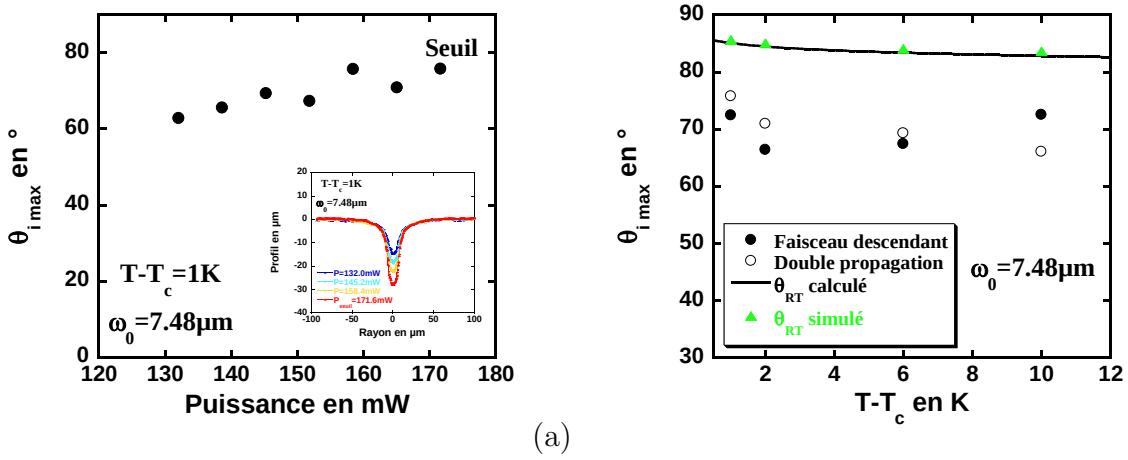


Fig. 7.44 – *(a) Évolution de l'angle maximal d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface déformée en fonction de la puissance laser lorsque le dispositif expérimental est réglé en double propagation. Le dernier point correspond à l'angle maximal d'incidence au seuil d'instabilité ($\theta_{i\ max} \sim 76$ °). Le système est régulé en température tel que $T - T_C = 1$ K et le rayon au col du faisceau laser est $\omega_0 = 7.48$ µm. Le graphique en insert représente l'évolution du profil de déformation stationnaire de l'interface liquide pour quelques puissances laser à l'approche du seuil d'instabilité. (b) Comportement de l'angle maximal d'incidence lorsque la puissance laser est égale à la puissance seuil d'instabilité en fonction de l'écart à la température critique $T - T_C$. Le rayon au col du faisceau est $\omega_0 = 7.48$ µm. Le trait plein correspond à l'évolution de l'angle à la réflexion totale θ_{RT} calculé analytiquement avec 7.14 et les triangles correspondent à θ_{RT} simulé avec notre code numérique.*

La figure 7.45 (a) représente l'évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction de l'écart à la température critique, suivant les deux configurations expérimentales.

L'ajustement des courbes expérimentales figure 7.45 (a) nous informent qu'en simple propagation d'un faisceau descendant, la puissance seuil d'instabilité se comporte comme :

$$P_{seuil} \propto (T - T_C)^{0.9}\,, \tag{7.16}$$

alors que lorsque deux faisceaux lasers contra–propageants interceptent l'interface liquide, on a :

$$P_{seuil} \propto (T - T_C)^{0.7}\,. \tag{7.17}$$

Sur la figure 7.45 (b) les symboles pleins représentent les résultats obtenus lors de simulations numériques pour une situation où la force diffusive et la pression de radiation agissent dans le même sens (ce qui correspond à l'expérience représentée par les symboles pleins de la figure 7.45 (a)) alors que les symboles creux représentent les résultats numériques obtenus en absence de force diffusive, lorsque seule la pression de radiation agit au niveau de l'interface liquide. Cette simulation s'apparente donc aux résultats expérimentaux en configuration double propagation, reportés par les symboles creux sur la figure 7.45 (a). Les lois de puissance obtenues pour ces simulations numériques sont les suivantes :

$$P_{seuil} \propto (T - T_C)^{0.89}\,, \tag{7.18}$$

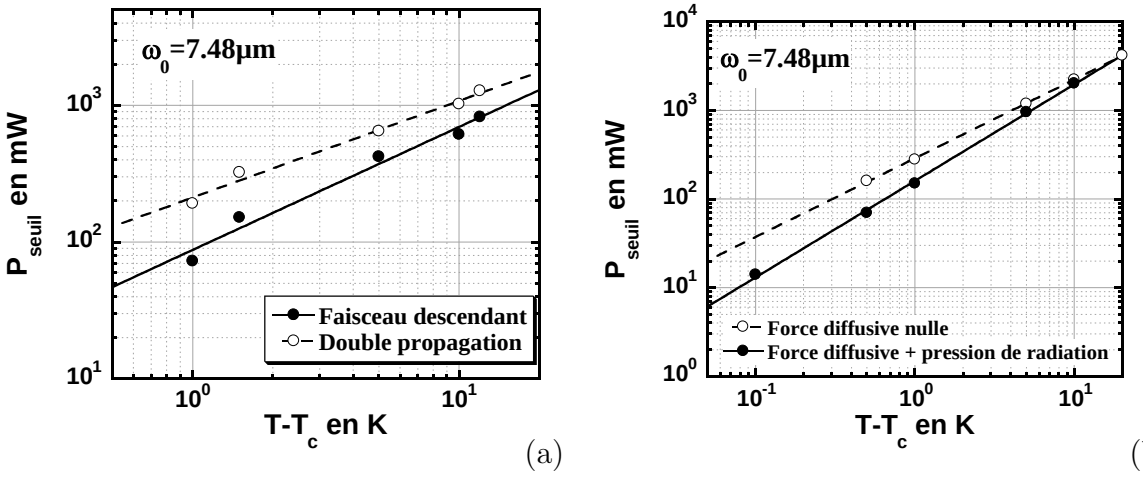


Fig. 7.45 – *(a) Évolution de la puissance seuil d'instabilité en fonction de l'écart à la température critique de l'échantillon. Les symboles pleins correspondent aux résultats présentés section 7.3.2 alors que les symboles creux sont les résultats issus des expériences réalisées en configuration double propagation. (b) Simulation numérique de la puissance seuil d'instabilité en fonction de* $T - T_C$*. Les symboles pleins correspondent à la prise en compte de la pression de radiation et de la force diffusive. Les symboles creux représente la simulation numérique réalisée en absence de force diffusive (seule la pression de radiation agit). Le rayon au col du faisceau laser est* $\omega_0 = 7.48$ µm*. Les traits plein et en pointillés sont les résultats d'un ajustement par une loi de puissance sur chaque série de données.*

dans le cas où la force diffusive et la pression de radiation sont pris en compte. Lorsque seule la pression de radiation agit, on a :

$$P_{seuil} \propto (T - T_C)^{1.09} . \tag{7.19}$$

Nous pouvons donc constater que nous retrouvons expérimentalement les comportements prédits numériquement. Dans tous les cas, la puissance nécessaire à la déstabilisation de l'interface liquide est supérieure en double propagation (ou en absence de force diffusive pour la simulation numérique). En revanche, les exposants obtenus sont légèrement différents entre expérience et simulation. Cette différence pourrait provenir du fait qu'en expérience, pour s'affranchir des effets de la force diffusive, nous configurons le dispositif expérimental en double propagation. Or, comme nous l'avons étudié précédemment (notamment au chapitre 4), les contributions de la pression de radiation suivant le sens de propagation ne sont pas d'une efficacité égale lorsque l'angle d'incidence est élevé (supérieur à 60°), ce qui est le cas au seuil d'instabilité.

Afin d'évaluer l'influence des effets relatifs à la force diffusive sur la puissance seuil d'instabilité, nous avons représenté sur la figure 7.46 l'évolution du rapport de la puissance seuil obtenue en double propagation par rapport à celle obtenue en simple propagation descendante en fonction de l'écart à la température critique (*i.e.* $P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}/P_{seuil}^{\downarrow}$ en fonction de $T - T_C$).

L'évolution de l'écart des puissances nécessaires à la déstabilisation de l'interface liquide entre les deux configurations expérimentales, présentée figure 7.46, démontre que

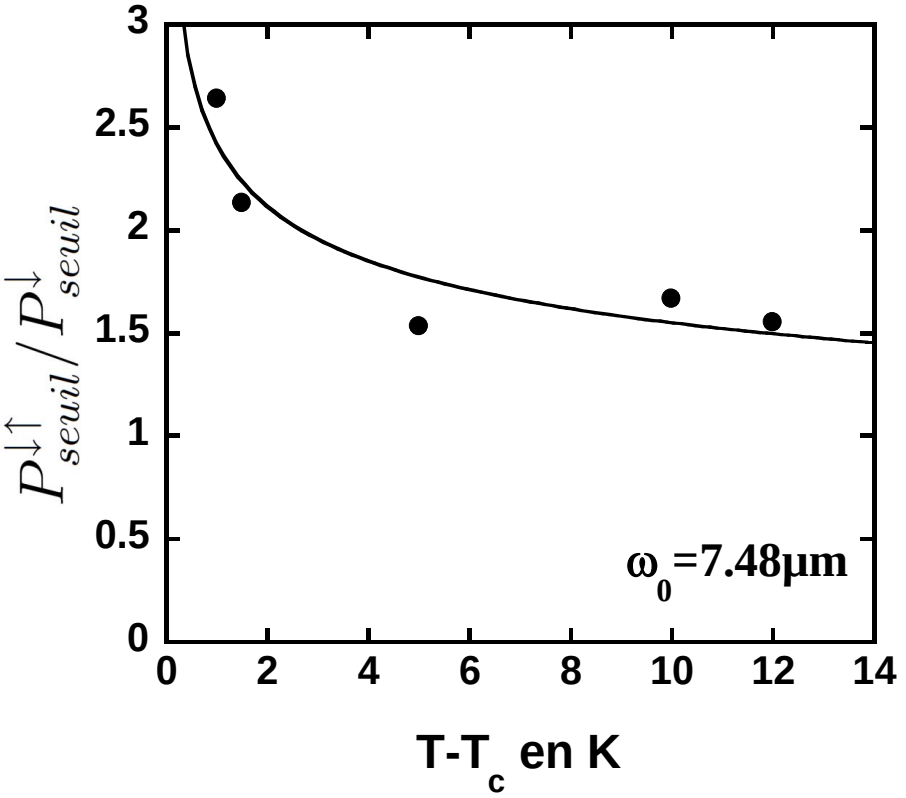


Fig. 7.46 – *Évolution du rapport $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}/P^{\downarrow}_{seuil}$ en fonction de $T - T_C$ pour $\omega_0 = 7.48$ µm. Le trait plein correspond à l'ajustement des données par une loi de puissance faisant apparaître que $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}/P^{\downarrow}_{seuil} \propto (T - T_C)^{-0.2}$.*

$P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}$ est beaucoup plus importante que $P^{\downarrow}_{seuil}$ à faible $T - T_C$ que lorsque l'écart à la température critique augmente. Ce comportement peut s'expliquer simplement par le fait que lorsque $T - T_C$ tend vers zéro, la tension interfaciale tend elle–même vers zéro telle que $\sigma \propto \left(\frac{T-T_C}{T_C}\right)^{1.26}$ et l'amplitude de la force de diffusion diverge. D'après la section 2.2, la force diffusive est directement proportionnelle à la suceptibilité osmotique isotherme χ_T de la microémulsion qui elle–même diverge à l'approche de la température critique de l'échantillon considéré. Les effets de la force diffusive sont donc exacerbés quand $T - T_C$ est petit et cela joue un rôle important lors de la déstabilisation de l'interface. En effet, le rapport $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}/P^{\downarrow}_{seuil}$ étant plus élevé à faible $T - T_C$, cela signifie que la force diffusive a une collaboration importante à la déstabilisation de l'interface (même si ses effets n'en sont pas le moteur).

À mesure que l'écart à la température critique augmente, le rapport $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}/P^{\downarrow}_{seuil}$ devrait donc diminuer et tendre vers une valeur proche de l'unité lorsque $T - T_C$ tend vers l'infini (où les effets relatifs à la force diffusive sont négligeables). Dans ce cas, nous devrions retrouver le comportement observé lors des expériences réalisées à l'aide du système fluide transparent dont les résultats sont regroupés dans le chapitre 4. Bien que nous ayons exploré des écarts à la température critique élevés (au–delà de $T - T_C = 15$ K), la déformation d'interface demeure sensible aux effets de la force diffusive, comme en témoigne la perpétuelle présence de l'émission de gouttes en bout de jet induit lorsque le montage

optique est configuré en simple propagation descendante. Ceci explique l'écart des deux puissances au seuil d'instabilité entre les deux configurations expérimentales, toujours significatif à $T - T_C = 12$ K (dans le cas présenté figure 7.45 (b)).

Néanmoins, la présence de cette force diffusive n'explique pas entièrement le décalage observé entre les puissances seuil des deux configurations. En effet, nous avons montré, au cours du chapitre 4, qu'il existait également un écart entre la puissance seuil en configuration simple propagation descendante par rapport à celle obtenue en double propagation, alors que le système utilisé ne diffusait pas la lumière et donc ne comportait pas de force diffusive. L'écart, certes faible, était égal à $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}/P^{\downarrow}_{seuil} = 1.126$ et donc nous devrions tendre vers cette valeur pour les grandes valeurs de $T - T_C$.

Cette valeur différente de l'unité peut être comprise du point de vue de l'action de la pression de radiation optique. En effet, comme nous l'avons introduit section 2.1, les contributions de la pression de radiation optique à la déformation d'interface suivant le sens de propagation de l'onde incidente ne se comportent pas de la même manière en fonction de l'angle d'incidence de l'onde excitatrice au niveau de l'interface liquide. Cette caractéristique est traduite graphiquement par la figure 7.47.

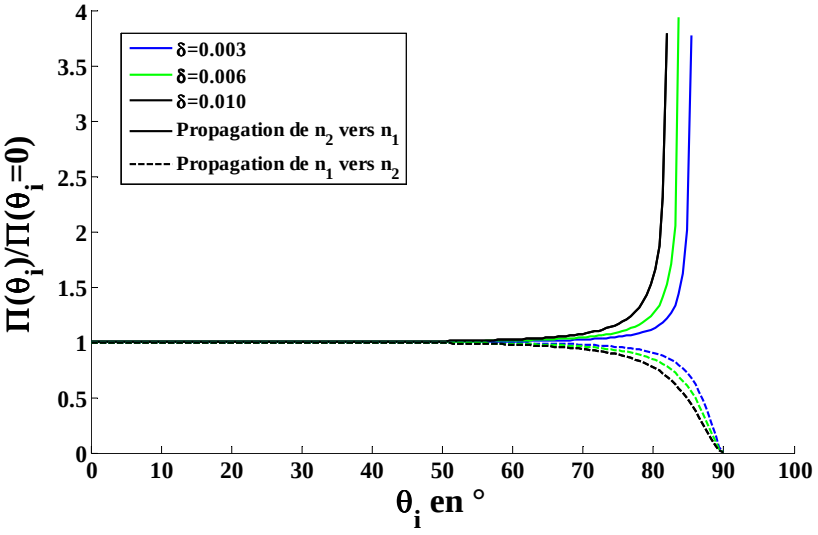


Fig. 7.47 – *Variation de la pression de radiation optique normalisée par sa valeur à incidence normale en fonction de l'angle d'incidence θ_i. Les deux sens de propagation sont représentés et les calculs sont réalisés pour notre système critique de phases micellaires de microémulsion présentant différents contrastes d'indices relatifs $\delta = \frac{n_2 - n_1}{n_2}$ ($\delta = 0.003$ correspond à $T - T_C = 1$ K, $\delta = 0.006$ correspond à $T - T_C = 10$ K et $\delta = 0.01$ correspond à $T - T_C = 50$ K). (n_2 est l'indice de réfraction de la phase 2 se situant au–dessus de la phase 1 d'indice de réfraction n_1 ($n_2 > n_1$))*

La représentation des différentes contributions de la pression de radiation optique suivant le sens de propagation, issue de calculs réalisés à partir des formules présentées section 2.1, nous permet de constater que jusqu'à un angle d'incidence assez élevé ($\theta_i \sim 60$ °), les contributions de la pression de radiation venant d'un faisceau se propageant de façon ascendante et celle d'un faisceau descendant sont comparables. Aux grands angles d'incidence, une dépendance angulaire des contributions de la pression de radiation intervient,

de plus en plus marquée à mesure que $T - T_C$ augmente. Ainsi, lorsque nous étudions le seuil d'instabilité en configuration double propagation, nous devons prendre en compte cette légère dépendance angulaire de la pression de radiation optique suivant le sens de propagation. Cela signifie que dans cette configuration expérimentale, la contribution de pression de radiation optique issue du faisceau laser se propageant de manière ascendante sera moins efficace que celle issue du faisceau laser se propageant en sens opposé (ceci étant vrai aux endroits de l'interface déformée où l'angle d'incidence est important). La pression de radiation optique étant directement proportionnelle à la puissance laser (section 2.1), il apparaît ainsi cohérent que $P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$ doit être légèrement supérieure à $P_{seuil}^{\downarrow}$ pour déstabiliser l'interface liquide. Cette remarque est également valable lorsque nous considèrons un système fluide transparent (système utilisé au chapitre 4).

Ce raisonnement permet ainsi d'expliquer à la fois l'écart des puissances seuil entre les deux configurations expérimentales, observé pour le système transparent du chapitre 4 ainsi que pour les résultats présentés dans cette section. Lorsque $T - T_C$ est grand (ici $T - T_C = 12$ K), notre sensibilité aux effets de la force diffusive associée à la légère dépendance angulaire des contributions de la pression de radiation optique aux angles d'incidences proches de $\theta_{i\ max}$ ($65\ ^\circ < \theta_{i\ max} < 75\ ^\circ$) implique une puissance seuil d'instabilité en configuration double propagation plus forte que celle nécessaire à la déstabilisation de l'interface en configuration simple propagation descendante (i.e. $P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}/P_{seuil}^{\downarrow} > 1$). D'autre part, lorsque l'écart à la température critique diminue, cette dépendance angulaire de la pression de radiation est toujours à prendre en compte (même si elle devient négligeable, l'angle au seuil étant compris entre 65° et 75°), mais aussi l'augmentation importante de l'amplitude de la force diffusive. La forte croissance du rapport $P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}/P_{seuil}^{\downarrow}$ proche de la température critique est donc expliqué par l'intervention de ces deux caractéristiques.

Nous venons ainsi de caractériser en détail le seuil d'instabilité lorsque le dispositif expérimental est configuré en double propagation. Les différentes comparaisons réalisées entre cette configuration expérimentale avec les résultats obtenus lorsque le montage optique ne délivre qu'une seule onde incidente se propageant de manière descendante nous ont permis d'évaluer l'influence des effets de la force diffusive sur le seuil d'instabilité.

7.4.4 Influence des effets relatifs à la force diffusive sur les cycles d'hystérésis observés en simple propagation descendante

En section 7.3.3, nous avons également mis en évidence l'existence d'un cycle d'hystérésis traduisant le caractère sous–critique de l'instabilité observée. Il apparaît donc naturel d'effectuer cette recherche de bistabilité dans la configuration expérimentale utilisé ici (illumination de l'interface liquide par deux faisceaux lasers contra–propageants).

Comme nous l'avons intuité au cours du bilan de la section précédente (section 7.3.4), la bistabilité observée en simple propagation descendante, traduite par l'existence d'un cycle d'hystérésis serait le résultat de la manière dont l'interface liquide est déstabilisée. En effet, nous faisons l'hypothèse que l'instabilité observée résulte d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation engendrée par celle–ci. La déformation d'interface liquide ayant un effet en retour sur la propagation de l'onde dans la déformation.

Si tel est le cas, nous devrions retrouver ce phénomène d'hystérésis en puissance lorsque nous configurons le dispositif expérimental en double propagation. La figure 7.48 représente deux images expérimentales de la déformation de l'interface liquide pour une même puissance telle que $P < P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$, mais obtenue de deux manières différentes (la puissance est appliquée continuement au niveau de l'interface soit de manière croissante ou de manière décroissante).

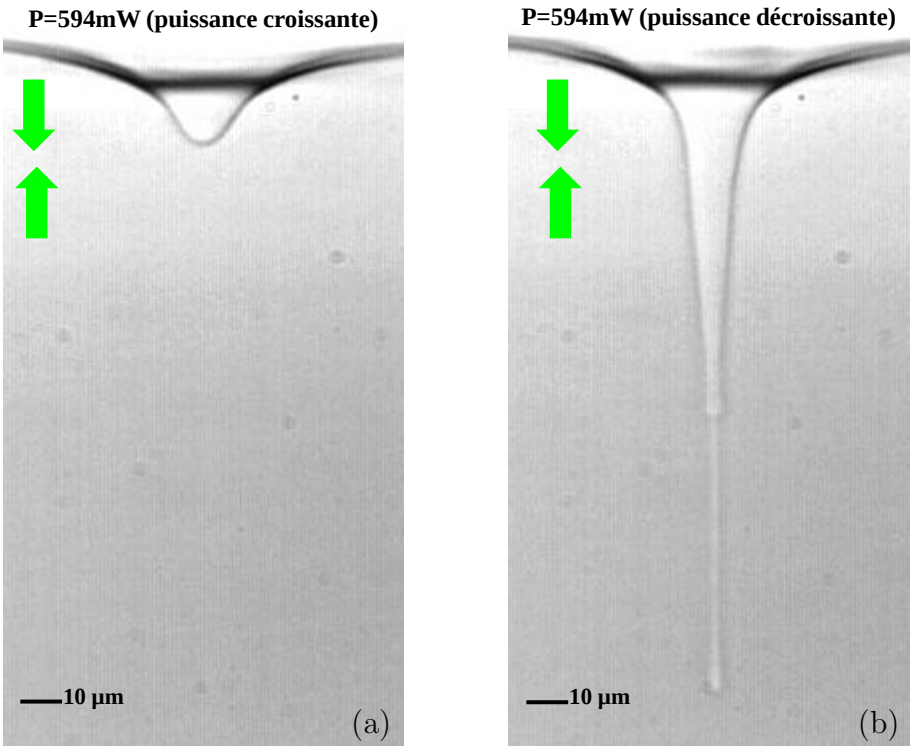


Fig. 7.48 – *Allure de la déformation d'interface liquide lorsque le dispositif est réglé en configuration double propagation (le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm*). Le système critique est régulé en température tel que* $T - T_C = 5$ K *(*$P_{seuil} = 646.8$ mW*). (a) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 594.0$ mW *délivrée de manière croissante. (b) Déformation obtenue pour une puissance laser* $P = 594.0$ mW *délivrée de manière décroissante.*

Tout comme en configuration simple propagation descendante (section 7.3.3), il est possible d'obtenir deux morphologies stationnaires différentes de la déformation de l'interface liquide pour une puissance laser inférieure au seuil d'instabilité suivant la manière dont cette puissance est appliquée au niveau de l'interface liquide. La figure 7.48 (a) représente la déformation d'interface obtenue lorsque nous appliquons la puissance $P = 594$ mW $< P_{seuil}^{\downarrow\uparrow}$ de manière croissante, alors que la figure 7.48 (b) correspond à la déformation obtenue lorsque cette même puissance est délivrée de manière décroissante, alors que l'instabilité de l'interface est déjà établie. Lors de l'évolution de la hauteur de déformation de l'interface liquide en fonction de la puissance laser, un cycle d'hystérésis est alors toujours présent même lorsque les effets relatifs à la force diffusive sont compensés dans chaque phase de l'échantillon critique. Ainsi, sans surprise, les effets de la force diffusive n'ont pas d'influence sur l'existence de cette bistabilité caractéristique. En revanche, comme nous allons l'étudier par la suite, cette force joue un rôle non négligeable sur les objet liquides créés.

La figure 7.49 regroupe une comparaison des cycles d'hystérésis de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance (croissante et décroissante) entre les deux configurations expérimentales pour trois écarts à la température critique différents ($T - T_C = 1.5$ K, $T - T_C = 5$ K et $T - T_C = 10$ K).

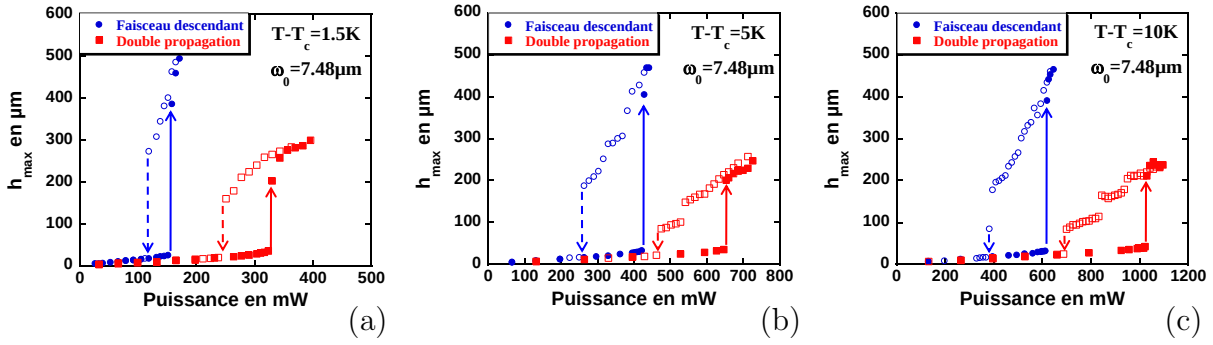


Fig. 7.49 – *Mise en évidence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance délivrée de manière croissante et décroissante au niveau de l'interface liquide. Les ronds bleus correspondent aux résultats présentés section 7.3.3 où un seul faisceau laser se propage de façon descendante alors que les carrés rouges représentent la configuration double propagation. Le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm. *Les symboles pleins correspondent à une variation croissante de la puissance laser et les symboles creux à une variation décroissante de la puissance au niveau de l'interface. (a)* $T - T_C = 1.5$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 151.4$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 323.4$ mW. *(b)* $T - T_C = 5$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 422.4$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 646.8$ mW. *(c)* $T - T_C = 10$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 613.8$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 1023.0$ mW. *(Les flèches, représentées sur chaque graphique, indiquent de manière schématique le sens de variation de la puissance laser.)*

À l'aide de la comparaison des évolutions de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser, dont l'existence d'un cycle d'hystérésis est indiscutable, présentée figure 7.49, nous apprécions les différences de comportements entre les deux configurations expérimentales considérées. L'amplitude des déformations (pour une puissance laser inférieure ou bien supérieure à la puissance seuil d'instabilité) est bien plus importante en simple propagation descendante qu'en double propagation.

Toutefois, afin d'évaluer un ou plusieurs comportements significatifs ainsi que l'influence de la force diffusive sur ces évolutions en fonction notamment de l'écart à température critique, nous avons retracé ces différentes évolutions en fonction de la puissance laser normalisée à la puissance seuil d'instabilité, relative à chaque configuration. Cette modification d'échelle permet de superposer les cycles d'hystérésis de chaque $T - T_C$ et de pouvoir les interpréter plus facilement. Cette représentation particulière est exposée sur la figure 7.50 pour tous les écarts à la température critique que nous avons utilisé au cours de nos expériences.

Lorsque l'évolution de la hauteur de déformation est représentée en fonction de la puissance laser normalisée à la puissance seuil correspondant à chaque configuration expérimentale (figure 7.50), l'influence des effets dus à la force diffusive apparaît très clairement. En effet, l'évolution des cycles d'hystérésis en fonction de l'écart à la température critique nous permet d'observer les fortes différences d'amplitudes des objets liquides créés lorsque $T - T_C$ est faible. À mesure que $T - T_C$ augmente, les cycles d'hystérésis correspondant

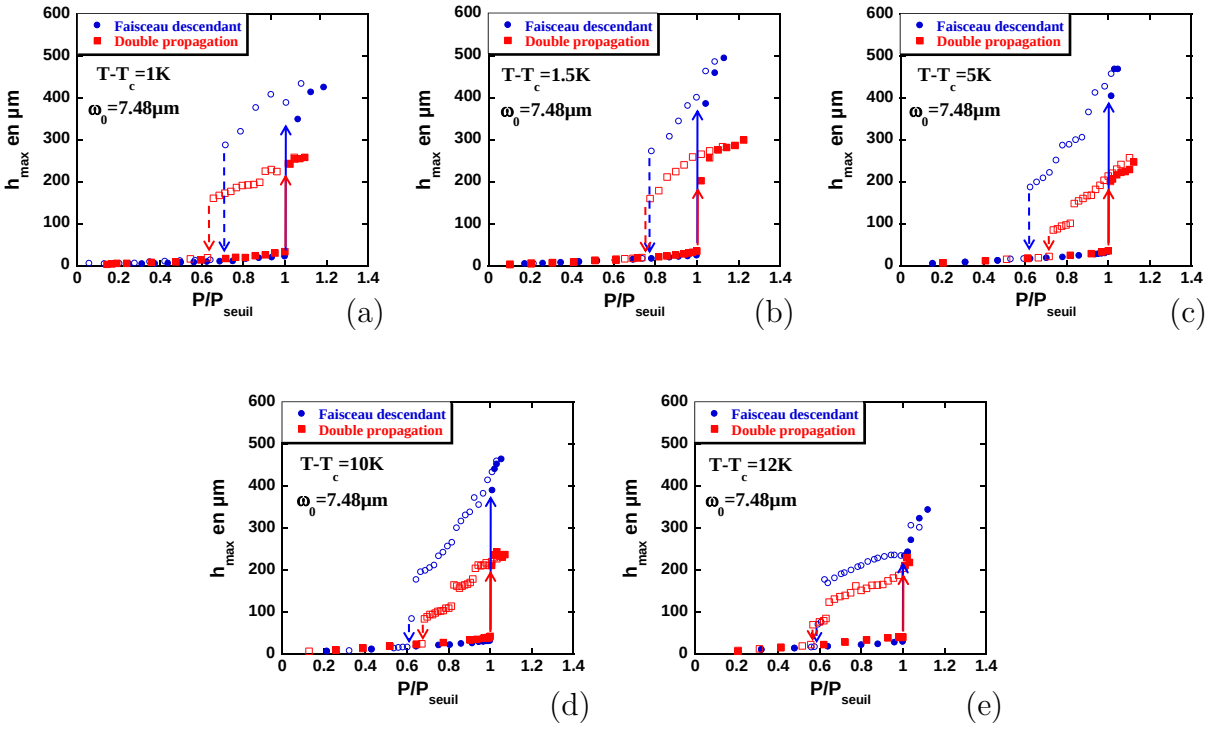


Fig. 7.50 – *Comparaison des différents cycles d'hystérésis obtenus lors de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser normalisée à chaque puissance seuil d'instabilité relative aux différentes configurations du dispositif expérimental (ronds bleus : simple propagation descendante et carrés rouges : double propagation). Le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm. *Les symboles pleins correspondent à une variation croissante de la puissance laser et les symboles creux à une variation décroissante de la puissance au niveau de l'interface. (a)* $T - T_C = 1$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 72.6$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 191.4$ mW. *(b)* $T - T_C = 1.5$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 151.4$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 323.4$ mW. *(c)* $T - T_C = 5$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 422.4$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 646.8$ mW. *(d)* $T - T_C = 10$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 613.8$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 1023.0$ mW. *(e)* $T - T_C = 12$ K, $P^{\downarrow}_{seuil} = 825.0$ mW *et* $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil} = 1280.4$ mW.

à chaque configuration expérimentale tendent à se superposer (en terme d'amplitude). Or, lorsque l'écart à la température critique augmente, l'amplitude de la force diffusive devient de plus en plus faible (mais est toujours significative lors de nos expérience même à grand $T - T_C$).

Ainsi, nous pouvons conclure que proche de la température critique de l'échantillon, les effets relatifs à la force diffusive (écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu) participent fortement à l'allongement des objets liquides induits.

D'autre part, comme nous pouvons le remarquer sur la figure 7.50, la largeur relative des cycles d'hystérésis suivant les deux configurations expérimentales ne semble pas être affectée par l'action de la force diffusive lors de la déformation de l'interface liquide. En revanche, une légère dépendance de cette largeur relative de cycle d'hystérésis apparaît en $T - T_C$ comme cela est décrit par la figure 7.51. La largeur relative du cycle d'hystérésis est définie comme étant la différence entre la puissance seuil d'instabilité P_{seuil} (en simple ou en double propagation) et la puissance seuil décroissante pour laquelle le jet liquide (en

configuration simple propagation) ou l'aiguille liquide (en double propagation) disparaît, notée ici $P_{\downarrow}$, divisée par la puissance seuil d'instabilité : $(P_{seuil} - P_{\downarrow})/P_{seuil}$.

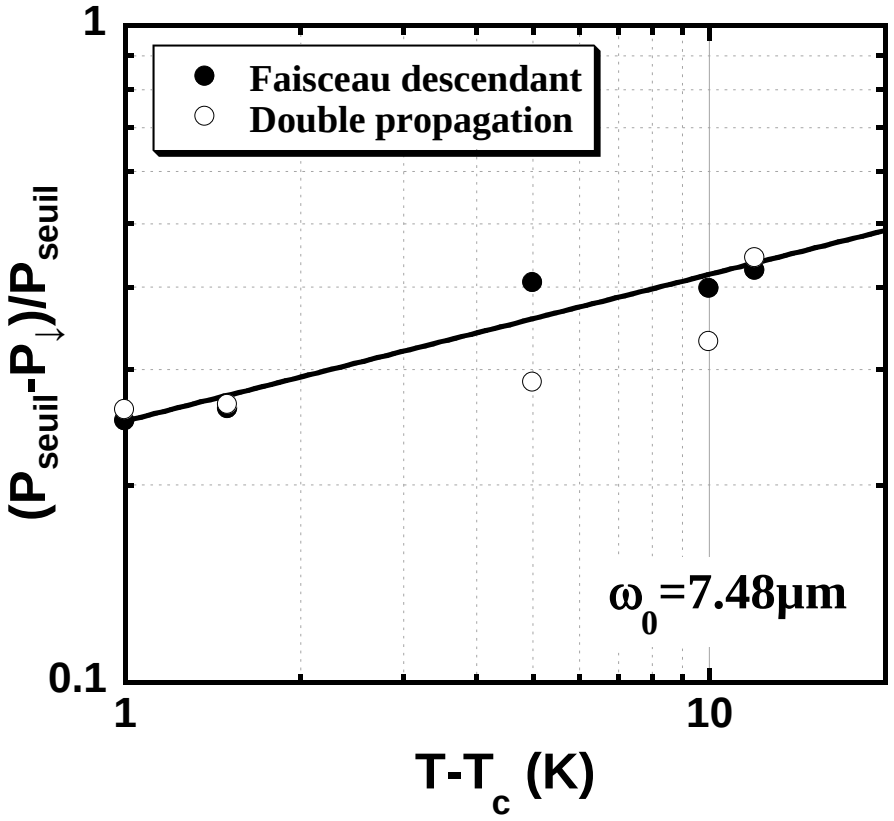


Fig. 7.51 – *Évolution de la largeur relative du cycle d'hystérésis en fonction de l'écart à la température critique. Les symboles pleins représentent les résultats obtenus lorsque le dispositif expérimental est réglé en configuration simple propagation descendante et les symboles creux correspondent à la double propagation. Le rayon au col du faisceau laser est* $\omega_0 = 7.48$ µm. *Le trait plein correspond à un ajustement en loi de puissance des points expérimentaux montrant une légère dépendance de la largeur relative des cycles d'hystérésis en* $T - T_C$ *telle que :* $(P_{seuil} - P_{\downarrow})/P_{seuil} \propto (T - T_C)^{0.22}$.

Comme le démontre la figure 7.51, il est clair qu'en présence ou en absence de force diffusive, la largeur des cycles d'hystérésis ne subit pas de modification lorsque $T - T_C$ est fixé. Cependant, une légère dépendance de la largeur du cycle d'hystérésis est observable lorsque l'écart à la température critique croît, comme en témoigne le trait plein de la figure 7.51 correspondant à l'ajustement des points expérimentaux par une loi de puissance telle que :

$$\frac{(P_{seuil} - P_{\downarrow})}{P_{seuil}} \propto (T - T_C)^{0.22} . \tag{7.20}$$

Ainsi, nous avons pu évaluer l'influence des effets inhérents à la force diffusive tant sur l'instabilité d'interface liquide observée que sur la morphologie des objets liquides créés. Nous pouvons en conclure que proche de la température critique de l'échantillon considéré, la force diffusive joue un rôle essentiel lors de la déstabilisation de l'interface liquide. La participation de la force diffusive permet ainsi de déstabiliser l'interface liquide pour des puissances lasers plus faibles que lorsque ses effets sont compensés. D'autre part,

les écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu induisent des changements de la morphologie des déformations d'interfaces obtenues. En effet, en présence de force diffusive, les profils de déformations stationnaires avant le seuil d'instabilité sont à la fois d'extension radiale plus importante et d'amplitude légèrement plus grande qu'en son absence. Enfin, lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide est supérieure à la puissance seuil d'instabilité, les effets de la force diffusive allongent fortement les objets liquides créés et conduisent systématiquement à la rupture de l'interface en gouttes liquides (en bout de jet), ce qui n'est pas le cas lorsque les effets de la force diffusive sont compensés dans chaque phase de l'échantillon diphasique.

7.4.5 Bilan

Au cours de cette section, nous avons présenté les résultats obtenus lorsque l'interface liquide de notre échantillon critique, composé de phases micellaires de microémulsion, est illuminée par deux faisceaux lasers contra–propageants. La motivation principale d'une telle investigation reposait sur une étude approfondie de l'influence des effets de la force diffusive sur les déformations d'interfaces liquides observées ainsi que sur l'instabilité mise en évidence section 7.3. En effet, nous faisions l'hypothèse qu'une telle configuration expérimentale nous permettrait de compenser les effets relatifs à la force diffusive dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique (*i.e.* compensation des écoulements permanents établis au sein du fluide par l'intermédiaire du transfert de quantité de mouvement existant entre l'onde incidente et le milieu environnant, par diffusion élastique des photons). Ainsi, en compensant les effets de la force diffusive et en comparant les résultats avec ceux obtenus section 7.3, nous serions en mesure d'évaluer leur(s) influence(s).

Nous avons tout d'abord démontré que lorsque le montage optique délivre, au niveau de l'interface liquide de l'échantillon critique, deux faisceaux lasers contra–propageants (de puissance totale P et de rayon au col du faisceau ω_0 identiques), il est tout à fait possible de compenser en moyenne les effets dus à la force diffusive.

Les résultats obtenus dans cette configuration expérimentale ont été comparé, à maintes reprises, à ceux issus de la section 7.3. Nous avons pu, dans un premier temps, apprécier le fait que l'allure générale de l'évolution de la hauteur de déformation en fonction de la puissance laser est sensiblement similaire à celle obtenue en simple propagation descendante. En effet, différents régimes de déformations sont accessibles lorsque la puissance laser croît. Après un régime linéaire de déformation, le comportement de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance dévie de ce comportement linéaire en un régime non–linéaire conclu par un saut de la hauteur de déformation pour une puissance particulière appelée puissance seuil d'instabilité. Il a donc été démontré, sans surprise, que la déstabilisation de l'interface était toujours réalisable au–delà d'une certaine puissance seuil, même en abscence de force diffusive. L'objet liquide créé lorsque $P > P_{seuil}$ est apparenté à une « aiguille liquide » qui ne produit aucune goutte en son bout et qui ne gonfle pas, nous confirmant que les écoulements en volume générés par la force diffusive sont plutôt bien compensés dans chaque phase de l'échantillon diphasique par cette configuration expérimentale.

L'influence des effets inhérents à la force diffusive a pu être évaluée sur ces différents

régimes de déformations en faisant notamment ressortir que lorsque la puissance laser est fixée, la hauteur maximale de déformation obtenue en double propagation est d'amplitude moindre que lorsqu'une seule onde incidente se propage de façon descendante. D'autre part, l'extension radiale de la déformation est également affectée par la présence d'écoulements en volume (en simple propagation décroissante) qui tendent, proche de la température critique de l'échantillon, à élargir les « ailes » de la déformation [63]. Ces deux caractéristiques traduisent l'influence de la force diffusive tant sur l'amplitude et l'extension radiale des objets liquides créés avant le seuil d'instabilité lorsque l'écart à la température critique est faible. À mesure que l'on s'éloigne de la température critique, les effets de la force diffusive sont de moins en moins perceptibles et les différences de morphologies des déformations d'interfaces stationnaires, suivant les configurations expérimentales étudiées, s'estompent.

Une étude particulière a été dédiée au seuil d'instabilité. Nous avons démontré à nouveau que l'angle d'incidence maximale de l'onde excitatrice au niveau de l'interface est constant en fonction de l'écart à la température critique et que sa valeur, comprise entre 65° et 75° (inférieure à l'angle à la réflexion totale), correspond à celle obtenue dans le cadre d'une simple propagation descendante. Il n'y a donc aucun effet dû à la force diffusive concernant ce point de vue. En revanche, nous avons montré que le comportement de la puissance seuil d'instabilité en fonction de $T - T_C$ différait suivant la configuration expérimentale et que la puissance nécessaire à la déstabilisation de l'interface en double propagation (ou en absence de force diffusive lors de la prédiction numérique) est toujours plus importante que lorsque la pression de radiation optique et la force diffusive agissent dans le même sens. Nous avons caractérisé cet écart de puissances seuil par l'intermédiaire de l'étude de l'évolution du rapport $P^{\downarrow\uparrow}_{seuil}/P^{\downarrow}_{seuil}$ en fonction de $T - T_C$. Lorsque le système critique est régulé en température proche de sa température critique, la puissance seuil en double propagation est nettement plus importante qu'en simple propagation. Nous avons tenté de résoudre ce problème à l'aide de l'influence des effets de la force diffusive, exacerbés proche de la température critique mais aussi en prenant en compte les comportements différents, suivant le sens de propagation de l'onde incidente, des contributions de la pression de radiation optique en fonction de l'angle d'incidence de l'onde excitatrice. Par ce raisonnement, nous avons pu expliquer de manière qualitative les écarts de puissances nécessaires à la déstabilisation de l'interface liquide.

Enfin, nous avons confirmé l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser (croissante et décroissante). L'existence de cette bistabilité n'est donc pas remise en cause en absence de force diffusive (conclusion attendue compte tenu des expériences réalisées sur des fluides transparents au chapitre 4), ce qui semble nous conforter dans l'hypothèse que l'instabilité sous–critique observée résulte d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation engendrée, elle–même ayant un effet sur la propagation de l'onde. Les effets de la force diffusive jouent un rôle essentiel sur l'amplitude des objets liquides créés (permettant un allongement important de ceux–ci) mais la largeur relative des cycles d'hystérésis observés n'est pas affectée, exhibant une très faible dépendance en $T - T_C$.

7.5 Conclusion

Tout au long de ce chapitre expérimental, nous avons exposé les différents résultats obtenus à l'aide d'un système fluide composé de phases micellaires de microémulsion.

Ce système fluide a la particularité de nous procurer un contrôle total à la fois sur la tension interfaciale et sur l'amplitude de la force diffusive, présente dans les deux phases l'échantillon critique diphasique (annexe A.2). Cette recherche vient donc naturellement compléter les études présentées au cours des chapitres précédents (chapitre 4 et chapitre 6) où la force diffusive était soit absente ou bien uniquement présente dans l'une des deux phases de l'échantillon.

Les échantillons critiques utilisés, contôlés en température, sont ainsi une alternative intéressante à l'étude des effets de la pression de radiation optique et des effets relatifs à la force diffusive, induits par une onde électromagnétique. Nous avons étudié les multiples réponses du système fluide à l'excitation suivant différentes configurations expérimentales.

Tout d'abord, une étude a été réalisée lorsque l'onde incidente, issue d'un laser Nd^{3+}–YAG doublé en fréquence possédant une longueur d'onde dans le vide de $\lambda_0 = 532$ nm, se propage depuis le milieu le moins réfringent et donc intercepte l'interface liquide de manière ascendante. Dans cette section, notre intérêt s'est exclusivement porté sur les déformations que subit l'interface liquide induites par les effets relatifs à la force diffusive.

Différents régimes de déformations ont été mis en évidence et détaillés. Des comparaisons fructueuses entre les résultats expérimentaux et des simulations numériques, prenant en compte à la fois les effets de la pression de radiation optique ainsi que les effets dus à la force diffusive, dans le régime linéaire de déformation ont été reportées. Dans ce même régime de déformation, nous avons réalisé une étude décrivant l'évolution temporelle de la déformation d'interface. Nous avons ainsi démontré que l'« épaulement » de la bosse de déformation induite par les effets diffusifs est le bon endroit pour caractériser les effets relatifs à la force diffusive sur les déformations d'interfaces liquides engendrées. Le temps caractéristique associé à ces effets diffusifs est indépendant du rayon au col du faisceau, témoignant d'un effet non local et est de l'ordre de $\tau_{diff} \sim 0.5$ s. Les temps caractéristiques relatifs à la pression de radiation optique et à la force diffusive sont assez proches l'un de l'autre et il est donc difficile de dissocier les deux effets. Ceci nous informe qu'il existe vraisemblablement un couplage entre ces deux effets, même lorsque l'interface est faiblement déformée. Enfin, la relaxation lente de la dynamique, aux temps longs, n'est pas prédite numériquement et, pour l'heure, n'est pas expliquée.

Par la suite, nous avons mis en évidence l'existence d'une instabilité particulière au–delà d'un seuil en puissance laser. L'instabilité d'interface liquide observée est le fruit des contraintes visqueuses engendrées au niveau de l'interface liquide par les écoulements induits par la force diffusive. Il en résulte une déstabilisation de l'interface et l'émergence d'un jet liquide, parallèle à l'axe de propagation de l'onde incidente, émettant des gouttes liquides. Par cette observation expérimentale, nous confirmons donc la prédiction numérique réalisée au cours du chapitre 5 ainsi que l'observation réalisée au chapitre 6 où seulement une des deux phases en coexistence de l'échantillon diffusait la lumière incidente. Le seuil d'instabilité a été caractérisé, notamment en fonction du rayon au col du faisceau ω_0 et de l'écart à la température critique $T - T_C$. Cette caractérisation du seuil d'instabilité nous a également permis d'en déduire un comportement unique de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser.

Enfin, une étude préliminaire des jets liquides induits par les effets de la force diffusive a été présenté (évolution des rayons de jets liquides induits, mesures du débit des jets liquides induits).

Suite à cette section, nous avons opéré un changement de configuration expérimentale permettant d'illuminer l'interface liquide depuis la voie haute du dispositif expérimental. Cette section avait pour objet de présenter une collection de résultats expérimentaux confirmant des études déjà réalisées par le passé ([51, 63, 81–83]). Ceci nous a permis d'obtenir une base de résultats significatifs de l'action conjuguée de la pression de radiation optique et de la force diffusive afin de procéder à une comparaison lors de la dernière section où les effets relatifs à la force diffusive ont été compensés. Il fut ainsi envisageable d'étudier l'influence de la force diffusive lors des déformations et instabilités d'interfaces liquides engendrées.

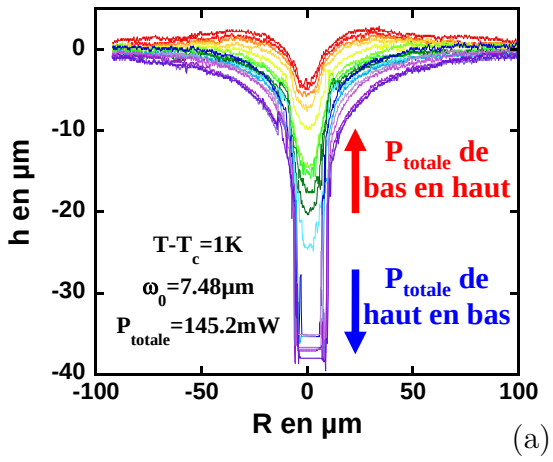
À nouveau, nous avons caractérisé les différents régimes de déformations accessibles via une variation de la puissance laser appliquée au niveau de l'interface liquide. Une instabilité d'interface a également été mise en évidence. Au–delà d'une puissance seuil, l'interface liquide est déstabilisée et il en résulte l'émergence d'un jet liquide centré sur l'axe de propagation de l'onde incidente. Le seuil d'instabilité fut caractérisé en fonction de l'écart à la température critique montrant la cohérence entre nos résultats et ceux présents dans la littérature [82]. L'instabilité d'interface observée est de type sous–critique et nous avons démontré l'existence d'un cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser (croissante et décroissante). Cette caractéristique nous renseigne sur la nature de l'instabilité qui semble résulter d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface engendrée, cette dernière ayant une certaine rétroaction sur la propagation de l'onde. Ceci n'est pour le moment qu'une hypothèse faisant l'objet de travaux numériques en cours de réalisation au sein de notre équipe.

Pour cloturer ce chapitre expérimental, nous avons à nouveau effectué un changement de configuration expérimentale. Le réglage du montage optique en configuration double propagation implique que l'interface liquide de l'échantillon critique n'est plus interceptée par un seul faisceau laser mais illuminée par deux faisceaux lasers contra–propageants de même puissance et de rayon au col du faisceau identique. Cette configuration expérimentale nous a permis de démontrer qu'il est possible d'annihiler les effets relatifs à la force diffusive. En effet, par cette double propagation, nous pouvons compenser les écoulements induits par la diffusion de la lumière dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique.

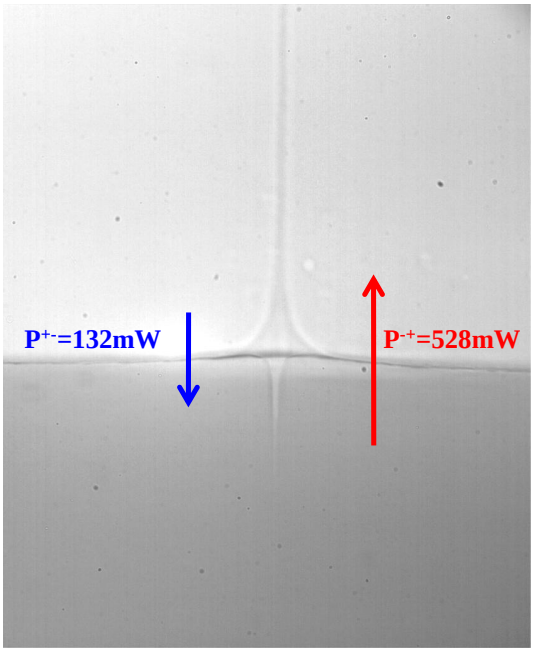
Grâce à cette étude, nous avons pu évaluer, dans un grand nombre de situations différentes, l'influence des effets relatifs à la force diffusive. Nous en avons notamment conclu que la force diffusive joue un rôle essentiel sur la déformation d'interface lorsque l'échantillon est régulé en température proche de sa température critique. Les effets de cette force volumique participent essentiellement à l'allongement et à l'extension radiale des objets liquides créés tant avant qu'après le seuil d'instabilité.

La déstabilisation de l'interface ayant toujours lieu en absence de force diffusive, nous confirmons que cette force n'est en aucun cas le moteur de l'instabilité d'interface observée pour $T - T_C \geq 0.5$ K, mais elle apporte sa contribution lorsque l'écart à la température critique, $T - T_C$, est faible. Enfin, la bistabilité, traduite par le cycle d'hystérésis lors de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance laser, observée au cours de la section précédente est conservée et n'est nullement altérée par les effets de la force diffusive.

En réalité, nous nous sommes appesantis sur les cas extrêmes, à savoir le cas où l'action de la force diffusive est maximale et celui où elle devient négligeable. En faisant varier les puissances respectives des faisceaux ascendant et descendant (voir chapitre 3), rien ne nous interdit de moduler ce rapport de puissance à loisir de manière à faire varier indépendamment l'amplitude des effets dus aux forces diffusives et à la pression de radiation. La figure 7.52 (a) en donne une illustration. Enfin, pour des rapports de puissances judicieusement choisis, il est possible d'induire à la fois un jet liquide dirigé vers le bas et centré sur l'axe du faisceau laser et un jet liquide vers le haut, décalé par rapport à l'axe de propagation de l'onde incidente. Ceci est démontré par la figure 7.52 (b).



(a)



(b)

Fig. 7.52 – *(a) Évolution du profil de l'interface déformée en fonction de la variation de la puissance laser dans chaque bras du dispositif expérimental réglé en configuration double propagation.* $T - T_C = 1$ K, $\omega_0 = 7.48$ µm *et la puissance totale est* $P = 145.2$ mW. *(b) Image expérimentale illustrant la possibilité d'induire à la fois un jet liquide vers le bas, centré sur l'axe du faisceau laser et un jet liquide vers le haut décalé par rapport à l'axe de propagation de l'onde incidente. La puissance totale appliquée est de* $P = 660$ mW *et 80% de cette puissance totale est dévolu à l'émergence du jet liquide vers le haut et 20% de la puissance totale permet d'induire le jet vers le bas. Le rayon au col du faisceau est* $\omega_0 = 7.48$ µm.

Conclusion et perspectives

Les travaux de recherche effectués au cours de cette thèse ont porté sur la manipulation et la déformation d'interfaces liquides soumises à l'action d'une onde laser continue à l'aide de systèmes fluides présentant des tensions interfaciales extrêmement faibles. Alors que par le passé, la participation des effets de la pression de radiation optique à la déformation d'une interface liquide a été étudiée en détail, nous avons apporté une avancée significative dans ce domaine en considérant également la diffusion de l'onde électromagnétique dans des milieux turbides.

Nous avons notamment pu mettre en évidence un nouveau mécanisme d'instabilité de jet liquide induit par les écoulements en volume générés par la diffusion de la lumière dans les fluides considérés.

Nous avons tout d'abord évalué au chapitre 2 les différentes contraintes susceptibles de participer à la déformation d'une interface liquide molle par une onde électromagnétique. En absence d'écoulement, le contraste d'indice de réfraction existant entre les deux phases liquides en coexistence conduit à une force surfacique. Celle–ci, appelée pression de radiation optique, agit au niveau de l'interface séparant deux milieux diélectriques de constante diélectrique différente et est toujours dirigée depuis le milieu le plus réfringent vers le milieu le moins réfringent quelque soit le sens de propagation de l'onde incidente. Dans un second temps, nous avons mis en exergue, qu'en présence d'inhomogénéités spatiales d'indice de réfraction dans un milieu considéré, comme néanmoins isotrope, le transfert de quantité de mouvement de la lumière vers le fluide environnant conduit à une force diffusive en volume. Celle–ci est à l'origine de la mise en place d'écoulements permanents au sein du fluide, le mettant en mouvement. Au voisinage d'une interface molle, les contraintes visqueuses associées aux écoulements en volume peuvent entraîner la déformation de celle–ci dans le sens de propagation de l'onde excitatrice.

Fort de l'identification de ces différentes contraintes susceptibles d'intervenir au niveau de l'interface liquide du système considéré, nous avons par la suite étudié la conjugaison de ces deux effets, pression de radiation optique et force diffusive, aux déformations d'interfaces liquides observées.

Le chapitre 3 nous a permis de présenter et de détailler les différentes fonctionnalités de notre dispositif expérimental ainsi que sa modularité. Trois configurations expérimentales différentes ont été exposées (faisceau laser ascendant, descendant et configuration double propagation), lesquelles ont été utilisées systèmatiquement dans la suite de nos expérimentations. Nous avons également au cours de ce chapitre exposé brièvement la modélisation numérique utilisée au cours de cette thèse et fait un tour d'horizon des différents systèmes fluides employés ; ces systèmes sont décrits en détail en annexe A.

Compte tenu du fait que tous les systèmes utilisés dans ce travail de recherche présentaient un contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides en présence, les effets de la pression de radiation optique participaient inexorablement aux déformations d'interfaces liquides observées. Afin d'établir une base de résultats et de comportements significatifs lorsque seuls les effets de la pression de radiation optique agissent au niveau de l'interface liquide, le premier chapitre expérimental de ce mémoire (chapitre 4) fut consacré à l'étude de la réponse à l'excitation d'un système fluide transparent à la longueur d'onde utilisée.

Dans un premier temps, nous avons mis en évidence, lorsque l'onde incidente se propage de façon ascendante, l'existence de plusieurs régimes de déformations en fonction de la puissance laser appliquée. Suite à un régime linéaire de déformation, pour lequel la hauteur de la bosse de déformation se comporte linéairement avec P, l'évolution de $h_{max}(P)$ dévie de ce comportement linéaire et nous observons une certaine complexification des déformations obtenues (apparition de formes de type « tétines liquides »). Dans un second temps, lorsque l'onde excitatrice se propage de manière descendante, les effets de la pression de radiation optique agissent dans le sens de propagation du faisceau laser. Nous avons mis en exergue la déstabilisation de l'interface liquide lorsque la puissance laser est supérieure à une puissance seuil d'instabilité, notée P_{seuil}, laquelle se comporte linéairement avec ω_0. L'instabilité obtenue s'apparente à une « aiguille liquide » qui n'émet pas de goutte en son bout et qui ne gonfle pas dans le temps, prouvant ainsi l'absence d'écoulement. Par une étude de l'angle maximal d'incidence ($\theta_{i\ max}$) de l'onde excitatrice au niveau de l'interface déformée au seuil d'instabilité, nous avons démontré que la réflexion totale que pourrait subir l'onde incidente n'est pas responsable de la déstabilisation observée car $\theta_{i\ max} < \theta_{RT}$. Nous avons mis en évidence l'existence d'un cycle d'hystérésis de l'évolution de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance. Le mécanisme régissant l'instabilité est donc complexe et semble résulter d'un fort couplage entre la propagation de l'onde incidente et la déformation d'interface, cette dernière agissant à son tour sur la propagation de l'onde. Enfin, nous avons configuré le dispositif expérimental en double propagation pour lequel deux faisceaux lasers contra–propageants, de même puissance et rayon au col du faisceau, interceptent l'interface liquide. Nous avons montré que le changement de configuration expérimentale n'affecte pas les morphologies adoptées par l'interface liquide déformée. En revanche, bien que l'instabilité mis en évidence précédemment, est toujours observable en double propagation, la puissance laser nécessaire à la déstabilisation de l'interface est un peu plus forte en double propagation. Cette différence de puissance seuil est expliquée à travers la faible dépendance angulaire des différentes contributions de la pression de radiation en fonction de l'angle d'incidence et suivant le sens de propagation.

Suite à ce chapitre expérimental où seuls les effets de la pression de radiation optique participaient à la déformation d'interfaces liquides molles, nous avons dédié le chapitre 5 à l'étude de l'influence des effets de la force diffusive aux déformations observées expérimentalement. Pour ce faire, nous avons procédé à diverses modélisations numériques à l'aide d'un code développé au sein de notre équipe permettant d'avoir un contrôle total sur l'amplitude de la force diffusive et sur sa participation dans l'une ou les deux phases de l'échantillon diphasique considéré. Nous avons donc pu nous affranchir des effets de la pression de radiation (qui rappelons–le sont toujours présents en expérience). Par ce biais, nous avons établi un certain nombre de prédictions numériques et notamment l'existence

d'une instabilité d'interface, uniquement induite par les écoulements en volume générés par la diffusion de l'onde incidente dans le milieu turbide. Il a été démontré numériquement que lorsque l'amplitude de la force diffusive dépasse un certain seuil, l'interface se déstabilise et nous pouvons observer l'émergence d'un jet liquide dirigé dans le sens de propagation de l'onde incidente. De plus, ce mécanisme d'instabilité d'interface fut mis en évidence quelque soit la configuration choisie, à savoir une seule phase turbide ou deux phases liquides diffusantes.

Cette prédiction numérique fondamentale étant établie, nous avons procédé à sa vérification expérimentale dans les chapitres suivants. Pour commencer, nous avons considéré au chapitre 6 un système fluide présentant une phase diffusante en coexistence avec une phase transparente. Lorsque le faisceau laser indicent se propage depuis le milieu le moins réfringent vers le milieu le plus réfringent, la pression de radiation est dirigée en sens en opposé et nous sommes donc en mesure d'étudier l'influence de la force diffusive aux déformations d'interfaces engendrées. Nous avons démontré, à travers une approche phénoménologique compte tenu de l'exploitation complexe des images expérimentales, l'existence d'une instabilité d'interface uniquement induite par les écoulements en volume dont la diffusion de la lumière en est l'origine, appuyant ainsi expérimentalement la prédiction numérique réalisée précédemment. Le jet liquide résultant est produit dans le sens de propagation de l'onde incidente et décalé radialement par rapport à l'axe du faisceau car l'indice de réfraction du milieu constitutif du jet est plus faible que celui du milieu environnant.

Par la suite nous avons configuré le dispositif expérimental de manière à ce que l'onde incidente se propage en sens opposé. Dans ce cas, les effets de la pression de radiation optique ainsi que ceux inhérents à la force diffusive sont dirigés dans le même sens (correspondant au sens de propagation de l'onde excitatrice). Nous avons montré que lorsque $P > P_{seuil}$, l'interface se déstabilise et forme un jet liquide, centré sur l'axe de propagation de l'onde incidente. À nouveau, nous avons mis en exergue le comportement linéaire de la puissance seuil en fonction du rayon au col du faisceau, semblant être caractéristique de cette instabilité quelque soit le système fluide considéré. La bistabilité de l'instabilité d'interface, mise en évidence au chapitre 4, est également retrouvée lorsqu'une seule phase liquide est diffusante nous confortant dans notre hypothèse de fort couplage entre la propagation de l'onde et la déformation d'interface.

Enfin, la configuration du montage optique en double propagation nous a permis de montrer que la puissance nécessaire au déclenchement de cette instabilité est plus élevée en double propagation et l'écart relatif $P_{seuil}^{\uparrow\downarrow}/P_{seuil}^{\uparrow}$ est plus important que celui obtenu au chapitre 4. Nous en avons donc conclu qu'au–delà des différentes contributions angulaires de la pression de radiation au niveau de l'interface, l'influence des effets relatifs à la force diffusive était non négligeable. Ceux–ci participent fortement à la déformation et au déclenchement de l'instabilité, induisant un allongement significatif des objets liquides créés au–delà du seuil d'instabilité.

Ce chapitre fut également l'occasion d'effectuer un rapprochement, tout du moins phénoménologique, entre l'instabilité d'interface induite par les effets de la force diffusive et celle que l'on peut observer dans des expériences de type entraînement visqueux.

Le dernier chapitre expérimental de ce mémoire (chapitre 7) vient naturellement compléter les travaux précédents par l'étude de la conjugaison des effets de la pression de radiation et des effets relatifs à la force diffusive lorsque ceux–ci agissent dans les deux

phases liquides de l'échantillon diphasique considéré. Le système particulier utilisé est composé de phases micellaires de microémulsion au voisinage d'un transition de phase du second ordre. Le contrôle thermique de l'échantillon nous permet d'avoir une maîtrise totale des amplitudes de la tension interfaciale et de la force diffusive.

Lorsque l'onde incidente se propage depuis le milieu le moins réfringent, nous avons à nouveau mis en évidence différents régimes de déformations. Dans le régime linéaire de déformation, à la fois des simulations numériques, prenant en compte les effets de la pression de radiation et ceux de la force diffusive, furent réalisées avec succès et une étude temporelle de la dynamique des déformations observées a été présentée. Cette dernière nous a permis de prouver que l'« épaulement » de la déformation induite par les effets diffusifs est le meilleur endroit pour caractériser la dynamique des déformations d'interfaces d'origine diffusive. Le temps caractéristique relatif à ces effets est de l'ordre de $\tau_{diff} \sim 0.5$ s et est indépendant de ω_0. Nous avons également montré que ce temps caractéristique est relativement proche de celui correspondant à la pression de radiation et il peut donc être expérimentalement difficile de décorréler les deux effets, traduisant l'existence d'un fort couplage entre pression de radiation et force diffusive. Enfin, la relaxation lente de la dynamique aux temps longs, n'est pas prédite numériquement et, pour le moment, n'est pas expliquée.

Lorsque la puissance laser devient importante au niveau de l'interface, nous avons démontré que l'interface liquide se déstabilise pour $P > P_{seuil}$ confirmant ainsi la prédiction numérique réalisée au chapitre 5 lorsque les deux phases liquides sont diffusantes. L'instabilité observée résulte des contraintes visqueuses agissant au niveau de l'interface et associées aux écoulements en volume induits par la force diffusive dans chacune des phases. Nous observons donc l'émergence d'un jet liquide dans le sens de propagation de l'onde incidente et décalé radialement par rapport à l'axe de propagation. Nous avons caractérisé le seuil d'instabilité en fonction de ω_0 et de l'écart à la température critique $T - T_C$. Nous avons ainsi mis en exergue l'existence d'un comportement unique de la hauteur maximale de déformation en fonction de la puissance lorsque le comportement au seuil d'instabilité est pris en compte. Enfin, nous avons réalisé une étude préliminaire des rayons et débits des micro–jets induits.

Ensuite, le dispositif expérimental fut configuré afin que l'onde incidente se propage depuis le milieu le plus réfringent vers le moins réfringent. Dans cette partie, nous avons principalement confirmé les résultats obtenus dans le passé par A. Casner lors de sa thèse [51]. Nous avons ainsi établi une base de résultats significatifs qui ont été testés en configuration double propagation dans la suite. Par ce biais, nous avons pu étudier précisémment les effets de la force diffusive participant notamment à l'instabilité « classique » d'interface liquide mise en évidence en configuration simple propagation descendante (jet liquide induit dans l'axe de propagation de l'onde excitatrice ; pression de radiation et force diffusive agissant dans le même sens) et à sa bistabilité caractéristique. Nous avons démontré que lorsque l'interface liquide est interceptée par deux faisceaux lasers contra–propageants, de puissance et de rayon au col du faisceau identiques, il est possible de compenser les écoulements en volume induits par la diffusion de la lumière dans chaque phase de l'échantillon critique diphasique. Nous avons évalué que la force diffusive participe fortement à l'allongement et à l'extension radiale des déformations d'interfaces observées lorsque l'échantillon critique est régulé proche de sa température critique. Comme nous avons démontré l'existence de cette instabilité en absence de force diffusive (au chapitre 4), cette dernière n'est en aucun cas le moteur de l'instabilité mais

apporte une contribution non négligeable à son déclenchement lorsque l'écart à la température critique est faible (*i.e.* la tension interfaciale devient très faible et les effets diffusifs sont exacerbés). Enfin la bistabilité caractéristique relative à cette instabilité d'interface n'est nullement remise en cause lorsque les effets diffusifs sont compensés.

Finalement nous avons apporté une démonstration expérimentale de la possiblité de moduler à loisir l'amplitude des effets de la force diffusive, indépendemment des effets de la pression de radiation, dans chaque phase de l'échantillon lorsque le montage optique est configuré en double propagation.

Ces travaux de recherche fondamentale ont suscité de nouvelles perspectives, à court et moyen terme, mais ont également soulevé plusieurs questions :

- Nous avons souligné l'importance du couplage entre la propagation de l'onde excitatrice et la déformation d'interface liquide. Afin d'appuyer notre hypothèse qui semble être pertinente quelque soit le système fluide considéré, nous avons besoin à court terme de développer des outils numériques prenant en compte ce couplage. Ceci est déjà en cours de réalisation au sein de notre équipe de recherche.
- Un travail approfondi concernant l'évolution dynamique des déformations d'interfaces liquides observées est à mettre en œuvre afin d'expliquer la relaxation lente de la dynamique aux temps longs, observée expérimentalement.
- L'étude expérimentale de l'influence des effets de la force diffusive à la déformation d'interfaces liquides en absence de pression de radiation optique nécessite un important travail de recherche de systèmes fluides adéquats. Trois démarches s'offrent à nous pour nous affranchir des effets de la pression de radiation (qui rappelons–le dépend du contraste d'indice de réfraction entre les deux phases en coexistence). D'une part, il faudrait trouver un système fluide diphasique dont les indices optiques sont égaux, présentant une très faible tension interfaciale et diffusant la lumière. Deuxièmement, nous pouvons adapter un système déjà utilisé dans cette thèse mais il faut définir un protocole permettant d'égaliser les indices (ceci a déjà été tenté sur des phases de Winsor à base de n–dodécane, par adjonction de sucrose, sans résulat probant). Enfin, une troisième possibilité consisterait à développer un contrôle thermique au millikelvin de l'échantillon critique utilisé au cours de nos travaux. Ceci permettrait de faire tendre le contraste d'indice vers zéro mais aurait pour inconvénient de rendre les images expérimentales totalement inexploitables !
- Nous avons démontré au cours du chapitre 6 une certaine concordance phénoménologique entre l'instabilité de jet liquide induite par les écoulements en volume générés dans l'une des deux phases liquides par les effets diffusifs avec les expériences d'entraînement visqueux. En effet, nous pourrions imaginer les écoulements en volume ainsi induits comme un effet non local consistant à « aspirer » l'interface, la déformant jusqu'à la déstabiliser. Si l'on considère maintenant une situation pour laquelle les écoulements en volume « poussent » l'interface liquide, on pourrait retrouver un comportement de type fontaine capillaire. Cette expérience a été réalisée numériquement, en absence de pression de radiation, au chapitre 5. Nous avons démontré que la déformation d'interface évolue à nouveau vers une situation instable. Ceci reste donc à confirmer expérimentalement.
- La surprenante (et contre–intuitive) indépendance du débit des micro–jet liquides, induits par les écoulements en volume générés par la force diffusive, en fonction de la puissance laser mériterait d'être confirmée ou infirmée par d'autres séries d'expé-

riences.

Nous conclurons ce travail de recherche par une part d'« exotisme » ! En effet, à travers les diverses études réalisées sur les systèmes fluides utilisés dans ce mémoire, l'un d'eux nous a particulièrement intrigué par ses réponses, pour le moins suprenantes, à une excitation laser « extrême » (ceci étant bien entendu relatif aux limitations de notre dispositif expérimental).

Lorsque nous considérons le système fluide que nous avons qualifié de « référence », au chapitre 4, composé d'une phase aqueuse en coexistence avec une phase huile, toutes deux transparentes, nous avons mis en évidence l'existence d'une instabilité d'interface, lorsque l'onde incidente se propage depuis le milieu le plus réfringent. Pour $P > P_{seuil}$, nous obtenons ainsi une aiguille liquide. En fonction du rayon au col du faisceau utilisé et sous forte excitation laser, il est possible de générer une multitude d'aiguilles liquides, toutes prenant naissance au sommet d'un cône liquide dont l'angle est constant en puissance. La figure 7.53 présente l'évolution de la déformation d'interface lorsque la puissance laser appliquée au niveau de l'interface augmente.

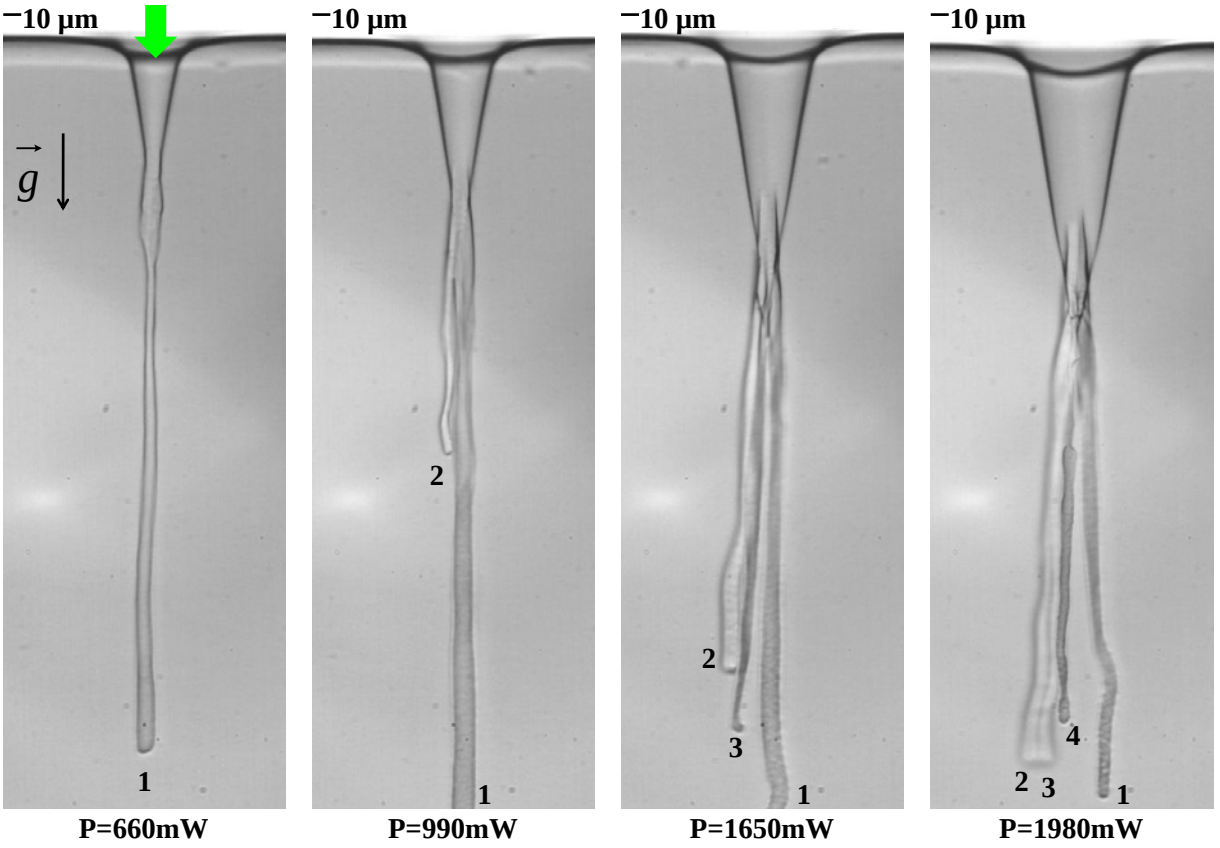


FIG. 7.53 – *Évolution de la déformation d'interface liquide induite lorsque la puissance laser augmente fortement. L'onde incidente, de rayon au col du faisceau* $\omega_0 = 10.31$ µm, *se propage de façon descendante. Mise en évidence de l'apparition de « multi–aiguilles liquides » à mesure que la puissance laser augmente. La numérotation des différentes aiguilles liquides tient compte de l'ordre dans lequel elles sont observées.*

Ce nouveau phénomène physique n'est observable que sous certaines conditions de rayon au col du faisceau et de puissance. En effet, il apparaît, d'après nos expériences,

que l'observation de ces formes complexes est d'autant plus aisé que le rayon au col du faisceau est grand. De même, l'apparition des ces multi–aiguilles semble obéir à des seuils en puissance comme cela est présenté par la figure 7.54.

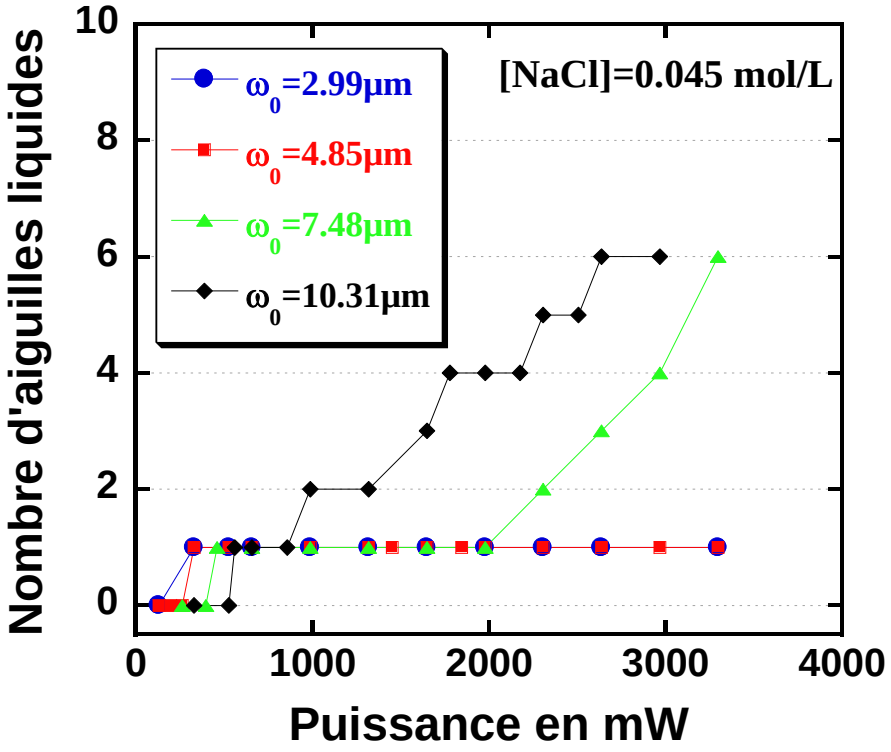


Fig. 7.54 – *Évolution du nombre d'aiguilles liquides induites en fonction de la puissance laser et pour différents rayons au col du faisceau. L'onde incidente se propage de façon descendante.*

La détérioration rapide des échantillons au cours de ces expériences, compte tenu de la forte intensité laser appliquée, ne nous a pas permis de développer davantage l'étude de ce nouveau type d'instabilité d'interface liquide mais celui–ci mérite à l'évidence qu'on lui consacre un travail à part entière.

Annexe A

Systèmes fluides utilisés et leurs propriétés

Dans cette annexe, nous détaillons les différents systèmes fluides utilisés lors de cette thèse. L'utilisation de ces différents systèmes a été motivé à la fois par la recherche d'échantillons présentant de très faibles tensions interfaciales et par la présence et la modularité de la force diffusive (que nous avons présenté en section 2.2). Nous pouvons séparer les systèmes fluides utilisés en deux parties distinctes. D'une part, les phases de Winsor nous permettent de s'affranchir de cette force diffusive ou d'en contrôler l'importance dans l'une ou l'autre des phases liquides de l'échantillon. D'autre part, les fluides critiques, par leur contrôle précis en température, apportent un grande modularité de l'amplitude de cette force diffusive (présente cette fois dans les deux phases de l'échantillon).

A.1 Phases de Winsor

A.1.1 Généralités

Les phases de Winsor sont des mélanges liquides composés d'eau salée (saumure), d'huile et d'un surfactant. Elles ont été décrites dans les années 1940 par P. A. Winsor [75].
Si le surfactant présente une balance hydrophile – hydrophobe (HLB : *Hydrophilic – Lipophilic Balance*, en anglais) importante, alors il se solubilise essentiellement dans la phase eau. En revanche si le surfactant présente une HLB faible, il se solubilise principalement dans la phase huile. En variant la concentration en sel du mélange (pour des surfactants ioniques), il est possible de rencontrer différents équilibres de phases de Winsor. En effet, à faible salinité, on obtient un équilibre diphasique entre une phase microémulsion composée de micelles directes (huile dans l'eau) et une phase huile en excès nommé équilibre de Winsor I. Pour les fortes salinités, une phase microémulsion constituée de micelles inverses (eau dans l'huile) et une phase aqueuse en excès est obtenu et est appelé équilibre de Winsor II. Enfin, pour des salinités intermédiaires, il existe un régime dit régime de Winsor III où le surfactant est aussi soluble dans la phase aqueuse que dans la phase huile. Ce régime présente donc trois phases en coexistence : une phase riche en surfactants avec de part et d'autre de celle–ci un excès de la phase huile et de la phase aqueuse.
La nature de la phase microémulsion ainsi obtenue dépend des propriétés élastiques du film de surfactants. En particulier, la nature de la microémulsion dépend de la courbure

spontanée de la monocouche de surfactants c_0 (contrôlée par les interactions stériques et les répulsions électrostatiques pour des surfactants ioniques).
L'association des molécules tensioactives en solution résulte d'une compétition entre l'attraction hydrophobe des chaînes aliphatiques et les répulsions ioniques des têtes polaires. Cette compétition permet de fixer une surface optimale par tête polaire des molécules amphiphiles a_0. On peut ainsi définir l'association des molécules tensioactives en fonction de paramètres géométriques tels que la surface optimale par tête polaire a_0, la longueur de la chaîne aliphatique L_c et le volume de la molécule V. Il est alors aisé d'en déduire un nombre sans dimension appelé « paramètre de forme » exprimé comme : $\frac{V}{a_0 L_c}$, dont le résultat permet de décrire le type de phase de microémulsion obtenu [91, 92].
Lorsque ce paramètre de forme est tel que : $\frac{V}{a_0 L_c} < \frac{1}{3}$, $c_0 \gg 0$, des micelles sphériques directes (huile dans l'eau) sont obtenues (figure A.1 (a)). En revanche, lorsque $\frac{V}{a_0 L_c} > 1$, $c_0 \ll 0$, nous obtenons des micelles inverses (eau dans l'huile) (figure A.1 (b)). Enfin, quand le paramètre de forme vaut $\frac{V}{a_0 L_c} \sim 1$, la courbure spontanée s'annule $c_0 \sim 0$ et différentes morphologies de phases peuvent être obtenues : phases lamellaires L_α (figure A.1 (c)), microémulsions bicontinues ou encore des phases L_3 dite *phases éponges* (figure A.1 (d)) [93].

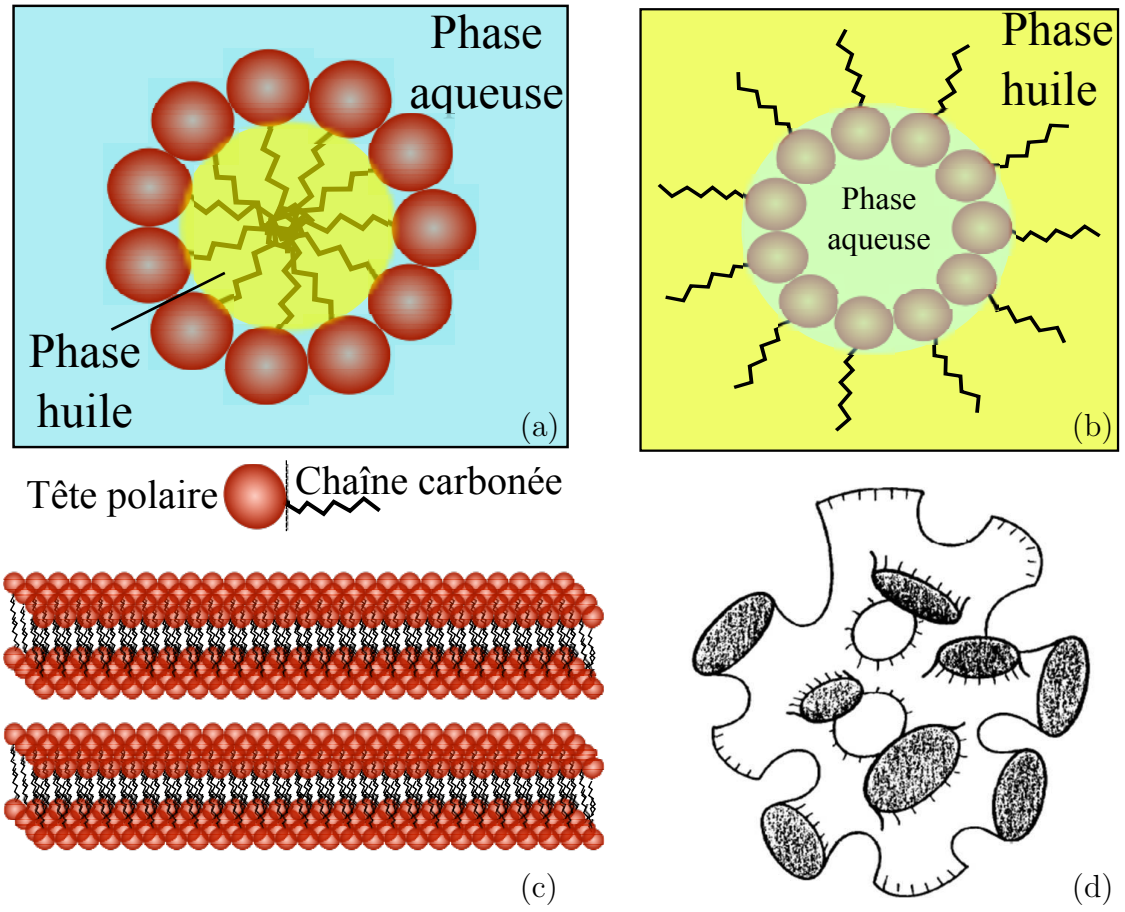


FIG. A.1 – *Représentation schématique des différents types de phases riches en surfactant dans des systèmes eau/huile. (a) Micelle directe (huile–dans–eau), (b) micelle inverse (eau–dans–huile), (c) phase lamellaire L_α et (d) phase L_3 (phase éponge, figure extraite de [93])*

Dans notre étude, nous nous intéressons à un système modèle composé de phases liquides en équilibre. L'obtention de ces phases s'effectue en mélangeant une solution aqueuse salée (dont la concentration en sel variera) avec une solution d'un alcane dans laquelle est dilué un surfactant anionique, l'AOT (sodium bis–(2–ethylhexyl) sulfosuccinate). La longueur de la chaîne carbonée de l'alcane linéaire sera ajustée suivant les propriétés recherchées (comme nous le verrons par la suite). Ce mélange est thermalisé à 20°C. Juste après la mise en contact de ces deux solutions, le mélange devient laiteux (émulsion opaque) et donne progressivement naissance à différentes phases en équilibre (en fonction de la salinité de chaque échantillon). Le temps nécessaire à l'équilibre de tels échantillons dépend à la fois de la concentration en sel et de la longueur de la chaîne carbonée de l'alcane utilisé. Typiquement, pour les alcanes les plus courts, ce temps est de l'ordre de un à plusieurs mois, alors que pour des alcanes comportant une longue chaîne carbonée, l'équilibrage des échantillons peut être obtenu en moins d'une semaine.

A.1.2 Effets de la salinité et de la longueur de la chaîne carbonée

Dans les années 1980, O. Gosh et C. A. Miller [76] ont étudié le diagramme de phases du système modèle AOT – eau salée – n-alcane en fonction de la concentration en sel et de la longueur de la chaîne carbonée de l'huile. Ils ont pu mettre en évidence des comportements analogues aux phases de Winsor présentées plus haut. Ils ont notamment remarqué qu'en régime de Winsor III, la structure de la troisième phase obtenue dépendait de la longueur de la chaîne carbonée de l'huile utilisée.
Ces études ont été complétés dans les années qui suivirent [77–79, 93], apportant un examen détaillé de l'effet de la longueur de la chaîne carbonée sur les propriétés du film de surfactant à l'interface entre l'eau et l'huile. En effet, il en ressort que les propriétés du film de surfactant sont reliées à la structure des phases obtenues.
Les tensions interfaciales observées entre les différentes phases de ce type de système sont extrêmement faibles et ne dépendent pas de la concentration en surfactant (tant que celle–ci est supérieure à la concentration micellaire critique, c.m.c.). Cette indépendance de la tension interfaciale vis–à–vis de la quantité de surfactant implique que la faiblesse de la tension est due à la présence du film de surfactant à l'interface entre l'eau et l'huile. En régime de Winsor III, la tension interfaciale entre la troisième phase et les phases en excès est plus faible que pour les régimes de Winsor I & II. Dans tous les cas, cette tension interfaciale dépend de la concentration en sel et décroît avec la salinité pour un atteindre un minimum en régime de Winsor III. Puis cette tension croît à nouveau lorsque la quantité de sel augmente dans la phase aqueuse.

Un film de surfactant présentant une courbure spontanée peut être interprété comme un milieu élastique décrit par une énergie de courbure (introduite par Helfrich au début des années 1970). Cette énergie par unité de surface (en admettant que l'épaisseur du film est petite devant les rayons de courbure) s'écrit :

$$F = \frac{1}{2}K(c_1c_2 - 2c_0)^2 + \overline{K}c_1c_2, \tag{A.1}$$

où c_1 et c_2 sont les deux courbures principales de la surface et c_0 la courbure spontanée. K et $\overline{K}$ représentent respectivement la constante de rigidité de courbure moyenne et le module de courbure gaussienne. Les études de H. Kellay *et al.* [93] ont notamment montrés que K et $\overline{K}$ sont indépendants de la concentration en sel mais dépendent fortement de la

longueur N de la chaîne de l'alcane considéré (de $K \sim 1k_BT$ pour $N < 11$ à $\sim 0.1k_BT$ pour $N = 14$). L'association de ces deux grandeurs contrôle la morphologie des phases obtenues : lorsque $K > k_BT$ et $\overline{K} < 0$, une phase lamellaire L_α est obtenue alors que lorsque $K \lesssim k_BT$ et $\overline{K} > 0$, une microémulsion bi–continue ou une phase L_3 (*phase éponge*) est obtenue.

Les produits utilisés

Pour la synthèse de ces échantillons, nous utilisons comme surfactant l'AOT, à savoir le sodium bis–(2–ethylhexyl) sulfosuccinate dont la molécule est représentée sur la figure A.2 (a). Ce surfactant a une pureté de 98% et est utilisé comme tel. La particularité de cette molécule est de posséder une double queue hydrophobe qui va se placer dans l'huile lorsqu'elle est présente à l'interface entre l'eau et l'huile. Par conséquent, la tête polaire se placera dans la phase aqueuse.

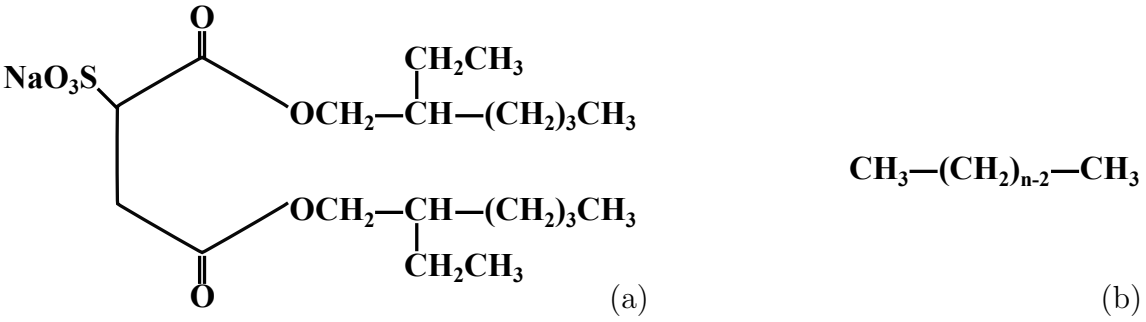


FIG. A.2 – *(a) Structure de la molécule de surfactant AOT (sodium bis–(2–ethylhexyl) sulfosuccinate). (b) Structure du n-alcane (où n = 7 et n = 12 dans nos expériences)*

Les n–alcanes utilsés par la suite seront le n–heptane et le n–dodécane. Leur pureté est de 99% et comportent la structure présentée sur la figure A.2 (b). Les différentes caractéristiques des produits utilisés pour ces échantillons sont résumées dans le tableau A.1. Tous les produits chimiques proviennent de la compagnie Sigma–Aldrich®. L'eau utilisée

Propriétés	**AOT**	**n–Heptane**	**n–Dodécane**	**Eau**
Formule chimique	$C_{20}H_{37}NaO_7S$	C_7H_{16}	$C_{12}H_{26}$	H_2O
Masse molaire M (g/mol)	444.57	100.20	170.34	18.00
Masse volumique ρ (g/cm^3)	1.3050	0.6790	0.7486	1
Indice de réfraction n	1.468	1.385	1.422	1.330

TAB. A.1 – *Propriétés physico–chimiques du surfactant AOT, du n–heptane à 25°C, du n–dodécane à 20°C et de l'eau (indice de réfraction de l'AOT extrait de la référence [94])*

est ultrapure (distillée deux fois et déionisée) et possède une résistivité de $18.2.10^6$ Ω.cm. Enfin, le sel utilisé est du NaCl d'une pureté de 99%.

A.1.3 Phases de Winsor utilisées comme système diphasique de référence : transparent et isotrope

Toutes les études présentées dans cette thèse ont une particularité commune, la nécessité d'avoir des systèmes fluides comportant une très faible tension interfaciale. En effet, les forces optiques mises en jeu dans ces expériences étant très faibles (pression de radiation de l'ordre d'une dizaine de Pa et densité de force diffusive de quelques mN/cm^3), il est indispensable de considérer des interfaces extrêmement déformables.

Dans cette section, nous allons exposer le système utilisé comme système de référence où seuls les effets de la pression de radiation pourront être induits optiquement. Les phases de l'échantillon ne diffusent pas, il n'y a donc pas la possibilité d'induire des écoulements en volume par la diffusion de la lumière (ce qui ne sera pas le cas dans les systèmes présentés ultérieurement).

Pour réaliser ce système de référence, nous nous sommes basé sur des phases de Winsor avec une huile dont la chaîne carbonée est courte : le n–heptane (7 atomes de carbone). Comme nous l'avons vu précédemment, une variation de la concentration en sel sur cet échantillon permettra d'observer les trois régimes de Winsor (Winsor I, II et III). La tension interfaciale étant la plus faible dans le régime de Winsor III, nous allons exclusivement nous focaliser sur ce dernier. D'autre part, nous nous attendons (dans ce régime de Winsor III) à obtenir une phase lamellaire L_α constituée de presque autant d'huile que d'eau et contenant quasiment tout le surfactant. Cette phase est biréfringente et constituée de films d'huile et d'eau séparés par des monocouches de surfactant. De part et d'autre de cette phase L_α, une phase en excès d'huile et une phase en excès d'eau sont présentes (cette dernière contenant du surfactant à la c.m.c.). Ce sont ces deux dernières phases en excès que nous allons prélever afin de créer des échantillons (eau salée – heptane) de tension interfaciale extrêmement basse.

Réalisation des échantillons

Les systèmes utilisés étant très sensibles aux impuretés, toute la verrerie est nettoyée méticuleusement plusieurs fois avec de l'eau, de l'acétone puis finalement rincée à l'éthanol avant d'être séchée dans une étuve. La synthèse de ces échantillons s'effectue en plusieurs étapes. Les pesées sont réalisées à l'aide d'une balance de précision à 10^{-4} g près. Nous avons établi à chaque fois un diagramme de phases permettant de scanner les trois équilibres de Winsor, bien que notre intérêt soit porté exclusivement sur le régime de Winsor III. Cette stratégie fut adoptée afin d'encadrer au mieux le régime de Winsor III. Pour cet alcane, nous nous sommes basé sur les travaux de B. P. Binks *et al.* [80] (réalisés à une température de 25°C).

Tout d'abord, nous préparons 60 cm^3 de solution mère d'eau salée à une concentration de $[NaCl] = 0.1$ mol/L. La masse molaire du sel étant $M_{NaCl} = 58.4425$ g/mol, la quantité de sel à ajouter à 60 cm^3 d'eau pour obtenir une solution mère d'eau salée de concentration $[NaCl] = 0.1$ mol/L est de :

$$m_{NaCl}(\mathrm{g}) = m_{H_2O} \times M_{NaCl} \times [NaCl], \tag{A.2}$$

$$m_{NaCl} = 60 \times 58.4425 \times \frac{0.1}{1000}, \tag{A.3}$$

$$m_{NaCl} = 0.3506 \text{ g.} \tag{A.4}$$

Ensuite, à partir de cette solution mère, nous réalisons une dilution en 9 tubes de 10 cm^3 chacun afin de balayer les concentrations en sel de $[NaCl] = 0.055$ mol/L à $[NaCl] = 0.015$ mol/L. Par exemple, pour obtenir un tube contenant 10 cm^3 de solution d'eau salée de concentration $[NaCl] = 0.055$ mol/L à partir de la solution mère préparée ci–dessus, il faut effectuer la dilution suivante :

$$m_{Solution\ mère}(\text{g}) = \frac{[NaCl]_{finale}}{[NaCl]_{initiale}} \times m_{Totale}, \tag{A.5}$$

$$m_{Solution\ mère} = \frac{0.055}{0.1} \times 10, \tag{A.6}$$

$$m_{Solution\ mère} = 5.5 \text{ g.} \tag{A.7}$$

il faut donc prélever 5.5 g de solution mère à $[NaCl] = 0.1$ mol/L auxquels on ajoute 4.5 g d'eau pure afin d'obtenir 10 cm^3 d'eau salée de concentration $[NaCl] = 0.055$ mol/L.

Dans un deuxième temps, on prépare une solution mère de 60 cm^3 de n–heptane dans laquelle est dissoute la quantité d'AOT permettant d'obtenir une concentration de $[AOT] = 40.10^{-3}$ mol/L (bien supérieure à la c.m.c qui est de l'ordre de 1.10^{-3} mol/L). La masse volumique de l'heptane étant $\rho_{Heptane} = 0.6790$ g/cm^3 à 25°C, la masse totale d'heptane correspondant au volume souhaité de 60 cm^3 est égale à :

$$m_{Heptane}(\text{g}) = \rho_{Heptane} \times V_{Heptane}, \tag{A.8}$$

$$m_{Heptane} = 0.6790 \times 60, \tag{A.9}$$

$$m_{Heptane} = 40.74 \text{ g.} \tag{A.10}$$

Pour obtenir une concentration en AOT égale à $[AOT] = 40.10^{-3}$ mol/L dans 60 cm^3 d'heptane, il faut $2.4.10^{-3}$ mol d'AOT. La masse molaire de l'AOT étant de $M_{AOT} = 444.565$ g/mol, la masse d'AOT nécessaire est donc de :

$$m_{AOT} = 2.4.10^{-3} \times 444.565 = 1.067 \text{ g.} \tag{A.11}$$

L'AOT se présente sous forme de « pâte » et se dissout plus facilement dans l'alcane que dans la phase aqueuse, ce qui explique pourquoi nous avons fait le choix de réaliser une solution mère de (n–heptane + AOT).

Ainsi, nous disposons de 9 tubes de 10 cm^3 de phase aqueuse à différentes concentrations en sel et d'une solution mère de 60 cm^3 de n–heptane associée avec le surfactant AOT à une concentration de $[AOT] = 40.10^{-3}$ mol/L. Nous sommes à présent en mesure de réaliser une collection d'échantillons (eau salée + n–heptane + AOT) pour différentes salinités. On dispose dans 9 tubes à essai 5 cm^3 de solution d'eau salée et le même volume de solution de n–heptane avec AOT. La masse de solution mère (n–heptane + AOT) à ajouter au 5 g de solution aqueuse salée a été calculé en considérant que la masse volumique de la solution mère (n–heptane + AOT) n'a pas été affecté par la présence du surfactant (de même, l'influence du sel dans la solution aqueuse a été négligé). La masse molaire de l'heptane pur fut alors considérée. Donc, un volume de 5 cm^3 de solution mère (n–heptane + AOT) correspond à une masse de :

$$m_{(Heptane\ +\ AOT)} = \rho_{Heptane} \times V_{(Heptane\ +\ AOT)} = 0.6790 \times 5 = 3.395 \text{ g} \tag{A.12}$$

Les tubes sont ensuite fermés hermétiquement, mélangés délicatement et placés dans un bain thermostaté à 25°C.

Le temps nécessaire pour que les échantillons s'équilibrent est très long (typiquement de l'ordre de un à plusieurs mois). Il est donc important de préparer beaucoup de lots d'échantillons afin de « s'affranchir » de cette contrainte inhérente au système et pouvoir multiplier les expériences en optimisant cette contrainte temporelle.

Diagramme de phases et caractéristique des échantillons de Winsor préparés avec du n–heptane

Une fois les échantillons à l'équilibre, on obtient un diagramme comme celui représenté schématiquement sur la figure A.3 (a) et en mesurant les fractions volumiques de chaque phase de l'échantillon (rapport du volume de la phase considérée au volume total de l'échantillon), on est capable de reproduire expérimentalement ce diagramme de phases en fonction de la salinité (figure A.3 (b)).

Sur les figures A.3 (a) et (b), on observe que lorsque la concentration en sel est faible, un échantillon diphasique dans le régime de Winsor I est obtenu présentant une phase microémulsion huile dans eau en coexistence avec une phase en excès d'huile. Lorsque la salinité augmente, le volume de cette phase microémulsion augmente jusqu'à $[NaCl] = 0.035$ mol/L puis un changement de régime apparaît. Pour des salinités comprisent entre $[NaCl] = 0.040$ mol/L et $[NaCl] = 0.045$ mol/L, l'échantillon exhibe trois phases distinctes. On se trouve, à présent, dans le régime de Winsor III où une phase lamellaire L_α, très concentrée en surfactant, coexiste avec une phase en excès d'huile et une phase en excès d'eau (avec une concentration en surfactant égale à la c.m.c). Enfin, par une nouvelle augmentation de la concentration en sel (à partir de $[NaCl] = 0.050$ mol/L), le système redevient diphasique en présentant cette fois–ci une phase microémulsion eau dans huile en coexistence avec une phase en excès d'eau. Cette situation est significative du régime de Winsor II. Nous confirmons donc expériementalement l'existence de ces trois régimes observés par Winsor et nous allons principalement nous intéresser par la suite au régime de Winsor III.

Cet équilibre de Winsor III (donc compris entre $[NaCl] = 0.040$ mol/L et $[NaCl] = 0.045$ mol/L dans nos expériences) a la particularité de présenter trois phases dont deux phases en excès, d'eau et d'huile. D'autre part, comme cela est présenté sur la figure A.3 (c), la tension interfaciale entre la microémulsion eau dans huile et la phase huile (en symboles pleins) décroît lorsque la salinité augmente pour atteindre un minimum en régime de Winsor III. Cette tension augmente à nouveau lorsque la concentration en sel dans la phase aqueuse augmente fortement. Cette courbe de tension interfaciale en fonction de la salinité, représentée sur la figure A.3 (c) est extraite des travaux de B. P. Binks *et al.* [80] qui ont travaillé sur ce même système comportant du n–heptane. Dans leurs expériences, le régime de Winsor III est observé pour des concentrations en sel dans l'intervalle : $[NaCl] = 0.055$ mol/L – $[NaCl] = 0.060$ mol/L. Il y a donc un léger décalage entre la position du régime de Winsor III qu'ils obtiennent et celui que l'on observe (à salinité un peu plus faible). Ce décalage peut s'expliquer par plusieurs facteurs. D'une part, les produits utilisés ne sont probablement pas issus du même fabricant, la pureté de ces produit peut donc différer. D'autre part, la méthode de réalisation de ces échantillons (rappelons–le, très sensibles aux impuretés...) peut faire « translater » légèrement le

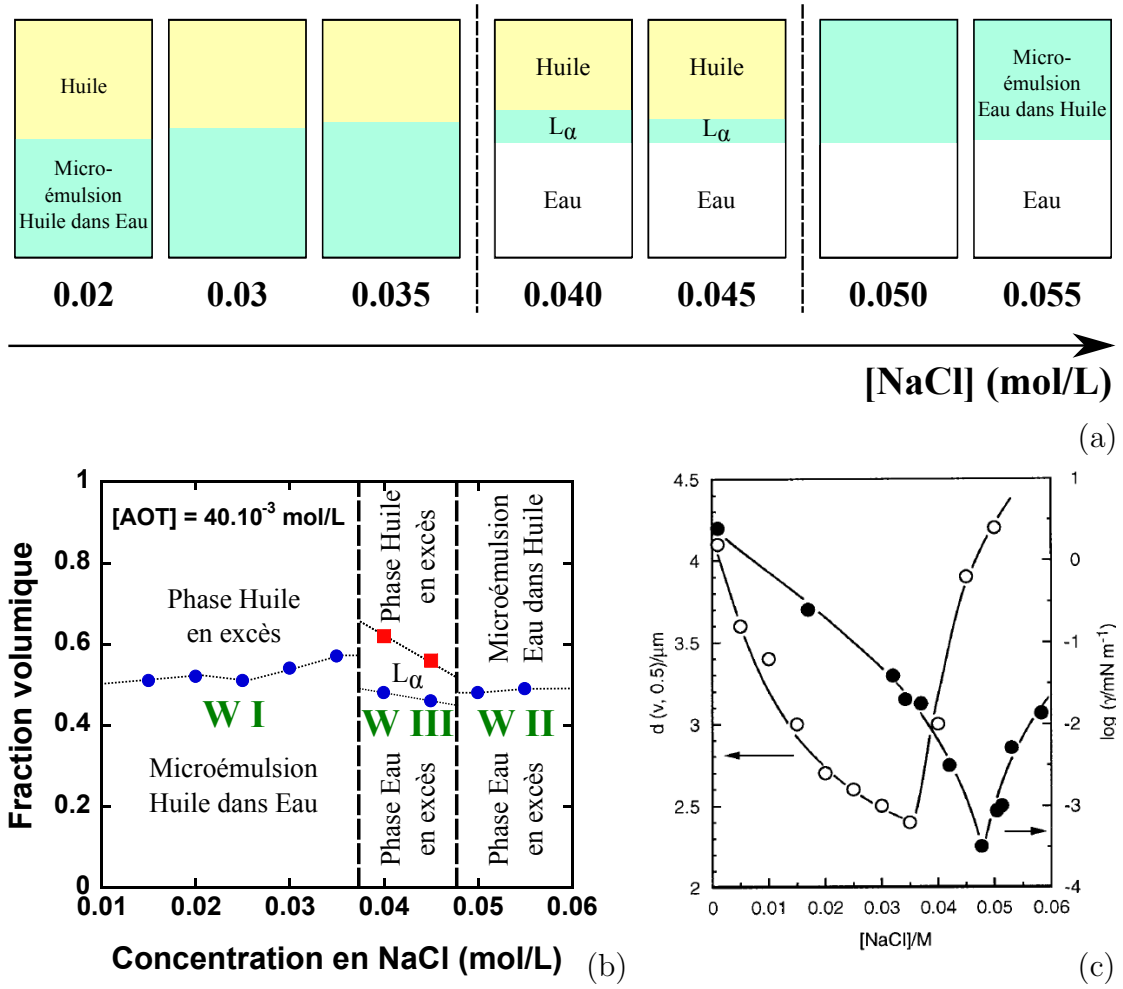


FIG. A.3 – *(a) Représentation schématique des échantillons à l'équilibre à 25°C en fonction de la salinité et observation des différents équilibres de Winsor. (b) Diagramme de phases expérimental représentant les fractions volumiques de chaque phase de l'échantillon réalisé avec un mélange (eau salée–AOT–heptane) en fonction de la salinité. (c) Évolution du diamètre moyen en volume de la microémulsion eau dans huile (symboles creux) et de la tension interfaciale (symboles pleins) en fonction de la salinité [80].*

diagramme de phases en salinité. La conjugaison de ces différents facteurs, inhérents à l'expérimentation explique probablement le décalage observé.

La synthèse de ce type de phases de Winsor a pour but d'obtenir un système de référence dans lequel aucune phase n'est diffusante. Seule la pression de radiation de l'onde laser incidente participera à la déformation de l'interface molle. Rappelons qu'il est nécessaire de considérer des systèmes de très faible tension interfaciale et c'est pourquoi nous nous sommes exclusivement intéressé aux échantillons dans le régime de Winsor III. La réalisation de ce système de référence transparent s'effectue en plusieurs étapes. L'échantillon de notre choix contenant les trois phases (caractéristiques du régime de Winsor III) se trouve dans un tube à essai. Premièrement, il s'agit de séparer ces différentes phases. Pour ce faire on prélève, à l'aide de micro–seringues, chaque phase de l'échantillon comme cela est présenté sur la figure A.4. Il est impératif d'utiliser des seringues dédiées (que

nous avons fabriqué) afin d'emporter le moins possible de surfactant lorsqu'on traverse la troisième phase (L_α) pour extraire la phase eau et que cette dernière soit la plus pure possible (de plus, nous prenons soins de prélever cette phase eau dans le bas du tube de manière à éviter d'aspirer la troisième phase).

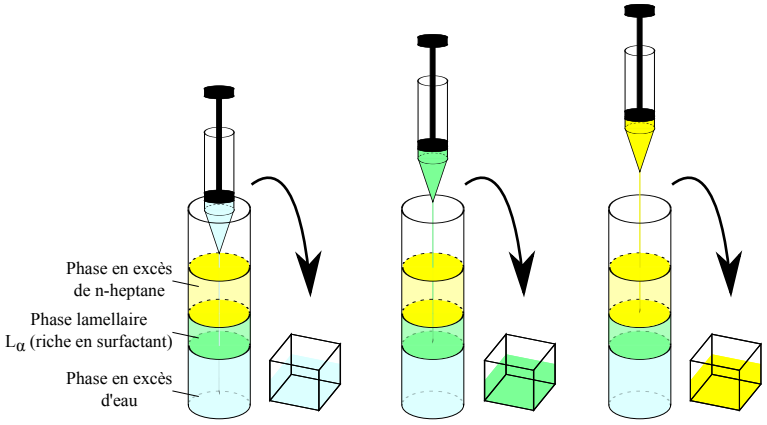


Fig. A.4 – *Méthode de prélèvement des différentes phases (phase d'eau salée, L_α et phase de n–heptane) d'un échantillon en régime de Winsor III.*

Nous séparons ainsi les trois phases du système de manière à être en mesure de réaliser des échantillons diphasiques en mettant en coexistence les phases désirées. Ainsi, nous produisons des échantillons diphasiques « non–diffusants » en mettant en contact les phases en excès d'eau et d'heptane. Un lot de cellules de spectroscopie Hellma® d'épaisseur $e = 2$ mm est rempli avec le même volume de chaque phase (eau et heptane). Le remplissage doit s'effectuer avec le plus grand soin pour éviter toute perturbation de l'équilibre entre les deux phases et pouvoir procéder à l'expérimentation dans les plus brefs délais. Les cellules ainsi remplies sont scellées et thermostatées à 25°C dans le four du dispositif expérimental (contrôlé par un régulateur de température).

A.1.4 Phases de Winsor à base de n–dodécane : système diphasique présentant une phase transparente et une phase diffusante

Les phases de Winsor considérées dans cette partie sont réalisées avec un n–alcane dont la chaîne carbonée est longue. Ces huiles plus longues conduisent à des diagrammes de phases plus complexes que ceux obtenus avec des alcanes plus courts tel que celui utilisé dans la section précédente (le n–heptane). Le régime de Winsor III s'étend sur un intervalle de concentration en sel plus grand et le volume de la troisième phase se comporte de manière différente avec la salinité que pour des huiles plus courtes.

Dans nos travaux, nous nous sommes exclusivement intéressé aux phases de Winsor produites à l'aide du n–dodécane (12 atomes de carbone). En effet, ces phases de Winsor particulières présentent, pour un domaine de salinité déterminé, un régime de Winsor III où on observe la coexistence d'une phase L_3 (*phase éponge*) diffusante constituée de bicouches d'AOT ayant incorporé très peu d'huile, d'une phase aqueuse et d'une phase d'huile. La tension interfaciale entre cette phase L_3 et la phase aqueuse est extrêmement faible et, à notre connaissance, n'a pas été mesurée.

Dans la suite, nous allons donc utiliser cette phase L_3 et la phase aqueuse afin de réaliser des échantillons diphasiques exhibants à la fois une phase diffusante et une phase transparente.

Réalisation des échantillons

De même que pour les échantillons réalisés à partir de n–heptane, ceux produits avec du n–dodécane se font en plusieurs étapes. Le protocole de préparation des échantillons est sensiblement le même que celui présenté pour les phases de Winsor comportant du n–heptane. Il s'agit de préparer deux solutions mères, l'une contenant une solution aqueuse de concentration en sel déterminée et une autre de n–dodécane dans laquelle est dissoute le surfactant (AOT également de concentration déterminée). Cette préparation d'échantillons est basée sur les travaux de thèse de H. Kellay [95] (réalisés pour une température de 20°C).

Nous commençons donc par préparer 60 cm^3 de solution mère d'eau salée à $[NaCl] = 0.3$ mol/L. La masse molaire du sel étant $M_{NaCl} = 58.4425$ g/mol, la quantité de sel à ajouter à 60 cm^3 d'eau pour obtenir une solution mère d'eau salée de concentration $[NaCl] = 0.3$ mol/L est de :

$$m_{NaCl}(\mathrm{g}) = m_{H_2O} \times M_{NaCl} \times [NaCl], \tag{A.13}$$

$$m_{NaCl} = 60 \times 58.4425 \times \frac{0.3}{1000}, \tag{A.14}$$

$$m_{NaCl} = 1.052 \text{ g}. \tag{A.15}$$

De façon similaire aux échantillons préparés précédemment, nous réalisons plusieurs tubes de 10 cm^3 chacun (en l'occurence 12 tubes) de cette solution plusieurs fois diluée afin de couvrir le domaine en salinité qui nous intéresse. Ce domaine s'étend de $[NaCl] = 0.12$ mol/L à $[NaCl] = 0.18$ mol/L car d'après [95], le régime de Winsor III pour ce système se situe dans cet intervalle. Prenons comme exemple, la réalisation d'un tube contenant 10 cm^3 de solution d'eau salée de concentration $[NaCl] = 0.15$ mol/L à partir de la solution mère préparée ci–dessus, il faut effectuer la dilution suivante :

$$m_{Solution\ mère}(\mathrm{g}) = \frac{[NaCl]_{finale}}{[NaCl]_{initiale}} \times m_{Totale}, \tag{A.16}$$

$$m_{Solution\ mère} = \frac{0.15}{0.3} \times 10, \tag{A.17}$$

$$m_{Solution\ mère} = 5 \text{ g}. \tag{A.18}$$

il faut donc prélever 5 g de solution mère à $[NaCl] = 0.3$ mol/L auxquels on ajoute 5 g d'eau pure pour obtenir un tube de 10 cm^3 d'eau salée de concentration $[NaCl] = 0.15$ mol/L.

En parallèle, on prépare une solution mère de 60 cm^3 de n–dodécane dans laquelle est dissoute la quantité d'AOT permettant d'obtenir une concentration de $[AOT] = 30.10^{-3}$ mol/L. La masse volumique du n–dodécane étant $\rho_{Dodécane} = 0.7486$ g/cm^3 à 20°C, la masse totale de n–dodécane pour 60 cm^3 est égale à :

$$m_{Dodécane}(\mathrm{g}) = \rho_{Dodécane} \times V_{Dodécane}, \tag{A.19}$$

$$m_{Dodécane} = 0.7486 \times 60, \tag{A.20}$$

$$m_{Dodécane} = 44.92 \text{ g}. \tag{A.21}$$

La concentration en AOT désirée étant de $[AOT] = 30.10^{-3}$ mol/L signifie que pour 60 cm^3 de n–dodécane, il faut $1.8.10^{-3}$ mol d'AOT. La masse molaire de l'AOT étant de $M_{AOT} = 444.565$ g/mol, la masse d'AOT nécessaire est donc de :

$$m_{AOT} = 1.8.10^{-3} \times 444.565 = 0.8 \text{ g}. \tag{A.22}$$

À l'aide des tubes contenant chacun une solution aqueuse de concentration en sel différente et de la solution mère de (n–dodécane + AOT), nous réalisons un lot d'échantillons définitifs de 10 cm^3 chacun en mélangeant des volumes égaux (de 5 cm^3) de solution aqueuse salée et de solution mère de (n–dodécane + AOT) à $[AOT] = 30.10^{-3}$ mol/L. Un volume de 5 cm^3 de solution mère (n–dodécane + AOT) correspond à une masse de :

$$m_{(Dodécane\ +\ AOT)} = \rho_{Dodécane} \times V_{(Dodécane\ +\ AOT)} = 0.7486 \times 5 = 3.743 \text{ g}. \tag{A.23}$$

Les tubes sont ensuite fermés hermétiquement, mélangés délicatement et placés dans un bain thermostaté à 20°C.

Pour ce système, comportant un alcane de chaîne carbonée longue, le temps nécessaire à l'équilibrage des échantillons est beaucoup plus rapide que pour des huiles plus courtes (comme le n–heptane). Les échantillons sont à l'équilibre au bout d'environ une semaine.

Diagramme de phases et caractéristiques des échantillons de Winsor préparés avec du n–dodécane

Les échantillons étant équilibrés, nous obtenons le diagramme de phases présenté sur la figure A.5 (b), la figure A.5 (a) représentant le même diagramme issu des études de H. Kellay [95]. Cette fois, nous pouvons remarquer un très bon accord entre nos résultats et ceux de H. Kellay pour le même système. Rappelons que notre diagramme de phases est moins étendu en terme de salinité car nous nous sommes focalisé sur le régime de Winsor III.

Sur la figure A.5 (a), à très basse salinité (de $[NaCl] = 0.10$ mol/L à $[NaCl] = 0.135$ mol/L), un équilibre est créé entre une phase biréfringente et une phase en excès d'huile. Cette phase biréfringente occupe tout le volume de la phase aqueuse pour les plus basses concentrations en sel de cet intervalle. Entre $[NaCl] = 0.12$ mol/L et $[NaCl] = 0.135$ mol/L, le volume de cette phase biréfringente diminue jusqu'à l'apparition d'une nouvelle phase à $[NaCl] = 0.135$ mol/L. À cette concentration en sel, la phase biréfringente fait place à une phase isotrope occupant toute la phase aqueuse. La phase aqueuse se situe au–dessus de la phase biréfringente car moins dense que cette dernière. Pour un petit domaine de salinités supérieures à $[NaCl] = 0.135$ mol/L, la phase isotrope occupe toute la phase aqueuse et il y a donc coexistence entre une phase aqueuse isotrope contenant le surfactant et une phase huile. Au–delà de $[NaCl] = 0.135$ mol/L et jusqu'à $[NaCl] = 0.225$ mol/L, nous nous trouvons dans le régime de Winsor III. Le volume de la phase isotrope, contenant la quasi–totalité du surfactant, décroît lorsque la concentration en sel augmente et une troisième phase aqueuse est observée (constituée d'eau salée et d'un peu d'AOT à la c.m.c.) au milieu du tube (car moins dense que la phase isotrope). De $[NaCl] = 0.135$ mol/L à $[NaCl] = 0.180$ mol/L, nous obtenons donc des échantillons

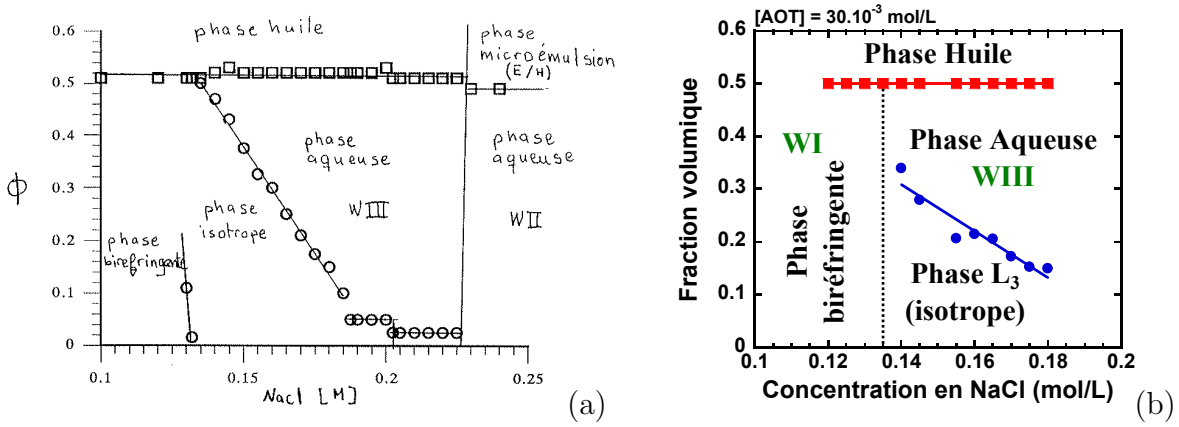


FIG. A.5 – *(a) Diagramme de phases expérimental à 20°C pour le mélange (eau salée–AOT–dodécane) avec* $[AOT] = 30.10^{-3}$ mol/L *issu de [95]. Les fractions volumiques de chaque phase de l'échantillon sont représentées en fonction de la salinité. (b) Diagramme de phase expérimental avec du n–dodécane issu de notre préparation, à 20°C.*

tri–phasiques dans le régime de Winsor III dont la tension interfaciale (entre la phase isotrope et la phase aqueuse) est extrêmement faible. C'est cet intervalle de salinité qui fut considéré dans nos travaux (figure A.5 (b)). Dans cet intervalle, la phase riche en surfactant (phase du bas) est biréfringente sous écoulement et constituée de bicouches d'AOT ayant incorporées très peu d'huile. Cette phase est apparentée à une phase L_3 appelée également *phase éponge*.
Dans ce domaine de concentration en sel, le volume de la phase L_3 (qui est une phase diffusante) est d'autant plus grand que la salinité est basse. Ainsi, la force diffusive engendrée par le faisceau laser dans cette phase sera d'autant plus efficace. De plus, la tension interfaciale sera d'autant plus faible que la concentration en sel sera faible. Dans la suite, nous utiliserons donc des échantillons dans ce régime de Winsor III, mais à plus faible salinité possible afin de conserver les tensions interfaciales les plus faibles.
Pour des salinités plus fortes que celles que nous considérons dans nos études, d'autres équilibres apparaissent. En effet, on peut observer (sur la figure A.5 (a)) qu'une première transition de phase a lieu à $[NaCl] = 0.185$ mol/L et qu'une deuxième transition de phase s'effectue à $[NaCl] = 0.200$ mol/L où il y a coexistence de quatre phases. Enfin à grande concentration en sel ($[NaCl] > 0.225$ mol/L), un nouvel équilibre apparaît où on peut observer la coexistence de la phase aqueuse avec une phase microémulsion eau dans huile. C'est le régime de Winsor II.

À nouveau, on choisit un tube dans le diagramme ainsi réalisé et il s'agit de confectionner des échantillons diphasiques de très faible tension interfaciale comportant une phase diffusante et une phase transparente. La tension interfaciale étant la plus basse entre la phase aqueuse et la phase L_3, c'est l'option que nous avons prise pour remplir nos cellules. Il faut tout d'abord prélever les différentes phases de l'échantillon tri–phasique de manière similaire à celle utilisée pour les phases de Winsor contenant du n–heptane. Nous remplissons un lot de cellules de spectroscopie Hellma® de volumes égaux de la phase L_3 et de la phase aqueuse (la phase L_3 étant plus dense que la phase aqueuse, elle se placera en bas de la cellule). Enfin, les cellules sont scellées et thermostatées dans le four du dispositif expérimental contrôlé en température à 20°C.

A.2 Phases micellaires de microémulsion

La visualisation, à l'échelle micrométrique, des déformations d'interfaces liquides induites par une onde laser continue nécessite de considérer des interfaces extrêmement molles, c'est–à–dire possédant une tension interfaciale σ très faible. Les interfaces fluides issues de systèmes critiques au voisinage d'un point critique de démixtion sont une alternative intéressante car leur tension interfaciale tend vers zéro (selon la loi de puissance $\sigma = \sigma_0 \left(\frac{T-T_C}{T_C}\right)^{2\nu}$ avec $\nu = 0.63$) lorsque ce point critique est approché. De plus, l'avantage de tels systèmes est l'accès au contrôle de l'amplitude de cette tension interfaciale via le contrôle de l'écart à la température critique de l'échantillon. Ce contrôle permet d'atteindre des tensions interfaciales extrêmement faibles, inférieures à 10^{-6} N/m et jusqu'à 10^{-8} N/m.

A.2.1 La microémulsion quasi–critique utilisée

Comme nous l'avons vu sur la figure A.1 au début de cette annexe, l'association des molécules de surfactant en solution avec différents fluides apporte une richesse dans les structures complexes observées. Les phases micellaires de microémulsion quasi–critique, que nous utilisons, appartiennent à ces catégories de fluides complexes. Elles sont constituées d'un mélange d'au moins trois constituants : de l'eau, de l'huile et d'un surfactant. Dans la plupart des cas, l'ajout d'un quatrième constituant, le co–surfactant (généralement un alcool), permet de stabiliser le mélange liquide ainsi obtenu. Ces mélanges liquides possèdent des structures supramoléculaires stables et optiquement isotropes. Dans notre cas, le composant minoritaire est l'eau et le composant majoritaire est l'huile. Le surfactant s'adsorbe à l'interface entre l'eau et l'huile fabriquant ainsi des goutelettes d'eau entourées d'huile, appelées micelles inverses. Ces micelles inverses sont donc en suspension dans une phase continue d'huile, de quelques molécules de surfactant et d'une certaine fraction volumique de co–surfactant. Au cours de cette thèse, la microémulsion utilisée est un mélange quaternaire constitué d'un surfactant, le SDS (Sodium Dodécyl Sulfate) dont la figure A.6 en est une illustration, d'un co–surfactant, le n–Butanol–1, de Toluène (constituant la phase majoritaire d'huile) et d'eau ultra–pure [51].

Composition de la solution utilisée

Nous préparons tout d'abord 60 g d'une solution mère constituée des quatre constituants présentés plus haut, à savoir le SDS (surfactant dont la molécule est représentée figure A.6), le n–butanol–1 (co–surfactant), le toluène (huile) et l'eau ultra–pure (cette dernière étant la même que celle utilisée pour la réalisation des phases de Winsor). Le tableau A.2 regroupe les concentrations massiques et quelques caractéristiques des différents constituants utilisés.

La phase la plus riche de ce mélange étant la phase huile, nous obtenons donc une phase micellaire constituée de micelles inverses d'eau dans l'huile, dont la structure à l'échelle microscopique a été établie par des études de diffusion de lumière et de neutrons [96]. Il a notamment été démontré que le rayon des micelles inverses ainsi formées dépend essentiellement du rapport massique $X = \frac{m_{Eau}}{m_{SDS}}$, qui dans notre cas (pour les concentrations détaillées dans le tableau A.2) vaut $X = 2.16$. Le rayon micellaire moyen est d'environ 40 ± 2 Å, loin de tout point critique. Dans la suite, nous allons exposer les

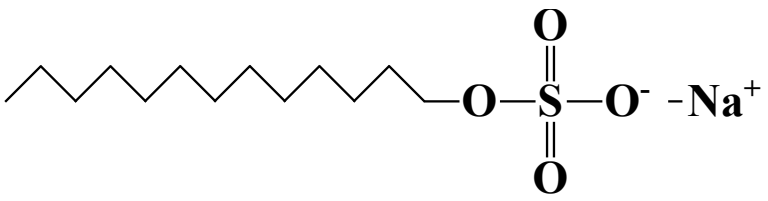


FIG. A.6 – *Représentation schématique de la molécule de surfactant SDS (Sodium Dodécyl Sulfate).*

Constituants	SDS	n–Butanol–1	Toluène	Eau
Formule chimique	$CH_3(CH_2)_{11}SO_4Na$	$CH_3(CH_2)_2CH_2OH$	C_7H_8	H_2O
Masse molaire M (g/mol)	288.38	74.12	92.14	18.00
Masse m (g)	2.5836	10.05	41.76	5.6064
Concentration massique	4.31%	16.75%	69.6%	9.34%
Masse volumique ρ (kg/m^3)	1160	810	860	1000
Indice de réfraction n	1.443	1.399	1.497	1.330

TAB. A.2 – *Compositions massiques pour* 60 g *de solution mère de la microémulsion utilisée (à 25°C).*

différentes grandeurs physiques caractéristiques relatives à la composition présentée dans le tableau A.2.

Grandeurs caractéristiques de la microémulsion utilisée

À l'aide de la composition massique de la solution mère de microémulsion que nous avons détaillé dans le tableau A.2, nous pouvons évaluer la masse volumique du mélange initial ρ_0 :

$$\rho_0 = \frac{\sum_i m_i}{\sum_i \frac{m_i}{\rho_i}}, \tag{A.24}$$

où l'indice i représente le constituant. Après application numérique, on trouve :

$$\rho_0 = 876.8 \text{ kg/m}^3. \tag{A.25}$$

Ne sachant pas quelle quantité d'alcool est présente dans la micelle, nous faisons l'hypothèse (afin de simplifier les calculs) que la totalité de l'alcool est dispersée dans la phase continue d'huile. À l'aide de cette approximation, nous pouvons calculer la masse volumique des micelles $\rho_{micelles}$ et la masse volumique de la phase continue d'huile $\rho_{continue}$:

$$\rho_{micelles} = \frac{m_{SDS} + m_{Eau}}{\frac{m_{SDS}}{\rho_{SDS}} + \frac{m_{Eau}}{\rho_{Eau}}}, \tag{A.26}$$

$$\rho_{continue} = \frac{m_{Butanol} + m_{Toluène}}{\frac{m_{Butanol}}{\rho_{Butanol}} + \frac{m_{Toluène}}{\rho_{Toluène}}}. \tag{A.27}$$

Application numérique :

$$\rho_{micelles} = 1045.0 \text{ kg/m}^3, \tag{A.28}$$

$$\rho_{continue} = 850.3 \text{ kg/m}^3. \tag{A.29}$$

Enfin, la fraction volumique en micelles Φ_0 est donnée par :

$$\Phi_0 = \frac{V_{micelles}}{V_{Total}} = \varphi_0 \left(\frac{\rho_0}{\rho_{micelles}} \right) = 0.11, \tag{A.30}$$

où φ_0 représente la fraction massique de la phase dispersée de micelles est vaut : $\varphi_0 = \frac{m_{micelles}}{m_{Totale}} = 0.13$ [97].

Loin de tout point critique, la distance effective d'interaction entre les micelles est dominée par le rayon du potentiel d'interaction de type sphères dures. Ainsi, loin de tout point critique, ce rayon d'interaction n'est rien d'autre que le rayon hydrodynamique micellaire $R_{micelles}$, lui–même égal à la longueur de corrélation des fluctuations de densité ξ_0^+. Cette description du système permet donc d'assimiler le mélange quaternaire initial à un mélange pseudo–binaire constitué d'une phase dispersée de micelles inverses d'eau entourées de surfactant et de co–surfactant et d'une phase continue d'huile.
Ce système possédant un point critique et plus particulièrement une température critique, la modification de la température de ce mélange pourra engendrer une séparation de phases de façon similaire à ce qu'on peut observer pour des systèmes binaires classiques. Dans notre cas, suite à cette séparation de phases, l'échantillon présentera un équilibre entre une phase riche en micelles d'eau dans l'huile et une autre appauvrie en micelles.

A.2.2 Diagramme de phases et recherche d'un échantillon critique

Lorsque l'on considère un mélange quaternaire, en toute rigueur cinq variables sont à prendre en compte pour établir le diagramme de phases (les fractions volumiques ou massiques de chaque constituant et la température du mélange). Comme nous avons fixé le rapport $X = \frac{m_{Eau}}{m_{SDS}} = 2.16$, le diagramme de phases du système est alors pseudo–ternaire. Pour une température T déterminée, le domaine du diagramme riche en huile et pauvre en eau peut être représenté par la figure A.7. Les régions monophasique et diphasique du mélange sont séparées par une courbe appelée ligne de démixtion (région monophasique : partie supérieure de la courbe ; région diphasique : partie inférieure). Un point particulier dit point critique de démixtion se situe sur cette courbe et correspond à une composition critique pour la température T du mélange. En ce point, le système se sépare en deux phases de volumes égaux.

En réalité, pour chaque température T fixée du mélange, il existe un point critique. Ainsi, la microémulsion, assimilée à un mélange binaire, présente en fait une ligne de points critiques de démixtion. Dans notre étude, la composition du mélange initial a été établie de telle façon qu'elle présente un comportement critique aux alentours de $T = 308$ K. Cette température critique pouvant fluctuer un peu de par les différentes méthodes de préparation, la qualité des produits utilisés... la détermination de l'échantillon critique s'effectue par une méthode de dilutions successives de la solution mère en toluène.

Recherche d'un échantillon critique

Nous procédons au remplissage de cinq tubes à essai de 10 g chacun de la solution mère initialement préparée. À ce volume de solution mère répartie dans chaque tube, nous ajoutons un volume, différent dans chaque tube, de toluène pur tel que cela est décrit dans

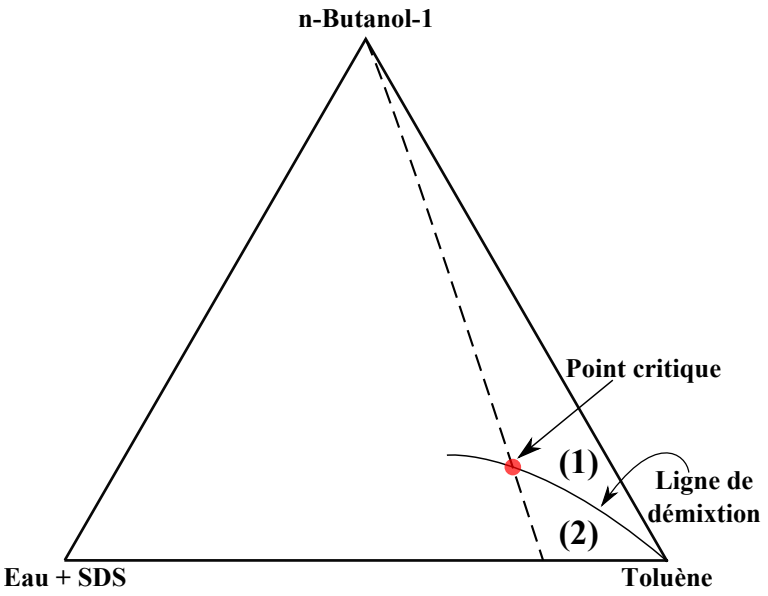


FIG. A.7 – *Diagramme de phases partiel du mélange quaternaire Eau – SDS – n-Butanol-1 - Toluène. (1) Région monophasique. (2) Région diphasique. Le système choisi correspond à* $Eau/SDS = 2.16$ *en concentration massique.*

Tubes	Masse de solution mère (g)	Masse de toluène ajouté (g)
n°1	10.0000	0.4205
n°2	9.9991	0.4399
n°3	10.0039	0.4618
n°4	10.0040	0.4807
n°5	10.0050	0.5016

TAB. A.3 – *Recherche expérimentale d'un échantillon critique à* $T_C = 308$ K, *à partir de différentes concentrations massiques. (Dans ce cas expérimental, l'échantillon critique correspond au tube n°3.)*

le tableau A.3. En partant de la composition initiale du tube n°1 et en augmentant progressivement la quantité (bien qu'infime) de toluène, nous nous déplaçons sur une ligne de dilution qui intercepte la ligne de démixtion en un point déterminé. Suivant la position de ce point par rapport au point critique, les volumes des phases obtenues (l'une riche en micelles et l'autre appauvrie) seront différents. On peut ainsi passer progressivement d'un échantillon comportant un plus grand volume de phase riche en micelles par rapport à la phase appauvrie en micelles à l'inverse. Par une méthode de dichotomie, nous pouvons déterminer la ligne de dilution interceptant exactement la courbe de démixtion au point critique pour la température critique T_C.
Dans la pratique, le caractère critique des échantillons et sa température critique étant très sensibles à la composition de la solution mère (et donc à la qualité des pesées) et à la pureté des produits utilisés, il convient de déterminer la température critique pour chaque échantillon ainsi formé.

Comme nous l'avons évoqué plus haut, ce mélange quaternaire peut être assimilé à un mélange pseudo–binaire et donc nous pouvons représenter son diagramme de phases de façon analogue à ceux réalisés pour des mélanges liquide–liquide classiques. L'allure de ce

diagramme est donné, de manière schématique, par la figure A.8 (a) en représentation (T, Φ) avec Φ la fraction volumique en micelles.

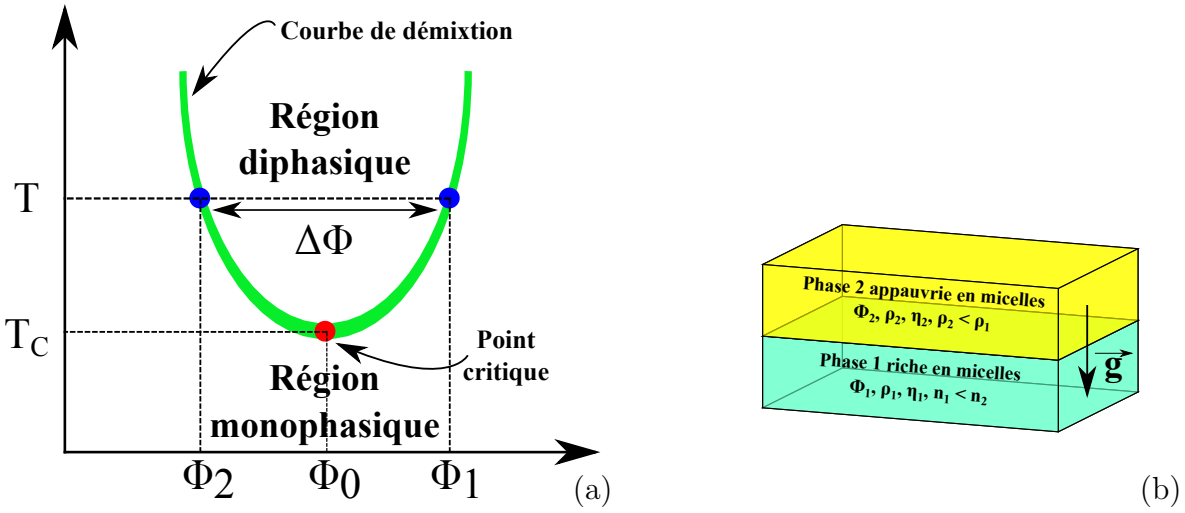


Fig. A.8 – *(a) Représentation schématique du diagramme de phases de la microémulsion en représentation (T, Φ). Φ_0 représente la fraction volumique en micelles du système initial alors que Φ_1 et Φ_2 représentent les fractions volumiques en micelles de chaque phase du système démixté lorsque $T > T_C$. $\Delta\Phi$ est la largeur de la courbe de démixtion (ou courbe de coexistence). (b) Présentation du système après démixtion et notations utilisées (Φ_i la fraction volumique en micelles, ρ_i la masse volumique, η_i la viscosité dynamique et n_i l'indice de réfraction de la phase i).*

Nous pouvons remarquer sur la figure A.8 (a) que pour une température $T < T_C$, le système se trouve dans le régime monophasique (présentant une seule phase homogène et isotrope) comportant une fraction volumique en micelles Φ_0. Lorsque l'échantillon est contrôlé à une température telle que $T > T_C$, la courbe de démixtion (ou courbe de coexistence) est franchie et le système se sépare en deux phases distinctes, l'une riche en micelles, de fraction volumique Φ_1 et l'autre appauvrie en micelles, de fraction volumique Φ_2. La phase Φ_1 étant plus riche en micelles inverses d'eau dans l'huile, elle est plus dense que la phase Φ_2 et se placera sous cette dernière. D'autre part, l'indice optique n_2 de la phase Φ_2 est plus fort que celui de la phase Φ_1 (n_1), car l'indice de réfraction du toluène est plus fort que celui de l'eau (comme cela est rappelé dans le tableau A.2). Les différentes notations utilisées sont résumées sur le schéma de la figure A.8 (b).

A.2.3 Comportements thermophysiques au voisinage d'un point critique

Les propriétés physiques des deux phases issues du mélange initial sont évaluées théoriquement à partir d'un modèle basé sur la théorie de Landau concernant les transitions de phase du second ordre. L'énergie libre d'un système autour du point critique est décrite sous la forme d'un développement limité en puissances entières d'une variable M, appelée paramètre d'ordre de la transition de phase. Dans le cas des phases micellaires de microémulsion critique, ce paramètre d'ordre M est scalaire et correspond à la différence des fractions volumiques en micelles de chaque phase de l'échantillon diphasique, c'est–à–dire

à la largeur de la courbe de coexistence $\Delta\Phi = |\Phi_1 - \Phi_2|$.

Dans la théorie de Landau, les comportements des propriétés thermophysiques sont décrites par des lois de puissance analytiques en fonction de l'écart à la température critque $\frac{T-T_C}{T_C}$. Ces lois de puissance comportent des exposants dits critiques et dépendent de la classe d'universalité des fluides utilisés. Les phases micellaires de microémulsion appartiennent à la classe d'universalité ($d = 3$, $n = 1$) du modèle d'Ising, comme tous les fluides isotropes, où d représente la dimension de l'espace et n, la dimension du paramètre d'ordre.

Longueur de corrélation des fluctuations de densité

Au voisinage du point critique, la longueur de corrélation des fluctuations de densité du fluide diverge selon la loi de puissance :

$$\xi^{\pm} = \xi_0^{\pm} \left(\frac{T - T_C}{T_C}\right)^{-\nu}, \tag{A.31}$$

où les signes $\pm$ représentent l'approche du point critique par l'extérieur (+) ou l'intérieur (−) de la courbe de coexsitence. L'exposant critique vaut $\nu = 0.63$ ([98]), les amplitudes critiques sont reliées par $\xi_0^+ = 2\xi_0^-$ et rappelons que $\xi_0^+ = R_{micelles} = 40 \pm 2$ Å.

Il a été démontré par des mesures de diffusion de la lumière [98] que les valeurs des exposants critiques dépendent uniquement de d et n confirmant ainsi l'appartenance des phases micellaires de microémulsion à la classe d'universalité ($d = 3$, $n = 1$) du modèle d'Ising. Il a également été démontré que des rapports universels reliant les amplitudes critiques entre elles pouvaient être établis. On peut notamment définir un rapport universel R^+ prenant en compte l'amplitude critique de la tension interfaciale σ_0, celle de la longueur de corrélation des fluctuations de densité ξ_0^+ et la température critique T_C tel que :

$$R^+ = \frac{\sigma_0 \left(\xi_0^+\right)^2}{k_B T_C}, \tag{A.32}$$

avec k_B la constante de Boltzmann et où T_C est en Kelvin. La valeur de ce rapport universel a été estimée et vaut [99] :

$$R^+ = 0.39. \tag{A.33}$$

Comportement de la tension interfaciale à l'approche d'un point critique

D'après le rapport universel R^+, l'amplitude critique de la tension interfaciale est donnée par :

$$\sigma_0 = \frac{k_B T_C R^+}{\left(\xi_0^+\right)^2}, \tag{A.34}$$

et vaut pour $T_C = 308$ K

$$\sigma_0 = 10^{-4} \text{ N/m}. \tag{A.35}$$

La tension interfaciale tend vers zéro au voisinage de la température critique selon la loi de puissance :

$$\sigma = \sigma_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C}\right)^{\mu}, \tag{A.36}$$

avec l'exposant critique $\mu = 2\nu = 2 \times 0.63 = 1.26$. Prenons comme exemple un écart à la température critique égal à $T - T_C = 0.5$ K, la tension interfaciale est donc de l'ordre de : $\sigma \simeq 3.10^{-8}$ N/m. Nous confirmons ainsi que par le contrôle en température de l'échantillon critique au plus proche de sa température critique, nous sommes en mesure d'atteindre des tensions interfaciales extrêmement faibles (la tension de surface eau – air étant égale à $\sigma_{eau-air} = 72.10^{-3}$ N/m). Ce contrôle nous permettra donc d'obtenir un interface très déformable qui pourra réagir sous l'action d'une onde laser continue pour des puissances laser largement accessibles expérimentalement.

Largeur de la courbe de coexistence des phases micellaires de microémulsion

Le paramètre d'ordre de la transition de phases étant la fraction volumique en micelles Φ, la largeur de la courbe de coexistence est donnée par la loi de puissance :

$$\Delta\Phi = \Delta\Phi_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C}\right)^{\beta}, \tag{A.37}$$

avec $\beta = 0.325$ et $\Delta\Phi_0$ l'amplitude critique de la largeur de la courbe de coexistence. Cette amplitude critique est reliée à la fraction volumique en micelles initiale du mélange, Φ_0, ainsi qu'au rapport universel R^+ par l'expression : $\Delta\Phi_0 = \sqrt{16\pi\Phi_0 R^+}$. La fraction volumique en micelles initiale de notre mélange étant égale à $\Phi_0 = 0.11$, l'amplitude critique de la largeur de la courbe de coexistence vaut dans ce cas $\Delta\Phi_0 = 1.458$ [51]. Or le système que l'on considère étant en fait un mélange quaternaire, cela implique que le diagramme de phases est plus complexe, asymétrique en Φ en l'occurence et donc l'approximation de la courbe de coexsitence à une courbe symétrique en Φ nous conduit à une surestimation ou une sousestimation de l'amplitude critique de la largeur de la courbe de coexistence $\Delta\Phi_0$ en fonction des potentiels d'interactions. Cette approximation peut conduire également à une surestimation ou une sousestimation du contraste d'indice de réfraction du système. Dans les calculs effectués dans cette thèse, nous avons adopté :

$$\Delta\Phi_0 = 0.275, \tag{A.38}$$

résultant de comparaisons fructueuses entre expériences et simulations numériques concernant l'amplitude des déformations d'interface induites par une faible puissance laser.

Différence de masse volumique entre les deux phases de l'échantillon critique

La masse volumique de chaque phase de l'échantillon ρ_i où $i = 1,\ 2$ est obtenue par la relation suivante :

$$\rho_i = \rho_{micelles}\Phi_i + \rho_{continue}\left(1 - \Phi_i\right), \tag{A.39}$$

où $\rho_{micelles} = 1045.0$ kg/m^3 et $\rho_{continue} = 850.3$ kg/m^3 représentant respectivement les masses volumiques des micelles et de la phase continue d'huile. La différence de masse volumique entre les deux phases est donnée par :

$$\Delta\rho = \rho_1 - \rho_2 = \Delta\rho_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C}\right)^{\beta}, \tag{A.40}$$

avec $\beta = 0.325$ et $\Delta\rho_0 = 284$ kg/m^3, l'amplitude critique du contraste des masses volumiques entre les deux phases.

A.2.4 Indice de réfraction de la solution mère et indices de réfraction de chacune des phases de l'échantillon critique démixté

Indice de réfraction de la solution mère

La taille des micelles et des fluctuations de densité accessible expérimentalement étant petite devant la longueur d'onde du faisceau laser incident, le mélange initial peut–être considéré comme homogène d'un point de vue électromagnétique.

L'indice de réfraction de la solution mère peut alors être déterminé à l'aide de la relation de Clausius–Mossotti (également connue sous le nom de relation de Lorentz–Lorenz) qui est établie en fonction des permittivités diélectriques relatives de chaque constituant du mélange et de leur fraction volumique telle que :

$$\frac{\varepsilon_r - 1}{\varepsilon_r + 2} = \sum_i \frac{\varepsilon_{r,\ i} - 1}{\varepsilon_{r,\ i} + 2}\Phi_i, \tag{A.41}$$

où ε_r est la permittivité diélectrique relative de la solution mère et $\varepsilon_{r,\ i}$ correspond à la permittivité diélectrique relative de chaque constituant i. Cette relation est reconnue comme étant extrêmement fiable pour des mélanges bianires classiques [100, 101] et des mélanges binaires critiques [102], les auteurs annonçant des erreurs relatives entre prédiction et mesures expérimentales inférieures à 0.05%.

On peut réécrire la relation de Clausius–Mossotti en fonction de l'indice de réfraction de chaque constituant car $n_i = \sqrt{\varepsilon_{r,\ i}}$:

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \sum_i \frac{n_i^2 - 1}{n_i^2 + 2}\Phi_i. \tag{A.42}$$

Ainsi, à l'aide des valeurs des indices de réfraction de chaque constituant reportées dans le tableau A.2, l'indice de réfraction de la solution mère est égal à :

$$\sqrt{\varepsilon_r} = n = 1.462. \tag{A.43}$$

Indices de réfraction de chacune des phases de l'échantillon critique démixté

La relation de Clausius–Mossotti (A.42) peut également être utilisée pour estimer les indices de réfraction des phases micellaires en coexistence de l'échantillon critique démixté. Cependant, afin de garder une certaine cohérence avec les précédents travaux réalisés sur les effets de la pression de radiation optique sur les interfaces fluides issues de ce mélange quasi–critique [85], nous avons eu recours à une autre formulation, fournie par Landau [103] :

$$\varepsilon_r(\Phi_i) = \Phi_i\varepsilon_{r,micelles} + (1-\Phi_i)\varepsilon_{r,continue} - \frac{\Phi_i(1-\Phi_i)\left(\varepsilon_{r,micelles} - \varepsilon_{r,continue}\right)^2}{3\left(\Phi_i\varepsilon_{r,micelles} + (1-\Phi_i)\varepsilon_{r,continue}\right)}, \tag{A.44}$$

où $\varepsilon_{r,micelles}$ et $\varepsilon_{r,continue}$ sont respectivement la permittivité diélectrique relative des micelles et la permittivité diélectrique relative de la phase continue d'huile et valent $\varepsilon_{r,micelles} = 1.86$ et $\varepsilon_{r,continue} = 2.18$.

En définitive, les deux formulations exposées ici (relation de Clausius–Mossotti et la formule de Landau) nous amènent à des résultats quasi–identiques. En effet, si l'on considère le mélange de la solution mère, l'équation de Landau prédit une permittivité diélectrique relative de $\varepsilon_r = 2.143$ (*i.e.* $n = 1.464$) et la formule de Clausius–Mossotti donne $\varepsilon_r = 2.141$ (*i.e.* $n = 1.463$). De plus, la différence relative maximale des résultats obtenus suivant les deux formulations est inférieure à 0.2% (valeur obtenue dans le domaine $0.4 < \Phi < 0.5$) comme on peut l'apprécier à l'aide de la figure A.9. De ce fait, l'emploi de l'une ou l'autre des deux expressions n'a aucune incidence sur les évaluations expérimentales et les comparaisons avec les simulations numériques. Nous avons donc conservé la formulation de Landau pour la détermination des indices de réfraction des phases micellaires en équilibre thermodynamique pour des températures supérieures à la température critique.

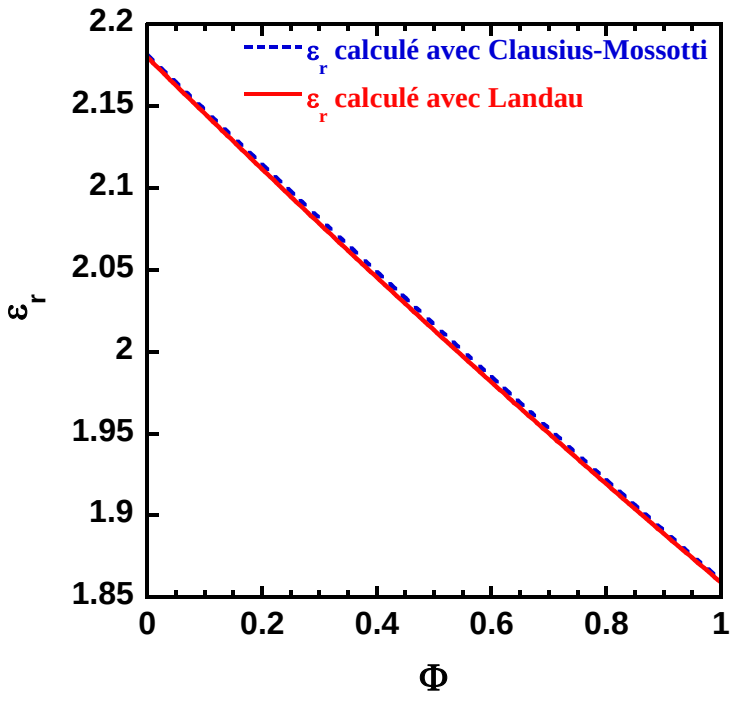


Fig. A.9 – *Représentation de l'évolution de la permittivité diélectrique relative de la solution mère ε_r en fonction de la concentration micellaire Φ. La courbe en pointillés correspond au calcul réalisé à l'aide de la formule de Clausius–Mossotti (A.41) alors que celle en trait plein est issue du calcul de la permittivité diélectrique relative donné par l'expression de Landau (A.44).*

A.2.5 Caractéristiques diffusives et thermiques de l'échantillon critique

Mesures de la turbidité de la microémulsion quasi–critique

Au voisinage du point critique de démixtion, la microémuslion quasi–critique revêt généralement une apparence bleutée caractéristique du phénomène d'opalescence critique. Il en résulte que la lumière traversant ce milieu est fortement atténuée par la diffusion isotrope. Cette diffusion isotrope provient des fluctuations de densité qui deviennent extrêmement importantes à l'approche du point critique de démixtion. Dans les années 1990,

E. Freysz a réalisé au cours de sa thèse d'État [98] différentes mesures d'intensité diffusée et de turbidité sur ce système de phases micellaires de microémulsion. Nous reportons ici brièvement les résultats obtenus.

L'origine de la lumière diffusée sont les fluctuations de la densité locale de la polarisation du milieu que l'on peut noter $\overrightarrow{P} = \varepsilon_r \overrightarrow{E}$. Par cette simple expression, il ressort immédiatement que la lumière diffusée résulte principalement des fluctuations locales de la constante diélectrique relative ε_r et donc des fluctuations de l'indice de réfraction de la phase micellaire par rapport à la phase continue d'huile ($\varepsilon_r = n^2$).
L'atténuation de l'onde incidente lors de son parcours dans l'échantillon est également à prendre en compte lorsqu'on estime l'intensité diffusée par l'échantillon. En effet, lorsque la lumière incidente parcourt une distance L dans le milieu qui la diffuse sans absorption, son intensité est atténuée d'un facteur $\exp(-\tau L)$ avec τ représentant la turbidité du milieu ($\tau = -\frac{1}{I}\left(\frac{\mathrm{d}I}{\mathrm{d}z}\right)$). Les mesures de turbidité sont indispensables car elles fournissent à la fois des informations sur les corrections à apporter à la mesure de la lumière diffusée et d'autre part permettent de rendre compte du comportement critique au voisinage du point critique.
En utilisant la théorie de la lumière diffusée par des fluctuations critiques, développée par Ornstein et Zernike au début du $XX^{\text{ème}}$ siècle, Puglielli & Ford dans les années 1970 ont calculé la turbidité d'un fluide quasi–critique (le SF_6 proche du point critique) [69] :

$$\tau = \frac{\pi^3}{\lambda_0^4}\left(\Phi\frac{\partial n}{\partial \Phi}\bigg|_T\right)^2 k_B T \kappa_T(k=0)\left(\frac{2\alpha^2+2\alpha+1}{\alpha^3}\ln(1+2\alpha) - 2\frac{1+\alpha}{\alpha^2}\right), \tag{A.45}$$

où $\alpha = 2(k\xi)^2$, $k = \frac{2\pi n}{\lambda_0}$, λ_0 est la longueur d'onde dans le vide de la lumière incidente et ξ la longueur de corrélation des fluctuations de densité. E. Freysz a réalisé des mesures de turbidité pour différentes longueurs d'ondes pour des phases micellaires de microémulsion de compostion très proche de celle utilisée dans cette thèse (71.4% de toluène, 8.5% d'eau, 3.95% de SDS et 16.15% de n–butanol–1). La composante continue de la compressibilité osmotique thermodynamique de la microémulsion, $\kappa(k=0)$, s'écrit :

$$\kappa(k=0) = \frac{1}{\Phi}\frac{\partial \Phi}{\partial \Pi}\bigg|_T = \frac{1}{\Phi^2}\frac{\partial \Phi}{\partial \mu}\bigg|_T. \tag{A.46}$$

où Φ représente la fraction volumique en micelles, Π, la pression osmotique et μ le potentiel chimique. En utilisant la relation existant entre la compressibilité osmotique $\kappa_T(k=0)$ et la susceptibilité osmotique χ_T : $\chi_T = \frac{\partial \Phi}{\partial \mu}\Big|_T = \Phi^2 \kappa_T(k=0)$, on peut réécrire la turbidité en fonction de la susceptibilité osmotique telle que :

$$\tau = \frac{\pi^3}{\lambda_0^4}\left(\frac{\partial n}{\partial \Phi}\bigg|_T\right)^2 k_B T \chi_T\left(\frac{2\alpha^2+2\alpha+1}{\alpha^3}\ln(1+2\alpha) - 2\frac{1+\alpha}{\alpha^2}\right). \tag{A.47}$$

Ce qui permet d'utiliser la loi d'échelle critique concernant la susceptibilité osmotique :

$$\chi_T^{\pm} = \chi_{T0}^{\pm}\left(\frac{T-T_C}{T_C}\right)^{-\gamma}, \tag{A.48}$$

où $\gamma = 1.24$ et χ_{T0}^{+}, l'amplitude critique de la susceptibilité osmotique. R. Wunenburger *et al.* [67] ont repris les résultats de E. Freysz qu'ils ont ajusté avec A.45 et les loi

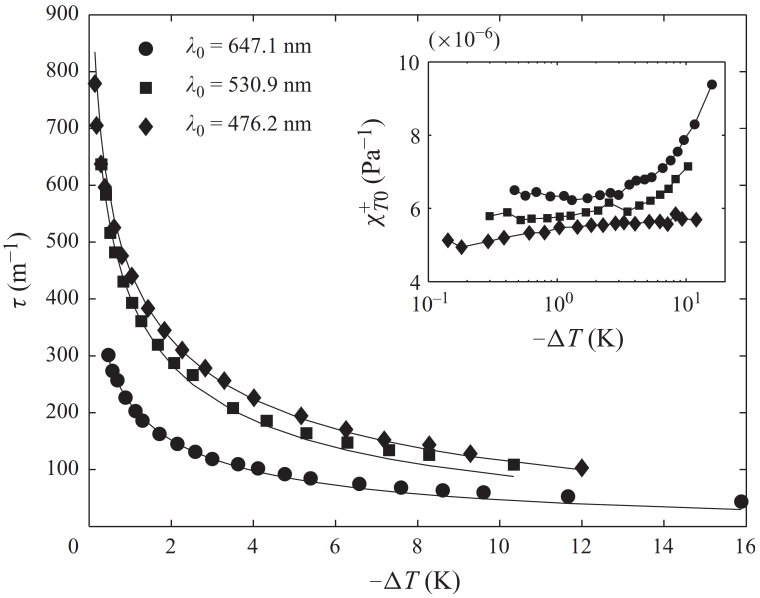


Fig. A.10 – *Mesures de la turbidité de la microémulsion quasi–critique en fonction de l'écart à la température critique pour trois longueurs d'ondes différentes de la lumière incidente. Le graphique inséré représente les variations de* $\tau\left(|\Delta T|/T_C\right)^{\gamma}/\tau_{exp}$ *en fonction de l'écart à la température critique qui proche de celle–ci est équivalent à l'amplitude critique de la susceptibilité osmotique* χ_{T0}^{+}. *[67]*

d'échelles A.31 et A.48 afin de déterminer les températures critiques utilisées par E. Freysz et ainsi ajuster les mesures de turbidité afin d'en déduire l'amplitude critique de la susceptibilité osmotique χ_{T0}^{+} et de la compressibilité osmotique κ_{T0}^{+}. Le graphique en insert de la figure A.10 représente les variations de $\tau\left(|\Delta T|/T_C\right)^{\gamma}/\tau_{exp}$ en fonction de l'écart à la température critique ($-\Delta T = T_C - T$). Cette quantité doit être constante et égale à l'amplitude critique de la susceptibilité osmotique χ_{T0}^{+} lorsque la susceptibilité osmotique χ_T obéit à la loi d'échelle A.48 de façon asymptotique, ce qui veut dire proche de la température critique T_C. La valeur de χ_{T0}^{+} déduite de ces ajustements (avec les paramètres d'ajustements récapitulés dans le tableau A.4) est $\chi_{T0}^{+} = 5.78.10^{-6}$ Pa^{-1} avec 10% de précision et $\chi_{T0}^{+} = \chi_{T0}^{-} \times (4.3 \pm 0.3)$.

λ_0 (nm)	647.1	530.9	476.2
ξ_0^{+} (Å)	44.2	38.4	42.5
T_C (°C)	34.3	34.2	34.0

Tab. A.4 – *Paramètres utilisés pour ajuster les mesures de turbidité de E. Freysz [98].*

Viscosité dynamique de la microémulsion

La viscosité dynamique de la microémulsion et son comportement en température dans la partie monophasique a été mesurée par E. Freysz [98] :

$$\eta(T) = \left[1.934 - 0.019 \times (T(\mathrm{K}) - 273)\right].10^{-3}\ \mathrm{Pa.s.} \tag{A.49}$$

La loi d'échelle critique de la viscosité dynamique est donnée par :

$$\eta = \eta_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C} \right)^{-\eta}, \tag{A.50}$$

avec l'exposant critique $\eta = 0.04$. À la température critique de démixtion des échantillons ($T_C = 308$ K), la valeur de la viscosité dynamique est de :

$$\eta = 1.269.10^{-3} \text{ Pa.s.} \tag{A.51}$$

Les fractions volumiques en micelles de chaque phase de l'échantillon démixté sont assez faibles pour considérer un comportement newtonien du fluide. Le comportement en température des viscosités dynamiques de chaque phase de l'échantillon dans la zone diphasique est extrapolé à partir du comportement dans la région monophasique A.49. En utilisant la relation d'Einstein, valide pour de faibles fractions volumiques de sphères solides en suspension, on trouve que [67] :

$$\eta_i(T) = [1.460 - 0.014 \times (T(\text{K}) - 273)] \, (1 + 2.5\Phi_i) \, .10^{-3} \text{ Pa.s}, \; i = 1, \; 2. \tag{A.52}$$

Caractéristiques thermiques

Par le caractère turbide des phases micellaires de la microémulsion utilisée, nous sommes en droit de nous interroger sur l'absorption du mélange à la longueur d'onde utilisée. E. Freysz [98] a évalué séparemment les coefficients d'absorption des différents constituants du mélange intitial à l'aide d'un montage optique de type interféromètre de Mach–Zhender. Les mesures ont été réalisées pour un laser Argon ionisé Ar^+ de longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = 5145$ Å. À cette longueur d'onde, l'absorption du surfactant SDS est négligeable et donc l'absorption du mélange Eau+SDS fut prise en considération. Dans le tableau A.5 sont récapitulées les absorptions des différents constituants du mélange à cette longueur d'onde ainsi que leurs concentrations massiques respectives.

Constituants	**Concentration massique**	**Absorption (en** cm^{-1}**)**
Toluène	69.6%	$\alpha_{Toluène} = 1.92.10^{-4}$
Eau+SDS	9.34%	$\alpha_{Eau+SDS} = (4.4 \pm 0.4) \, .10^{-4}$
n–butanol–1	16.75%	$\alpha_{Butanol} = 7.6.10^{-4}$

TAB. A.5 – *Concentrations massiques et mesures expérimentales des coefficients d'absorption des différents constituants du mélange initial pour une longueur d'onde de* $\lambda_0 = 5145$ Å. *[98]*

En pondérant le coefficient d'absorption de chaque constituant par sa fraction massique, on obtient le coefficient d'absorption de la microémulsion quasi–critique utilisée :

$$\alpha_{microémulsion} = [(1.92 \times 0.696) + (4.4 \times 0.0934) + (7.6 \times 0.1675)] \, .10^{-4} \text{ cm}^{-1}, \tag{A.53}$$

$$\alpha_{microémulsion} = 3.02.10^{-4} \text{ cm}^{-1}, \tag{A.54}$$

L'absorption de la microémulsion à la longueur d'onde utilisée est donc très faible. De ce fait, nous ne nous attendons pas à observer d'effet thermique lors de nos expériences.

En l'absence de mesures spécifiques de la conductivité thermique Λ et de la diffusivité thermique D_T du milieu, nous admettrons que la conductivité et la diffusivité thermique

du système micellaire sont très proches de celles du constituant majoritaire, le toluène. Les valeurs de ces grandeurs pour le toluène, à température ambiante, sont disponible dans la littérature [104] :

$$\Lambda_{microémulsion} = 1.28.10^{-3}\ \mathrm{W.cm^{-1}.K^{-1}}, \tag{A.55}$$

$$D_{microémulsion} = 0.882.10^{-3}\ \mathrm{cm^2.s^{-1}}. \tag{A.56}$$

A.2.6 Protocole expérimental de la réalisation des échantillons critiques

Comme nous l'avons évoqué plus haut, nous réalisons une solution mère à partir des compositions détaillées dans le tableau A.2. Une fois cette solution mère réalisée, une dilution en toluène est effectuée dans cinq tubes différents comme indiquée dans le tableau A.3. Ces tubes sont ensuite fermés hermétiquement et placés dans un bain thermostaté afin de déterminer la température de démixtion réelle ainsi que le caractère critique de l'échantillon préparé en mesurant les volumes des phases en présence après démixtion. Le point crucial à la bonne réalisation de ces différentes étapes est une pesée des plus rigoureuses des différents constituants du mélange. Des erreurs de pesée entraînent des températures de démixtion trop élevées et des échantillons non critiques.

Lorsqu'un « bon » échantillon est trouvé (généralement le tube n°3 lors de l'ajout du toluène), on procède au remplissage d'un lot de cellules de spectroscopie Hellma® de dimensions (4 cm × 1 cm × e), où e représente le trajet optique (épaisseur de la cellule) qui peut être de 1 mm ou 2 mm. Les effets parasites de surface étant plus importants dans le cas d'une cellule d'épaisseur $e = 1$ mm, nous avons privélégié le remplissage de cellules d'épaisseur $e = 2$ mm présentant une meilleure « tenue » dans le temps. En effet, malgré le fait que les cellules soient scellées à l'aide d'une résine silicone (CAF4), l'échantillon s'évapore petit à petit et perd son caractère critique. Cette dernière remarque conduit à la conclusion que les expériences avec ce type d'échantillon doivent être réalisées le plus vite possible (durée de vie moyenne d'un échantillon en cellule d'épaisseur $e = 2$ mm $\sim$ 1 semaine). D'autre part, la salle expérimentale où les échantillons sont stockés doit être régulée à une température maximale de l'ordre de 20°C afin de réduire cette évaporation des échantillons. Ceci conduit à l'anecdote que les expériences réalisées en été sont beaucoup moins fructueuses que celles réalisées en hiver !

Enfin, on sélectionne une des cellules ainsi préparées que l'on place dans le four du dispositif expérimental régulé en température avec une précision de 0.05°C. La température effective de démixtion peut varier un peu entre celle déterminée pour les tubes d'échantillons dans le bain thermostaté et celle pour les cellules dans le four du dispositif expérimental. Il convient donc pour chaque cellule d'effectuer à nouveau cette recherche de température effective de démixtion. La détermination visuelle de la démixtion ou non de l'échantillon est garantie par l'observation de la diffusion du faisceau laser traversant la solution liée à l'opalescence critique. En effet, si la température appliquée en consigne au four du montage expérimental est inférieure à la température de démixtion, nous observons très nettement la tache centrale du mode gaussien TEM_{00} du faisceau laser utilisé. Alors que lorsque cette température est supérieure à la température de démixtion de l'échantillon, lors de la démixtion de celui–ci, le faisceau laser est diffusé dans toutes

les directions de l'espace. Par cette technique expérimentale associée à une méthode de dichotomie en température, nous obtenons la température de démixtion de l'échantillon utilisé pour l'expérience. Plus le caractère critique de l'échantillon sera bon, ainsi que son remplissage en cellule, plus la température de démixtion sera proche de celle trouvée lors des tests en température des tubes dans le bain thermostaté.

Bibliographie

[1] J. Eggers. Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows. *Rev. Mod. Phys.* 69, 865–930, 1997.

[2] H. Q. Yang. Asymmetric instability of a liquid jet. *Phys. Fluids A* 4, 681-689, 1992.

[3] J. Eggers et E. Villermaux. Physics of liquid jets. *Reports on Progress in Physics* 71, 036601, 2008.

[4] F. Savart. *Mémoire sur la constitution des veines liquides lancées par des orifices circulaires en mince paroi.* Ann. Chim. Phys., 1833.

[5] J. Plateau. *Statique Expérimentale et Théorique des Liquides Soumis aux seules Forces Moléculaires.* Paris, 1873.

[6] Lord Rayleigh. On the instability of jets. *Proc. London Math. Soc.* 10, 4–13, 1878.

[7] Lord Rayleigh. On the capillary phenomena of jets. *Proc. R. Soc. Lond.* 29, 71–97, 1879.

[8] S. Tomotika. On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid. *Proc. Roy. Soc. London A* 150, 322–337, 1935.

[9] A. M. Gañán Calvo. Generation of Steady Liquid Microthreads and Micron-Sized Monodisperse Sprays in Gas Streams. *Phys. Rev. Lett.* 80, 285–288, 1998.

[10] A. M. Gañán Calvo et J. M. Gordillo. Perfectly Monodisperse Microbubbling by Capillary Flow Focusing. *Phys. Rev. Lett.* 87, 274501, 2001.

[11] A. M. Gañán Calvo. Perfectly monodisperse microbubbling by capillary flow focusing : An alternate physical description and universal scaling. *Phys. Rev. E* 69, 027301, 2004.

[12] A. M. Gañán Calvo, M. A. Herrada et P. Garstecki. Bubbling in Unbounded Coflowing Liquids. *Phys. Rev. Lett.* 96, 124504, 2006.

[13] I. Cohen et S. R. Nagel. Scaling at the Selective Withdrawal Transition through a Tube Suspended above the Fluid Surface. *Phys. Rev. Lett.* 88, 074501, 2002.

[14] I. Cohen. Scaling and transition structure dependence on the fluid viscosity ratio in the selective withdrawal transition. *Phys. Rev. E* 70, 026302, 2004.

[15] S. Courrech du Pont et J. Eggers. Sink Flow Deforms the Interface Between a Viscous Liquid and Air into a Tip Singularity. *Phys. Rev. Lett.* 96, 034501, 2006.

[16] M. K. Berkenbusch, I. Cohen et W. W. Zhang. Liquid interfaces in viscous straining flows : numerical studies of the selective withdrawal transition. *Journal of Fluid Mechanics* 613, 171-203, 2008.

[17] Abbé NOLLET. *Recherches sur les causes particulières des phénomènes électriques, et sur les effets nuisibles ou avantageux qu'on peut en attendre.* Les Frères Guérin, 1749.

[18] J. ZELENY. Instability of Electrified Liquid Surfaces. *Phys. Rev.* 10, 1917.

[19] G. TAYLOR. Disintegration of Water Drops in an Electric Field. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 280, 383-397, 1964.

[20] G. TAYLOR. Electrically Driven Jets. *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* 313, 453-475, 1969.

[21] J. D. SHERWOOD. Breakup of fluid droplets in electric and magnetic fields. *Journal of Fluid Mechanics* 188, 133-146, 1988.

[22] F. K. WOHLHUTER et O. A. BASARAN. Shapes and stability of pendant and sessile dielectric drops in an electric field. *Journal of Fluid Mechanics* 235, 481-510, 1992.

[23] A. RAMOS et A. CASTELLANOS. Conical points in liquid-liquid interfaces subjected to electric fields. *Physics Letters A* 184, 268 - 272, 1994.

[24] A. M. Gañán CALVO. Cone-Jet Analytical Extension of Taylor's Electrostatic Solution and the Asymptotic Universal Scaling Laws in Electrospraying. *Phys. Rev. Lett.* 79, 217–220, 1997.

[25] H. LI, T. C. HALSEY et A. LOBKOVSKY. Singular Shape of a Fluid Drop in an Electric or Magnetic Field. *EPL (Europhysics Letters)* 27, 575, 1994.

[26] H. A. STONE, J. R. LISTER et M. P. BRENNER. Drops with conical ends in electric and magnetic fields. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 455, 329-347, 1999.

[27] D. A. SAVILLE. ELECTROHYDRODYNAMICS :The Taylor-Melcher Leaky Dielectric Model. *Annual Review of Fluid Mechanics* 29, 27-64, 1997.

[28] J. Fernández de la MORA. The Fluid Dynamics of Taylor Cones. *Annual Review of Fluid Mechanics* 39, 217-243, 2007.

[29] W. WOOD et A. L. LOOMIS. The physical and biological effects of high–frequency sound–waves of great intensity. *Phil. Mag. S. 7* 4, 1927.

[30] S. A. ELROD, B. HADIMIOGLU, B. T. KHURI-YAKUB, E. G. RAWSON, E. RICHLEY, C. F. QUATE, N. N. MANSOUR et T. S. LUNDGREN. Nozzleless droplet formation with focused acoustic beams. *J. Appl. Phys.* 65, 3441-3447, 1989.

[31] C.-Y. LEE, W. PANG, H. YU et E. S. KIM. Subpicoliter droplet generation based on a nozzle-free acoustic transducer. *Applied Physics Letters* 93, 034104, 2008.

[32] N. BERTIN. *Déformations d'interfaces liquides guidantes par la pression de radiation optique.* Thèse de Doctorat, Université Bordeaux I, École Doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur, 2011.

[33] B. ISSENMANN, A. NICOLAS, R. WUNENBURGER, S. MANNEVILLE et J.-P. DELVILLE. Deformation of acoustically transparent fluid interfaces by the acoustic radiation pressure. *EPL (Europhysics Letters)* 83, 34002, 2008.

[34] A. ASHKIN. Acceleration and Trapping of Particles by Radiation Pressure. *Phys. Rev. Lett.* 24, 156–159, 1970.

[35] A. Ashkin et J. M. Dziedzic. Observation of Resonances in the Radiation Pressure on Dielectric Spheres. *Phys. Rev. Lett.* 38, 1351–1354, 1977.

[36] A. Ashkin, J. M. Dziedzic et P. W. Smith. Continuous-wave self-focusing and self-trapping of light in artificial Kerr media. *Opt. Lett.* 7, 276–278, 1982.

[37] A. Ashkin, J. M. Dziedzic, J. E. Bjorkholm et S. Chu. Observation of a single-beam gradient force optical trap for dielectric particles. *Opt. Lett.* 11, 288–290, 1986.

[38] J.-Z. Zhang et R. K. Chang. Shape distortion of a single water droplet by laser-induced electrostriction. *Opt. Lett.* 13, 916–918, 1988.

[39] M. Duocastella, J. Fernández-Pradas, P. Serra et J. Morenza. Jet formation in the laser forward transfer of liquids. *Applied Physics A : Materials Science & Processing* 93, 453-456, 2008.

[40] P. Serra, J. M. Fernández-Pradas, F. X. Berthet, M. Colina, J. Elvira et J. L. Morenza. Laser direct writing of biomolecule microarrays. *Applied Physics A : Materials Science & Processing* 79, 949-952, 2004.

[41] P. K. Wu, B. R. Ringeisen, J. Callahan, M. Brooks, D. M. Bubb, H. D. Wu, A. Piqué, B. Spargo, R. A. McGill et D. B. Chrisey. The deposition, structure, pattern deposition, and activity of biomaterial thin-films by matrix-assisted pulsed-laser evaporation (MAPLE) and MAPLE direct write. *Thin Solid Films* 398-399, 607 - 614, 2001.

[42] P. Serra, M. Colina, J. M. Fernández-Pradas, L. Sevilla et J. L. Morenza. Preparation of functional DNA microarrays through laser-induced forward transfer. *Applied Physics Letters* 85, 1639-1641, 2004.

[43] A. Vogel, P. Schweiger, A. Frieser, M. N. Asiyo et R. Birngruber. Intraocular Nd :YAG laser surgery : laser-tissue interaction, damage range, and reduction of collateral effects. *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26, 2240 -2260, 1990.

[44] S. T. Thoroddsen, K. Takehara, T. G. Etoh et C.-D. Ohl. Spray and microjets produced by focusing a laser pulse into a hemispherical drop. *Physics of Fluids* 21, 112101, 2009.

[45] M. J. Renn, R. Pastel et H. J. Lewandowski. Laser Guidance and Trapping of Mesoscale Particles in Hollow-Core Optical Fibers. *Phys. Rev. Lett.* 82, 1574–1577, 1999.

[46] M. Ozkan, M. Wang, C. Ozkan, R. Flynn et S. Esener. Optical Manipulation of Objects and Biological Cells in Microfluidic Devices. *Biomedical Microdevices* 5, 61-67, 2003.

[47] T. Kaneta, Y. Ishidzu, N. Mishima et T. Imasaka. Theory of Optical Chromatography. *Analytical Chemistry* 69, 2701-2710, 1997.

[48] S. J. Hart, A. Terray, J. Arnold et T. A. Leski. Sample concentration using optical chromatography. *Optics Express* 15, 2724–2731, 2007.

[49] S. J. Hart et A. V. Terray. Refractive-index-driven separation of colloidal polymer particles using optical chromatography. *Applied Physics Letters* 83, 5316-5318, 2003.

[50] A. A. Lall, A. Terray et S. J. Hart. On-the-fly cross flow laser guided separation of aerosol particles based on size, refractive index and density–theoretical analysis. *Optics Express* 18, 26775–26790, 2010.

[51] A. CASNER. *Déformations, manipulations et instabilités d'interfaces liquides induites par la pression de radiation d'une onde laser.* Thèse de Doctorat, Université Bordeaux I, École Doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur, 2002.

[52] I. BREVIK. Experiments in phenomenological electrodynamics and the electromagnetic energy-momentum tensor. *Physics Reports* 52, 133 - 201, 1979.

[53] I. BREVIK et R. KLUGE. Oscillations of a water droplet illuminated by a linearly polarized laser pulse. *J. Opt. Soc. Am. B* 16, 976–985, Jun 1999.

[54] G. Da COSTA, F. BENTOLILA, E. RUIZ et H. GALAN. Interaction between light beams in thermocapillary liquid media. *Journal of Optics* 14, 179, 1983.

[55] G. Da COSTA. Optical visualization of the velocity distribution in a laser-induced thermocapillary liquid flow. *Appl. Opt.* 32, 2143–2151, Apr 1993.

[56] R. D. BOYD et C. M. VEST. Onset of convection due to horizontal laser beams. *Applied Physics Letters* 26, 287-288, 1975.

[57] A. ASHKIN et J. M. DZIEDZIC. Radiation Pressure on a Free Liquid Surface. *Phys. Rev. Lett.* 30, 139–142, 1973.

[58] R. N. C. PFEIFER, T. A. NIEMINEN, N. R. HECKENBERG et H. RUBINSZTEIN-DUNLOP. Colloquium : Momentum of an electromagnetic wave in dielectric media. *Rev. Mod. Phys.* 79, 1197–1216, 2007.

[59] S. M. BARNETT. Resolution of the Abraham-Minkowski Dilemma. *Phys. Rev. Lett.* 104, 070401, 2010.

[60] S. M. BARNETT et R. LOUDON. The enigma of optical momentum in a medium. *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 368, 927-939, 2010.

[61] J.-P. DELVILLE, M. Robert de SAINT VINCENT, R. D. SCHROLL, H. CHRAIBI, B. ISSENMANN, R. WUNENBURGER, D. LASSEUX, W. W. ZHANG et E. BRASSELET. Laser microfluidics : fluid actuation by light. *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* 11, 034015, 2009.

[62] J.-P. DELVILLE, A. CASNER, R. WUNENBURGER et I. BREVIK. Optical Deformability of Fluid Interfaces. *Trends in Electro-Optics Research* , 2004.

[63] H. CHRAIBI, D. LASSEUX, E. ARQUIS, R. WUNENBURGER et J.-P. DELVILLE. Simulation of an optically induced asymmetric deformation of a liquid-liquid interface. *European Journal of Mechanics - B/Fluids* 27, 419 - 432, 2008.

[64] H. CHRAIBI, D. LASSEUX, R. WUNENBURGER, E. ARQUIS et J.-P. DELVILLE. Optohydrodynamics of soft fluid interfaces : Optical and viscous nonlinear effects. *Eur. Phys. J. E* 32, 43-52, 2010.

[65] A. CASNER, J.-P. DELVILLE et I. BREVIK. Asymmetric optical radiation pressure effects on liquid interfaces under intense illumination. *J. Opt. Soc. Am. B* 20, 2355–2362, 2003.

[66] A. Y. SAVCHENKO, N. V. TABIRYAN et B. Y. ZEL'DOVICH. Transfer of momentum and torque from a light beam to a liquid. *Phys. Rev. E* 56, 4773–4779, 1997.

[67] R. WUNENBURGER, B. ISSENMANN, E. BRASSELET, C. LOUSSERT, V. HOURTANE et J.-P. DELVILLE. Fluid flows driven by light scattering. *Journal of Fluid Mechanics* 666, 273-307, 2011.

[68] R. D. Schroll, R. Wunenburger, A. Casner, W. W. Zhang et J.-P. Delville. Liquid Transport due to Light Scattering. *Phys. Rev. Lett.* 98, 133601, 2007.

[69] V. G. Puglielli et N. C. Ford. Turbidity Measurements in $SF6$ Near Its Critical Point. *Phys. Rev. Lett.* 25, 143–147, 1970.

[70] B. J. Berne et R. Pecora. *Dynamic Light Scattering.* Dover Publication Inc., 2000.

[71] H. E. Stanley. *Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena.* Oxford University Press, 1987.

[72] M. E. Fisher. Correlation Functions and the Critical Region of Simple Fluids. *J. Math. Phys* 5, 944-962, 1964.

[73] P.G. de Gennes, F. Brochard-Wyart et D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes.* Belin, 2002.

[74] H. Chraibi, R. Wunenburger, D. Lasseux, J. Petit et J.-P. Delville. Eddies and interface deformations induced by optical streaming. *Journal of Fluid Mechanics* 688, 195-218, 2011.

[75] P. A. Winsor. Hydrotropy, solubilisation and related emulsification processes. *Trans. Faraday Soc.* 44, 376-398, 1948.

[76] O. Ghosh et C. A. Miller. Liquid-crystalline and microemulsion phase behavior in alcohol-free Aerosol-OT/oil/brine systems. *The Journal of Physical Chemistry* 91, 4528-4535, 1987.

[77] B. P. Binks, H. Kellay et J. Meunier. Effects of Alkane Chain Length on the Bending Elasticity Constant K of AOT Monolayers at the Planar Oil-Water Interface. *EPL (Europhysics Letters)* 16, 53, 1991.

[78] B.P. Binks, H. Kellay et J. Meunier. Wetting properties of n-alkanes on AOT monolayers at the brine-air interface. *Physical Review Letters* 69, 1220, 1992.

[79] H. Kellay, T. Hendrikx, J. Meunier, B. P. Binks et L. T. Lee. Local properties of an AOT monolayer at the oil-water interface : neutron scattering experiments. *J. Phys. II France* 3, 1747-1757, 1993.

[80] B. P. Binks, W-G. Cho, P. D. I. Fletcher et D. N. Petsev. Stability of Oil-in-Water Emulsions in a Low Interfacial Tension System. *Langmuir* 16, 1025-1034, 2000.

[81] A. Casner et J.-P. Delville. Laser-Induced Hydrodynamic Instability of Fluid Interfaces. *Phys. Rev. Lett.* 90, 144503, 2003.

[82] R. Wunenburger, A. Casner et J.-P. Delville. Light-induced deformation and instability of a liquid interface. I. Statics. *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* 73, 036314, 2006.

[83] R. Wunenburger, A. Casner et J.-P. Delville. Light-induced deformation and instability of a liquid interface. II. Dynamics. *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* 73, 14, 2006.

[84] A. Chater. Bistabilité de jets liquides induits par la pression de radiation d'une onde laser. Mémoire de DEA., Université Bordeaux I, 2003.

[85] H. Chraibi. *Simulation de l'opto–hydrodynamique des interfaces liquides.* Thèse de Doctorat, Université Bordeaux I, École Doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur, 2007.

[86] F. Blanchette et W. W. Zhang. Force Balance at the Transition from Selective Withdrawal to Viscous Entrainment. *Phys. Rev. Lett.* 102, 144501, 2009.

[87] R. M. S. M. Schulkes. The evolution of capillary fountains. *Journal of Fluid Mechanics* 261, 223-252, 1994.

[88] C. Clanet. On large–amplitude pulsating fountains. *Journal of Fluid Mechanics* 366, 333-350, 1998.

[89] P. Friedman, V. Vadakoot, W. Meyer et S. Carey. Instability threshold of a negatively buoyant fountain. *Experiments in Fluids* 42, 751-759, 2007.

[90] M. Robert de Saint Vincent. *Écoulements microfluidiques pilotés sans contact par une onde laser.* Thèse de Doctorat, Université Bordeaux I, École Doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur, 2010.

[91] J. Israelachvili. *Intermolecular and Surface Forces.* Academic Press, seconde édition, 1991.

[92] S. Arditty. *Fabrication, stabilité et propriétés rhéologiques des émulsions stabilisées par des particules colloïdales.* Thèse de Doctorat, Université Bordeaux 1, École Doctorale des Sciences Chimiques, 2004.

[93] H. Kellay, B.P. Binks, Y. Hendrikx, L.T. Lee et J. Meunier. Properties of surfactant monolayers in relation to microemulsion phase behaviour. *Advances in Colloid and Interface Science* 49, 85 - 112, 1994.

[94] M. E. Edwards, X. L. Wu, J.-S. Wu, J. S. Huang et H. Kellay. Electric-field effects on a droplet microemulsion. *Phys. Rev. E* 57, 797–803, 1998.

[95] H. Kellay. *Relations entre les propriétés d'un film d'AOT et la structure des phases dans le système Saumure-AOT-n-alcanes.* Thèse de Doctorat, Université de Paris-Sud Centre d'Orsay, 1993.

[96] D. Roux. *Influence des interactions intermicellaires sur le comportement critique des microémulsions et leur digramme de phase.* Thèse de Doctorat d'Etat, Université Bordeaux I, 1984.

[97] B. Jean-Jean. *Contributions thermique et électrostrictive aux non-linéarités optiques géantes observées dans les microémulsions critiques.* Thèse de Doctorat, Université Bordeaux I, 1987.

[98] E. Freysz. *Étude des non linéarités optiques dans les mélanges liquides binaires critiques.* Thèse de Doctorat d'Etat, Université Bordeaux I, 1990.

[99] M. R. Moldover. Interfacial tension of fluids near critical points and two-scale-factor universality. *Phys. Rev. A* 31, 1022–1033, 1985.

[100] W. Heller. Remarks on Refractive Index Mixture Rules. *The Journal of Physical Chemistry* 69, 1123-1129, 1965.

[101] P. Brocos, A. Pineiro, R. Bravo et A. Amigo. Refractive indices, molar volumes and molar refractions of binary liquid mixtures : concepts and correlations. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 5, 550-557, 2003.

[102] W. V. Andrew, T. B. K. Khoo et D. T. Jacobs. Testing the Lorentz-Lorenz relation in the near-critical binary fluid mixture isobutyric acid and water. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 85, 3985-3991, 1986.

[103] L. Landau et E. Lifchitz. *Électrodynamique des milieux continus.* Éditions MIR, 1969.

[104] P. Calmettes et C. Laj. Simultaneous measurments of the thermal diffusion coefficient and of the thermal conductivity of transparent media, by means of a thermal lens effects. *J. Phys. Colloques* 33, C1-125-C1-129, 1972.

Résumé

Ce travail de thèse est consacré à l'étude des déformations d'interfaces liquides par l'action d'une onde laser continue. Nous démontrons que la diffusion élastique d'une onde laser dans un milieu turbide induit une force diffusive en volume qui donne naissance à des écoulements permanents au sein du fluide. Les contraintes visqueuses associées à ces écoulements, à l'approche d'une interface liquide molle, peuvent engendrer la déformation de celle–ci jusqu'à la déstabiliser et former un jet. Dans ce manuscrit, nous présentons une étude expérimentale de ce nouveau couplage lumière–fluide complétée par des simulations numériques. Nous présentons également une étude des déformations et instabilité d'interfaces par la pression de radiation optique, due au contraste d'indice de réfraction entre les deux phases liquides en coexistence, dans des milieux transparents. Nous avons enfin analysé la combinaison de ces deux couplages dans les milieux turbides, force diffusive et pression de radiation participant différemment à la déformation d'interfaces liquides. Pour ce faire, nous avons eu recours à différents systèmes fluides turbides et transparents, ayant pour particularité principale de présenter une tension interfaciale extrêmement faible.

Mots–clés : Interface liquide, laser, force diffusive, pression de radiation, déformations, instabilités, écoulements visqueux.

Abstract

This thesis work is dedicated to liquid interface deformations from a continuous laser wave. We demonstrate that elastic scattering of the incident wave in turbid medium induces a scattering force density giving birth to permanent bulk flows in the fluid. Near a soft interface, viscous stresses associated to these flows can deform the interface up to instability and produce a liquid jet. In this manuscript, we report an experimental study dedicated to this new light–fluid coupling in combination with numerical simulations. We also study interface deformations and instability induced by radiation pressure, due to refractive index contrast between the two liquid phases in coexistence, in transparent fluids. We finally analyzed the combination of both couplings in turbid media, scattering force and radiation pressure which differently operate for the interface deformation. To do this, we used different turbid and transparent fluids systems, which have the main particularity to present very low interfacial tension.

Keywords : Liquid interface, laser, scattering force, radiation pressure, deformations, instabilities, viscous flows.

Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine (LOMA)
UMR 5798 CNRS – université Bordeaux 1 351 cours de la Libération 33405 Talence cedex