



**HAL**  
open science

# Les fluctuations de surface pour mesurer les propriétés de systèmes complexes en l'absence de sollicitation

Basile Pottier

► **To cite this version:**

Basile Pottier. Les fluctuations de surface pour mesurer les propriétés de systèmes complexes en l'absence de sollicitation. Matière Molle [cond-mat.soft]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013. Français. NNT: . tel-00936208

**HAL Id: tel-00936208**

**<https://theses.hal.science/tel-00936208>**

Submitted on 24 Jan 2014

**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.



**THESE DE DOCTORAT DE  
L'UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE**

Spécialité  
Chimie et Physico-Chimie des Polymères  
(ED 397, Physique et Chimie des Matériaux)

Présentée par  
**Basile POTTIER**

Pour obtenir le grade de  
**DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

Sujet de la thèse :

**Les fluctuations de surface pour mesurer les propriétés de  
systèmes complexes en l'absence de sollicitation**

Soutenue le 26 Novembre 2013 devant le jury composé de :

M. Ludovic BELLON  
M. Axel BUGUIN  
Mme Elisabeth CHARLAIX  
M. Christian FRETIGNY  
Mme Laurence TALINI  
M. Dimitris VLASSOPOULOS

Rapporteur  
Examineur  
Rapporteur  
Co-directeur de thèse  
Co-directrice de thèse  
Examineur







---

# Remerciements

Je tiens à remercier en tout premier lieu mes deux directeurs de thèse, Laurence Talini et Christian Frétigny, qui m'ont reçu au laboratoire et ont su m'encadrer de manière exceptionnelle. Leur complémentarité, aussi riche de qualités personnelles et de compétences scientifiques, m'a stimulé quotidiennement. Je les remercie pour leur confiance, leur très grande disponibilité, leurs conseils toujours pertinents et pour la qualité de nos discussions régulières.

Je tiens à remercier les membres de mon jury pour l'intérêt qu'ils ont témoigné à l'égard de mon travail. Merci en particulier à Elisabeth Charlaix et Ludovic Bellon d'avoir accepté de rapporter ce manuscrit et merci à Dimitris Vlassopoulos qui a enrichi la discussion par la pertinence de sa lecture et de ses questions. Enfin merci à Axel Buguin qui m'a fait l'honneur de présider ce très beau jury.

Ce travail de thèse a été effectué au sein d'un laboratoire extrêmement dynamique, composé de personnes ayant contribué aux résultats présentés et que je souhaite remercier : Guylaine pour son expertise en rhéologie, Ludovic pour la conception et la réalisation de pièces sur-mesure, Freddy pour la synthèse de l'époxy. Merci également à Antoine Chateauminois pour ses précieux conseils d'expérimentateur chevronné. Mes pensées vont aussi à ceux dont l'apport, peut-être moins direct, est tout aussi indispensable : Annie, Gilles, Flore, Armand et Pierre, merci à vous. Je présente mes vifs remerciements aux stagiaires ayant contribué à ce travail de thèse : Hadrien Bense, pour l'élaboration de la version « éclatée » de l'expérience, Nariaki Sakai, pour les délicates mesures en utilisant un réseau, Roger Yu, pour son travail à l'origine de la collaboration avec Saint Gobain Recherche. Je remercie également Edouard Daviaud et Yu Fanf, pour leur travail sur l'étude numérique et expérimentale de l'effet thermocapillaire.

Et puis évidemment je remercie toutes les personnes qui ont fait que je garderai de ces trois années au laboratoire un excellent souvenir. Je pense d'abord à ceux qui ont partagé

## Remerciements

---

mon bureau, avec par ordre d'apparition : Toan, Peiluo, Robin puis Davide. Et merci à tous les doctorants avec lesquels j'ai vécu de très bons moments au laboratoire et à l'extérieur : Etienne, François, David, Séverine, Jennifer, Clémence, Benjamin, Aurélie, Yannick, Natasha, Xavier, Quentin, Judith, Anne-Charlotte, Jordan, Miguel.

Enfin, je remercie ma famille et mes amis pour m'avoir encouragé et soutenu tout au long de cette thèse.

---

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>I Mesure des fluctuations d'une interface par réflexion spéculaire</b>	<b>5</b>
1 Introduction . . . . .	5
2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires . . . . .	6
2.1 Modélisation d'une interface . . . . .	6
2.2 Propriétés statiques des fluctuations . . . . .	7
2.3 Dynamique, cas particulier du régime sur-amorti . . . . .	10
3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire .	17
3.1 Description du montage expérimental . . . . .	17
3.2 Acquisition et traitement du signal . . . . .	18
3.3 Description théorique du spectre mesuré . . . . .	21
3.4 Détermination de la largeur du faisceau . . . . .	27
3.4.1 Propriétés du faisceau gaussien . . . . .	27
3.4.2 Focalisation d'un faisceau gaussien . . . . .	29
3.4.3 Mesure . . . . .	31
3.5 Spectres des fluctuations pour un liquide purement visqueux . . . . .	33
3.6 Particularité de la détection à 2 quadrants . . . . .	36
3.7 Effet du réglage de la position de l'interface dans le faisceau . . . . .	36
3.8 Mesure en transmission . . . . .	41
4 Conclusion . . . . .	44
<b>II Mesure des fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique</b>	<b>47</b>
1 Introduction . . . . .	47
2 Fluctuations de surface d'un liquide peu visqueux : effet de l'inertie . . . . .	48

2.1	Propriétés dynamiques des fluctuations pour un liquide peu visqueux .	48
2.2	Spectre mesuré d'un liquide peu visqueux . . . . .	49
3	Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique . . . . .	51
3.1	Propriétés dynamiques des fluctuations pour un milieu viscoélastique .	51
3.2	Les dépendances du spectre mesurés : diagramme $ G^* $ vs $\omega$ . . . . .	52
3.3	Cas d'un solide viscoélastique : PDMS réticulé . . . . .	55
3.3.1	Spectre mesuré . . . . .	55
3.3.2	Propriétés viscoélastiques linéaires mesurées par rhéologie mécanique . . . . .	56
3.3.3	Sensibilité du spectre . . . . .	57
3.3.4	Ajustement du spectre mesuré . . . . .	59
3.3.5	Propriétés viscoélastiques linéaires déduites de l'ajustement .	60
3.3.6	Conclusion . . . . .	61
3.4	Cas de fluides complexes . . . . .	61
3.4.1	Solution d'EHUT . . . . .	62
3.4.2	Solution de micelles géantes . . . . .	69
3.5	Sensibilité à la viscoélasticité de surface . . . . .	70
3.6	Précision de la mesure des propriétés viscoélastiques . . . . .	72
4	Conclusion . . . . .	75
<b>III Fluctuations de milieux confinés</b>		<b>77</b>
1	Introduction . . . . .	77
2	Les différents types de confinements . . . . .	78
2.1	Substrat solide plan . . . . .	78
2.2	Substrat solide en relief . . . . .	85
2.3	Substrat liquide . . . . .	92
3	Mesure des fluctuations de films minces . . . . .	101
3.1	Modifications du montage expérimental . . . . .	101
3.2	Mesure de la variation d'épaisseur . . . . .	103
3.3	Sensibilité aux fluctuations avec interférences . . . . .	106
3.4	Spectres mesurés $S_{A-B}(\omega)$ et $S_{A+B}(\omega)$ . . . . .	111
3.5	Effet du confinement sur les spectres $S_{A-B}(\omega)$ et $S_{A+B}(\omega)$ . . . . .	113
3.6	Evolution des spectres avec l'épaisseur $h$ . . . . .	115
4	Contrôle du film par effet thermocapillaire . . . . .	120
4.1	Présentation de l'effet thermocapillaire . . . . .	120
4.1.1	Effet thermocapillaire induit par l'absorption d'un faisceau laser dans un film liquide . . . . .	121
4.1.2	Mesure de la déformation de la surface libre . . . . .	125

4.2	Cas du film mince sur un substrat absorbant . . . . .	127
4.2.1	Détermination du profil de température à la surface libre . . .	128
4.2.2	Problème hydrodynamique . . . . .	132
4.2.3	Résultats expérimentaux . . . . .	137
5	Résultats sur films minces . . . . .	144
5.1	Condition limite hydrodynamique . . . . .	144
5.2	Effet du glissement sur les fluctuations de surface . . . . .	147
5.3	Sensibilité du spectre mesuré au glissement . . . . .	149
5.4	Films d'huiles silicones . . . . .	151
5.4.1	A l'équilibre . . . . .	151
5.4.2	En écoulement . . . . .	159
5.5	Films d'hexadécane . . . . .	166
6	Conclusion . . . . .	168
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>171</b>
	<b>Annexes</b>	<b>175</b>
A	Calcul du spectre $S(\omega)$ . . . . .	175
B	Calcul de la fonction de pondération $\Phi(k)$ . . . . .	178
C	Sur le gap entre les quadrants . . . . .	181
D	Calcul du spectre hors du col . . . . .	185
E	Calcul du diagramme . . . . .	191
F	Prise en compte de la viscoélasticité de surface . . . . .	200
G	Calcul des intensités réfléchies avec interférences . . . . .	202
H	Calcul du spectre $S_{A+B}(\omega)$ . . . . .	204
	<b>Références bibliographiques</b>	<b>207</b>



---

# Introduction

Au repos, la surface libre d'un liquide est lisse à l'échelle macroscopique. Pourtant, l'agitation thermique entraîne des fluctuations statistiques de la position locale de l'interface, conduisant à une interface rugueuse à une échelle microscopique. Pour des valeurs usuelles d'énergie de surface, l'amplitude de ces fluctuations est très faible, la rugosité dynamique à la surface d'un liquide moléculaire est de l'ordre de quelques Ångströms. Aujourd'hui, les propriétés statistiques des fluctuations d'interface à l'équilibre sont bien établies. En effet, à partir des années 70, des expériences utilisant la diffusion de la lumière ou de rayons X par les rugosités de la surface ont permis de mesurer les fluctuations de surface de milieux allant des liquides peu visqueux aux polymères fondus [1, 2]. Ces expériences ont en particulier montré la validité du modèle des ondes capillaires jusqu'à des échelles proches des échelles moléculaires. Elles ont dans un deuxième temps été utilisées dans l'idée de révéler les propriétés des milieux fluctuants. En effet, d'après le théorème fluctuation-dissipation, si le système est à l'équilibre thermodynamique, l'évolution des fluctuations au cours du temps est gouvernée par sa réponse hydrodynamique. L'idée qu'un système s'auto révèle par ses fluctuations est particulièrement pertinente pour les systèmes de la matière molle dans lesquels l'échelle d'énergie est donnée par  $k_B T$ . Par ailleurs, ces systèmes ont la particularité de répondre fortement à toute sollicitation extérieure, ce qui les rend difficiles à caractériser par des techniques mécaniques classiques basées sur des mesures de la réponse à une sollicitation. Ces dernières années (ou décennies), différents types d'expériences mettant à profit les fluctuations thermiques ont été développés pour caractériser les systèmes de la matière molle. On peut par exemple citer les expériences basées sur la mesure de la diffusion de traceurs colloïdaux. La microrhéologie [3] consiste ainsi à déduire les propriétés de viscoélasticité linéaire d'un milieu à partir du mouvement brownien des traceurs dans ce milieu. Les fluctuations peuvent aussi révéler des propriétés hydrodynamiques : la diffusion de traceurs a servi à mesurer des longueurs de glissement de liquides à des parois solides [4]. Outre les expériences de diffusion

de surface de la lumière, d'autres moyens d'utiliser le bruit thermique sans avoir recours à des traceurs ont été développés : par exemple le « rhéomètre à contrainte nulle » dans lequel les fluctuations du liquide entraîne une fluctuation de la position angulaire d'un équipage constitué de cylindres de Couette [5], ou la mesure des fluctuations d'un micro-levier permet de caractériser la dépendance fréquentielle de la dissipation viscoélastique de ce système [6].

Dans cette thèse, qui se situe dans la lignée des expériences citées, on propose d'utiliser la mesure de la dynamique des fluctuations de surface afin de révéler les propriétés d'un milieu, qu'elles soient rhéologiques ou hydrodynamiques. Pour cela, nous avons développé une nouvelle technique optique basée sur la déflexion d'un faisceau laser réfléchi à la surface libre du milieu. Contrairement aux mesures fondées sur la diffusion de la lumière, qui permettent de travailler à mode spatial donné, le signal que nous mesurons résulte de la contribution de différents modes spatiaux. L'information spatiale est ainsi affaiblie mais la sensibilité de la détection est substantiellement amplifiée. Comme nous allons le montrer, ce gain en sensibilité permet de mesurer des effets trop faibles pour être accessibles par des expériences de diffusion, tout en restant de mise en œuvre simple. Nous verrons par exemple que notre montage détecte les fluctuations de surface de matériaux aussi rigides qu'un caoutchouc, et ce sur une large gamme de fréquences. Les longueurs d'onde des modes de surface auxquels la technique est sensible sont supérieures au micromètre. Par conséquent l'intérêt du montage conçu n'est pas de sonder des phénomènes aux interfaces à des échelles moléculaires mais de donner accès à une mesure des fluctuations facile à exploiter et qui révèle les propriétés du milieu sous jacent. Pour cela nous nous appuyons sur les descriptions de la dynamique des fluctuations de surface qui ont été développées lors de l'essor des techniques de diffusion.

Le mémoire est divisé en trois chapitres. Après avoir rappelé le modèle des ondes capillaires, le premier chapitre décrit le montage expérimental développé au laboratoire sensible aux fluctuations de surface. On présente le calcul reliant le spectre mesuré à la statistique des fluctuations de hauteur de l'interface. Afin de valider la technique et de discuter de la sensibilité du montage, on présente des mesures effectuées sur des liquides visqueux que l'on compare aux valeurs prédites par le modèle des ondes capillaires. Le second chapitre concerne les milieux viscoélastiques. Les mesures de fluctuations de surface doivent permettre de caractériser le module viscoélastique dans une large gamme de fréquences, dans un régime de viscoélasticité linéaire, et ce de façon non invasive. Les résultats sont comparés à des mesures volumiques, faites avec un rhéomètre. Le cas de milieux ayant des propriétés de surface différentes de celles du volume est également considéré. On peut s'attendre en effet à obtenir des propriétés rhéologiques différentes en surface et en volume. Dans le dernier chapitre, on s'intéresse aux fluctuations de surface de milieux dont l'épaisseur devient inférieure à la longueur d'onde caractéristique sondée. Dans ce cas, deux volets sont abordés. Le premier concerne

l'effet du confinement sur les fluctuations de surface, en fonction de la nature du substrat : solide plan, solide texturé ou liquide. Dans les conditions de confinement, les fluctuations sont également sensibles à la condition hydrodynamique entre le milieu fluctuant et son substrat. La mesure des fluctuations doit ainsi permettre de caractériser le glissement entre un liquide et une paroi solide en l'absence d'écoulement.



---

---

# Chapitre I

---

## Mesure des fluctuations d'une interface par réflexion spéculaire

### 1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de présenter le montage expérimental, développé au laboratoire, qui permet de mesurer les fluctuations d'interface d'origine thermique. Avant cela, on présente le modèle des ondes capillaires [7] qui permet de déterminer la statistique des fluctuations de hauteur de surface. Le montage permettant de mesurer la dynamique des fluctuations de surface, on s'intéresse en particulier à cet aspect. On présente le calcul de ces propriétés dans le cas d'un milieu semi infini très visqueux. Il s'agit de la situation la plus facile à décrire dans laquelle les fluctuations sont dominées par les effets visqueux et dépendent seulement de la tension de surface et de la viscosité du milieu. Afin de se concentrer sur l'aspect technique du montage, l'ensemble des mesures présentées dans ce chapitre se limite à ce cas. On décrit le dispositif expérimental et on relie le spectre mesuré à la statistique des fluctuations donnée par le modèle des ondes capillaires. On présente également les différentes particularités optiques du montage et les réglages à effectuer afin de pouvoir étudier correctement les fluctuations. Dans le chapitre II et dans le premier paragraphe du chapitre III, ce montage est utilisé afin d'étudier les fluctuations dans le cas où le milieu est viscoélastique ou bien lorsque l'on confine le milieu fluctuant.

## 2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires

Dans ce paragraphe, on présente brièvement deux approches théoriques décrivant la surface libre d'un milieu. On décrit en particulier le modèle des ondes capillaires introduit par F. P. Buff, R. A. Lovett, et R. H. Stillinger [7] en 1965. Ce modèle formule une description statistique de l'interface basée sur les fluctuations dues à l'agitation thermique du milieu. On détaille ce modèle dans le cas d'un milieu semi-infini très visqueux.

### 2.1 Modélisation d'une interface

A l'échelle macroscopique, la surface séparant deux fluides immiscibles est plane. D'un point de vue microscopique, la surface est en fait une zone interfaciale qui possède une certaine largeur, qui n'est pas lisse et qui fluctue. Dans le paragraphe suivant, nous présentons brièvement deux modèles basés sur des hypothèses physiques différentes, qui permettent de décrire une surface liquide simple à une échelle microscopique. Chacun de ces modèles ne tient compte que d'un type de fluctuation pertinent au voisinage de l'interface.

#### Le modèle de van der Waals

Le modèle de van der Waals [8], basé sur des arguments thermodynamiques, permet de calculer la tension de surface en déterminant le profil de densité au voisinage de l'interface. Cette approche suppose que la densité passe progressivement d'un milieu à l'autre, il ne permet donc pas de connaître la position exacte de l'interface. L'épaisseur intrinsèque de l'interface, qui correspond à longueur de la zone de transition entre les deux milieux, est de l'ordre de la longueur de corrélation du liquide. En pratique, pour une interface loin de son point critique, cette longueur de corrélation est de l'ordre de quelques diamètres de molécules. Le modèle de van der Waals possède l'avantage de souligner la dépendance de la tension de surface avec l'épaisseur de l'interface et permet de traiter des fluctuations de densité, qui se produisent sur des distances allant de la longueur capillaire à la longueur de corrélation.

#### Le modèle des ondes capillaires

Le modèle des ondes capillaires propose une toute autre approche : en présupposant l'existence d'une tension de surface, et en supposant que le profil de densité fait un saut entre les deux milieux, il formule une description statistique de l'interface basée sur les fluctuations de hauteur de l'interface dues à l'agitation thermique. Le modèle des ondes capillaires traite donc des fluctuations de position de l'interface, qui se produisent sur des distances allant du rayon moléculaire à la longueur capillaire. Dans cette thèse, on s'intéresse uniquement à des interfaces loin du point critique, c'est-à-dire des interfaces pour lesquelles la longueur de

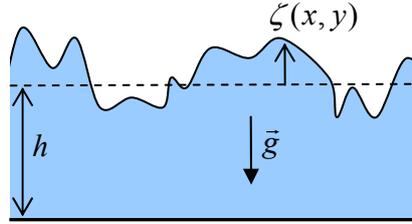
## I.2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires

---

corrélation est très faible devant la longueur capillaire. De plus, on mesure des fluctuations de surface dont la longueur d'onde est largement supérieure à la longueur de corrélation. En effet, nous verrons par la suite que la technique développée est sensible aux modes de surface dont la longueur d'onde est supérieure au micromètre. Le modèle des ondes capillaires, à lui seul, est donc adapté pour décrire les fluctuations des interfaces étudiées. Dans le paragraphe qui suit, nous présentons en détail ce modèle des ondes capillaires.

### 2.2 Propriétés statiques des fluctuations

On considère la surface libre d'un fluide, de tension de surface  $\gamma$ , placé dans le champ de pesanteur  $\vec{g}$ . On note  $\rho$  la densité du fluide et  $h$  son épaisseur. La fluctuation de hauteur de l'interface d'un point de coordonnées horizontales  $(x, y)$  est notée  $\zeta(x, y)$  (figure I.1).



**Figure I.1** – Représentation schématique d'une interface perturbée.

On s'intéresse au coût énergétique nécessaire à l'établissement d'une déformation de l'interface par rapport à sa configuration plane d'équilibre ( $\zeta(x, y) = 0$ ). Lors de l'apparition d'une fluctuation de hauteur, l'aire de l'interface augmente et des déplacements de matière s'effectuent dans la direction opposée à celle de la pesanteur. Le travail nécessaire pour créer une fluctuation de hauteur, à température constante, peut donc s'écrire comme la somme :

$$\Delta F = \Delta F_g + \Delta F_s \quad (\text{I.1})$$

où  $\Delta F_s$ , correspond au terme d'énergie de surface et où  $\Delta F_g$  correspond au terme d'énergie de pesanteur.

Pour une fluctuation de hauteur  $\zeta$  d'un élément de surface  $dxdy$ , les termes d'énergie de pesanteur et d'énergie de surface s'écrivent respectivement :

$$\delta F_g = \frac{1}{2} g \rho \zeta^2 dxdy \quad (\text{I.2})$$

$$\delta F_s = \gamma dxdy \left[ \sqrt{1 + \left( \frac{\partial \zeta}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \zeta}{\partial y} \right)^2} - 1 \right] \quad (\text{I.3})$$

## Chapitre I. Mesure des fluctuations d'une interface par réflexion spéculaire

---

On suppose que l'angle entre l'interface et l'horizontale reste faible :

$$\left| \frac{\partial \zeta}{\partial x} \right| \ll 1 \quad \text{et} \quad \left| \frac{\partial \zeta}{\partial y} \right| \ll 1 \quad (\text{I.4})$$

On peut alors simplifier le terme d'énergie de surface :

$$\delta F_s \approx \frac{1}{2} \gamma dx dy \left[ \left( \frac{\partial \zeta}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \zeta}{\partial y} \right)^2 \right] \quad (\text{I.5})$$

En intégrant sur la surface rectangulaire de dimension  $L_x$  suivant l'axe  $x$  et  $L_y$  suivant l'axe  $y$ , le travail nécessaire pour déformer l'interface d'une hauteur  $\zeta$  est :

$$\Delta F = \frac{1}{2} g \rho \iint dx dy \zeta^2 + \frac{1}{2} \gamma \iint dx dy \left[ \left( \frac{\partial \zeta}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial \zeta}{\partial y} \right)^2 \right] \quad (\text{I.6})$$

Il est intéressant de représenter la hauteur de l'interface dans l'espace de Fourier. On définit :

$$\tilde{\zeta}_{\vec{k}} = \iint dx dy \zeta(x, y) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad \text{avec} \quad \vec{k} = \left( \frac{2\pi}{L_x} m; \frac{2\pi}{L_y} n \right) \quad (\text{I.7})$$

$$\zeta(x, y) = \frac{1}{L_x \times L_y} \sum_{\vec{k}} \tilde{\zeta}_{\vec{k}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{I.8})$$

L'égalité de Parseval permet d'écrire :

$$\Delta F = \frac{1}{2A} \sum_{\vec{k}} |\tilde{\zeta}_{\vec{k}}|^2 (g\rho + \gamma k^2) \quad (\text{I.9})$$

où  $A = L_x \times L_y$  est l'aire de projection de la surface sur l'horizontale.

D'après le théorème d'équipartition de l'énergie, il y a pour chaque mode indépendant la même énergie moyenne égale à  $\frac{1}{2} k_B T$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $T$  est la température absolue à laquelle le système est thermostaté. Ainsi dans le spectre des ondes capillaires, la contribution de la composante de Fourier  $\tilde{\zeta}_{\vec{k}}$  de déplacement de l'interface s'écrit :

$$\left\langle |\tilde{\zeta}_{\vec{k}}|^2 \right\rangle = \frac{k_B T A}{\gamma} \frac{1}{k^2 + l_c^{-2}} \quad (\text{I.10})$$

où  $\langle . \rangle$  désigne la moyenne thermique,  $l_c$  est la longueur de corrélation latérale et correspond à longueur capillaire,  $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{g\rho}}$ . Pour des liquides moléculaires, la tension de surface est de l'ordre de  $10 - 100 \text{ mN/m}$ , la densité est de l'ordre de  $10^2 - 10^3 \text{ kg/m}^3$ . La longueur capillaire est donc de l'ordre du millimètre. Dans cette thèse, les fluctuations d'interfaces mesurées possèdent des longueurs d'onde largement inférieures aux longueurs capillaires ( $kl_c \gg 1$ ). Dans cette limite des grands vecteurs d'onde, le terme d'énergie de surface domine le terme

## I.2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires

---

d'énergie de pesanteur, la contribution des différentes composantes de Fourier s'écrit alors :

$$\left\langle \left| \tilde{\zeta}_{\vec{k}} \right|^2 \right\rangle = \frac{k_B T A}{\gamma k^2} \quad (\text{I.11})$$

Pour obtenir les informations dans l'espace direct, il suffit d'effectuer la somme sur tous les modes (I.8). Les différents modes sont séparés les uns des autres par les quantités  $\Delta k_x = 2\pi/L_x$  et  $\Delta k_y = 2\pi/L_y$ . Lorsque le vecteur d'onde pertinent  $l_c^{-1}$  est grand devant les quantités  $\Delta k_x, \Delta k_y$ , on peut considérer la variable  $k$  comme continue. La transformée de Fourier inverse s'exprime alors comme une intégrale :

$$\zeta(x, y) = \int_{\mathbb{R}^2} \frac{d\vec{k}}{(2\pi)^2} \tilde{\zeta}_{\vec{k}} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{I.12})$$

### Fonction de corrélation spatiale

On calcule la fonction de corrélation spatiale de hauteur de l'interface :

$$\langle \zeta(0) \zeta(\vec{r}) \rangle = \frac{1}{A} \sum_{\vec{k}} \left\langle \left| \tilde{\zeta}_{\vec{k}} \right|^2 \right\rangle e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{I.13})$$

En remplaçant la somme discrète sur les différents modes par une somme continue, on obtient :

$$\langle \zeta(0) \zeta(\vec{r}) \rangle = \frac{k_B T}{(2\pi)^2 \gamma} \int \frac{d\vec{k} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}}{k^2 + l_c^{-2}} \quad (\text{I.14})$$

$$= \frac{k_B T}{2\pi \gamma} \int_0^\infty \frac{k J_0(kr) dk}{k^2 + l_c^{-2}} \quad (\text{I.15})$$

$$= \frac{k_B T}{2\pi \gamma} K_0 \left( \frac{r}{l_c} \right) \quad (\text{I.16})$$

où  $J_0$  et  $K_0$  sont respectivement les fonctions de Bessel de première et deuxième espèce d'ordre 0. L'expression de la fonction de corrélation spatiale montre que la longueur capillaire est également la longueur de corrélation des fluctuations. Lorsque  $r \rightarrow \infty$ ,  $\langle \zeta(0) \zeta(\vec{r}) \rangle \rightarrow 0$ , les fluctuations de hauteur de deux points de la surface très éloignés devant la longueur capillaire sont complètement décorréliées. Lorsque  $r \leq l_c$  les fluctuations sont liées entre elles. Et à la limite  $r \rightarrow 0$ ,  $\langle \zeta(0) \zeta(\vec{r}) \rangle \rightarrow \infty$ , ce qui n'est pas physique. Il faut admettre qu'il existe une longueur minimale en-dessous de laquelle les fluctuations ne peuvent plus être décrites de façon continue. Cette longueur correspond aux dimensions d'une molécule.

### Rugosité de l'interface

On définit la rugosité de l'interface  $\sigma$  d'après le déplacement quadratique moyen de l'in-

terface :

$$\sigma^2 = \langle \zeta^2(\vec{r}) \rangle = \frac{1}{A} \int \zeta^2(r) d\vec{r} \quad (\text{I.17})$$

que l'on calcule en utilisant à nouveau l'égalité de Parseval :

$$\sigma^2 = \sum_{\vec{k}} |\tilde{\zeta}_{\vec{k}}|^2 \quad (\text{I.18})$$

$$= \frac{k_B T}{2\pi\gamma} \int \frac{k dk}{k^2 + l_c^{-2}} \quad (\text{I.19})$$

Comme précédemment, on retrouve une divergence à cause des grands vecteurs d'onde. On introduit alors une longueur de coupure, notée  $a$ , en dessous de laquelle aucune fluctuation n'a lieu, soit  $k_{\max} = 2\pi/a$ . La longueur  $a$  correspond aux dimensions d'une molécule.

La rugosité de l'interface s'écrit alors :

$$\sigma^2 = \frac{k_B T}{4\pi\gamma} \ln(1 + k_{\max}^2 l_c^2) \quad (\text{I.20})$$

$$\approx \frac{k_B T}{2\pi\gamma} \ln(k_{\max} l_c) \quad (\text{I.21})$$

Dans le cas de l'eau à 20°C ( $\gamma = 72 \text{ mN/m}$  et  $\rho = 10^3 \text{ kg/m}^3$ ), en prenant comme longueur microscopique  $a = 0.1 \text{ nm}$ , on calcule une rugosité de l'interface de quelques Ångströms. On peut remarquer que la dépendance de la rugosité de l'interface avec le produit  $k_{\max} l_c$  est très faible, il s'agit de la racine carrée du logarithme d'un nombre très grand devant 1.

**Remarque :**

Le rapport entre la longueur de corrélation spatiale des ondes capillaires et la rugosité de l'interface est de  $10^7$ . L'importance de ce rapport explique la difficulté de mesurer ces fluctuations de surface autrement que par des techniques de diffusion de la lumière [1, 9].

### 2.3 Dynamique, cas particulier du régime sur-amorti

Dans cette partie, on s'intéresse aux propriétés dynamiques des fluctuations d'interface. Nous limitons notre étude au cas particulier d'un milieu purement visqueux pour lequel les fluctuations sont dominées par les effets visqueux, dont l'épaisseur est très grande devant la longueur d'onde de fluctuation considérée ( $kh \gg 1$ ). Dans le chapitre II, nous étudierons le cas plus général des fluctuations d'interface pour un milieu viscoélastique. Dans le chapitre III, nous étudierons le cas où l'épaisseur du milieu fluctuant est comparable voire inférieure à la longueur d'onde de fluctuation ( $kh \leq 1$ ). Dans toutes ces études, on s'intéresse uniquement aux modes de longueur d'onde très inférieure à la longueur capillaire  $\sqrt{\gamma/\rho g}$ , c'est à dire

## I.2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires

---

inférieure au millimètre pour un liquide moléculaire. Dans cette limite ( $kl_c \gg 1$ ), les effets de tension de surface dominent les effets gravitationnels. On peut donc négliger l'effet de la gravité dans la description de ces ondes de surface. Levich [10] a été le premier à considérer les fluctuations de surface, puis Bouchiat et Meunier[11] en ont donné une description complète.

Pour caractériser les propriétés dynamiques stationnaires de l'interface, on définit la fonction de corrélation temporelle de hauteur de l'interface :

$$G(k, t) = (2\pi)^2 \frac{1}{A} \left\langle \tilde{\zeta}(k, t') \tilde{\zeta}^*(k, t + t') \right\rangle_{t'} \quad (\text{I.22})$$

où  $A$  est l'aire de la surface sur laquelle on calcule les corrélations. L'unité de  $G(k, t)$  est donc le  $m^4$ .

On exprime également ces propriétés dans l'espace des fréquences en définissant la densité spectrale par la transformée de Fourier :

$$P(k, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} G(k, \tau) \quad (\text{I.23})$$

On sait que pour un système à l'équilibre thermodynamique, le théorème fluctuation-dissipation permet de relier les fonctions d'autocorrélation des variables dynamiques décrivant le système, à la réponse linéaire du système soumis à une force extérieure. Le théorème fluctuation-dissipation établit que la réponse d'un système à une fluctuation thermique spontanée est la même que celle à une petite perturbation extérieure. Dans le cas d'un système constitué d'une couche de fluide, la variation de hauteur  $\zeta(k, \omega)$  de l'interface est la variable dynamique permettant de décrire complètement le système et la fonction de réponse du système, également appelée susceptibilité, est définie de manière suivante :

$$\chi(k, \omega) = \frac{\zeta(k, \omega)}{\sigma_{\text{ext}}(k, \omega)} \quad (\text{I.24})$$

où  $\sigma_{\text{ext}}(k, \omega)$  est la contrainte normale imposée à l'interface et correspond à la force extérieure appliquée au système. L'écriture du théorème fluctuation-dissipation permet de relier la fonction d'autocorrélation de hauteur à la partie imaginaire de la susceptibilité :

$$P(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi\omega} \text{Im}(\chi(k, \omega)) \quad (\text{I.25})$$

L'intensité des fluctuations décrite par  $P(k, \omega)$  est donc proportionnelle à l'énergie thermique  $k_B T$  fournie au système et à la partie imaginaire de la susceptibilité  $\chi(k, \omega)$  décrivant la dissipation du système. Le théorème fluctuation-dissipation permet de réduire le problème des fluctuations thermiques à l'étude de la déformation de la surface libre sous l'effet d'une

contrainte extérieure.

Pour déterminer la susceptibilité  $\chi(k, \omega)$ , on doit donc chercher la réponse hydrodynamique du fluide soumis à un champ de contrainte extérieur  $\sigma_{\text{ext}}$ , normal à la surface libre et caractérisé par une fréquence  $\omega$  et un vecteur d'onde  $k$ ,

$$\sigma_{\text{ext}} = \sigma_0 e^{i(kx + \omega t)} \quad (\text{I.26})$$

La réponse du fluide est décrite par la variation de hauteur  $\zeta(x, t)$  de l'interface, le champ de vitesse  $\vec{v}(x, z, t)$  et la pression  $p(x, z, t)$ . Ces variables dynamiques doivent être des solutions des équations hydrodynamiques et satisfaire les conditions aux limites adéquates.

Avant de résoudre ce problème, nous allons dans un premier temps évaluer l'importance des différents termes dans l'équation hydrodynamique de Navier-Stokes. On rappelle qu'on limite notre étude au cas d'un fluide purement visqueux dont l'épaisseur du milieu et la longueur capillaire sont largement supérieures à la longueur d'onde considérée,  $kh \gg 1$  et  $kl_c \gg 1$ .

L'importance des effets inertiels stationnaires  $\rho(\vec{v} \cdot \vec{\nabla})\vec{v}$  par rapport aux effets visqueux  $\eta \vec{\nabla}^2 \vec{v}$  dans la dynamique de ces ondes capillaires peut être estimée en calculant le nombre de Reynolds associé à l'écoulement dû à l'agitation thermique :

$$Re \approx \frac{\rho l \zeta \omega}{\eta} \quad (\text{I.27})$$

où  $l$  est la longueur sur laquelle la vitesse de l'interface décroît et correspond donc à la longueur d'onde  $1/k$  de la fluctuation considérée,  $\eta$  est la viscosité dynamique du milieu,  $\zeta$  est la variation typique de hauteur de l'interface et peut être estimée d'après le calcul du déplacement quadratique moyen de l'interface effectué précédemment ( $\langle |\zeta_{\vec{k}}|^2 \rangle \approx k_B T / \gamma k^2$ ). Enfin,  $\omega$  est la fréquence de la fluctuation considérée. Dans le cas de l'eau, pour  $k = 10^4 \text{ m}^{-1}$  et  $\omega = 200 \text{ rad/s}$ , on obtient  $Re \approx 10^{-6}$ . Cette estimation nous permet de négliger le terme inertiel stationnaire  $\rho(\vec{v} \cdot \vec{\nabla})\vec{v}$  par rapport au terme visqueux  $\eta \vec{\nabla}^2 \vec{v}$ . L'équation hydrodynamique de Navier-Stokes s'écrit alors :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = \vec{\nabla} p + \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} \quad (\text{I.28})$$

On peut également estimer l'importance des effets inertiels non stationnaires  $\rho \partial_t \vec{v}$  par rapport aux effets visqueux  $\eta \vec{\nabla}^2 \vec{v}$  en calculant le nombre de Stokes donné par l'expression suivante :

$$St \approx \frac{\rho \omega l^2}{\eta} \quad (\text{I.29})$$

## I.2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires

---

où comme pour le nombre de Reynolds,  $l$  correspond à la longueur d'onde de fluctuation  $1/k$ . Dans le cas de l'eau, pour  $k = 10^4 \text{ m}^{-1}$  et  $\omega = 200 \text{ rad/s}$ , on obtient  $St \approx 1$ , autrement dit le terme inertiel non stationnaire  $\rho \partial_t \vec{v}$  ne peut pas être négligé aux fréquences supérieures à quelques centaines de Hertz. En effet, nous verrons par la suite que les effets inertiels jouent un rôle dans les fluctuations de la surface libre de l'eau. Dans le paragraphe qui suit, on considère un milieu suffisamment visqueux pour négliger ce terme d'inertie non stationnaire, les fluctuations sont alors sur-armorties. On peut donc écrire  $\rho = 0$  dans l'équation de Navier-Stokes :

$$\vec{\nabla} p + \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} = \vec{0} \quad (\text{I.30})$$

Les variables dynamiques vérifient également l'équation d'incompressibilité :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (\text{I.31})$$

Les variables  $\vec{v}(x, z, t)$  et  $p(x, z, t)$  qui décrivent la réponse du fluide sont donc des solutions des équations (I.30) et (I.31). Compte tenu de l'expression de la contrainte normale extérieure appliquée au système (I.26), on cherche des solutions de la forme  $m(x, z, t) = m(k, z, \omega) e^{i(kx + \omega t)}$ . On détermine les constantes d'intégration du champ de vitesse et de pression grâce aux conditions limites suivantes :

La vitesse s'annule à une distance infinie de l'interface :

$$\vec{v}|_{z=\infty} = \vec{0} \quad (\text{I.32})$$

A la surface libre, la vitesse de déplacement de l'interface correspond à la vitesse verticale du fluide :

$$v_z|_{z=0} = i\omega \zeta(k, \omega) \quad (\text{I.33})$$

La contrainte de cisaillement dans le fluide à la surface libre est nulle :

$$\sigma_{xz}|_{z=0} = 0 \quad (\text{I.34})$$

où le tenseur des contraintes dans le fluide s'écrit :

$$\sigma_{ij} = \eta (\partial_i v_j + \partial_j v_i) - \delta_{ij} P \quad (\text{I.35})$$

En utilisant les conditions limites (I.32), (I.33), (I.34), on détermine complètement le champ de vitesse et la pression dans le fluide. Enfin, on relie la contrainte normale extérieure  $\sigma_{\text{ext}}$  aux variables dynamiques du problème, en écrivant que la discontinuité de contrainte normale

supportée à l'interface correspond à la pression de Laplace.

$$\sigma_{\text{ext}} - \sigma_{zz}|_{z=0} = \gamma k^2 \zeta(k, \omega) \quad (\text{I.36})$$

D'après cette relation, on obtient un lien entre la variation de hauteur d'interface et la contrainte extérieure imposée :

$$\sigma_{\text{ext}}(k, \omega) = \zeta(k, \omega) (\gamma k^2 + 2i\omega\eta k) \quad (\text{I.37})$$

On obtient alors la susceptibilité :

$$\chi(k, \omega) = \frac{1}{(\gamma k^2 + 2i\omega\eta k)} \quad (\text{I.38})$$

Les fréquences propres du système correspondent aux fréquences de l'équation (I.37) pour lesquelles, en l'absence de contrainte imposée, il existe une variation de hauteur non nulle. Ces fréquences correspondent alors aux pôles de la susceptibilité  $\chi$ . On remarque que l'unique fréquence propre  $\omega_n$  est imaginaire pure, résultat typique du régime sur-amorti. Les perturbations ne font que décroître au cours du temps, il n'y a pas de propagation d'onde à la surface.

$$\omega_n = \frac{i}{\tau_k} = \frac{i\gamma k}{2\eta} \quad (\text{I.39})$$

$\tau_k$  est le temps caractéristique de relaxation associé au mode de déformation  $k$ . Cette relation qui associe une fréquence à un vecteur d'onde est également appelée relation de dispersion.

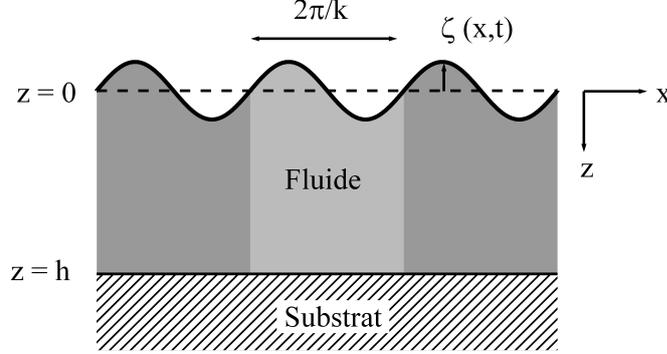
Il est possible de retrouver les dépendances de cette relation de dispersion grâce à une analyse énergétique du problème faite par Henle et Levine [12]. La déformation du fluide causée par l'agitation thermique augmente l'aire de l'interface et permet ainsi de stocker de l'énergie. Lorsque la déformation de l'interface relaxe, cette énergie emmagasinée est dissipée dans le volume du fluide grâce aux effets visqueux.

Afin d'évaluer les énergies emmagasinées et dissipées, on considère la portion de fluide légèrement grisée sur la figure I.2, dont l'aire dans le plan  $(x - y)$  est  $A \sim l_y/k$ , où  $l_y$  est la longueur du volume considéré dans la direction  $y$ . L'énergie emmagasinée dans l'interface, lorsque l'interface se déforme suivant le mode  $k$ , s'exprime comme le produit de la contrainte normale,  $\gamma k^2 \zeta$ , de l'aire de l'interface  $A$  et de la hauteur de déformation  $\zeta$ . La puissance transférée au volume lorsque cette interface se relaxe s'écrit donc :

$$P_{\text{surf}} \sim (\gamma k^2 \zeta) A \omega \zeta \quad (\text{I.40})$$

La puissance dissipée dans le volume du fluide, s'exprime en intégrant le produit de la densité de la force visqueuse  $\eta \nabla^2 v$  et de la vitesse du fluide  $v$  sur le volume dans lequel s'effectue la

## I.2 Fluctuations d'interface, le modèle des ondes capillaires



**Figure I.2** – Illustration schématique d'une couche de fluide d'épaisseur  $h$ . On représente uniquement le mode  $k$  de déformation de la surface libre. En réalité, il s'agit d'une superposition d'une infinité de mode.

déformation.

$$P_{\text{diss}} = \int d^3x v \eta \nabla^2 v \approx A \eta \int_0^h dz v \nabla^2 v \quad (\text{I.41})$$

Dans le cas où l'épaisseur du liquide  $h$  est très grande devant la longueur d'onde de fluctuation  $kh \gg 1$ , la longueur sur laquelle la vitesse du fluide décroît est la longueur d'onde de fluctuation, on a alors  $\int_0^h dz \sim 1/k$  et  $\nabla^2 \sim k^2$ . Par ailleurs, la conservation du volume permet de relier la variation de hauteur de l'interface, à la vitesse du fluide  $v$ .

$$A \partial_t \zeta = A \omega \zeta \approx l \int_0^h dz v \quad (\text{I.42})$$

où  $1/\omega$  correspond au temps caractéristique de relaxation de la perturbation de hauteur. En utilisant cette condition et en égalisant les deux puissances calculées précédemment on retrouve les différentes dépendances de la relation de dispersion :

$$\omega \sim \frac{k\gamma}{\eta} \quad (\text{I.43})$$

Notons que cette analyse énergétique retrouve l'amplitude de l'échelle des temps de relaxation mais ne permet pas de connaître le régime dans lequel se situe les fluctuations.

Pour déterminer la fonction de corrélation spatiale de hauteur de l'interface dans le domaine

temporel, on effectue la transformée inverse de  $P(k, \omega)$  (I.25) :

$$G(k, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{i\omega t} P(k, \omega) \quad (\text{I.44})$$

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{i\omega t} \frac{k_B T}{\pi \omega} \text{Im}(\chi(k, \omega)) \quad (\text{I.45})$$

On évalue l'intégrale de l'expression (I.45), en intégrant sur le contour semi-circulaire dans le demi-plan imaginaire positif ayant pour diamètre l'axe des réels. Les pôles de l'intégrand, c'est-à-dire les fréquences solution de l'équation  $\chi(k, \omega)^{-1} = 0$ , correspondent aux fréquences propres  $\omega_n$  calculées (I.39). Dans le cas étudié, nous avons vu qu'il existe une unique solution  $\omega_n$  qui se situe sur l'axe imaginaire positif. Puisque ce pôle à la fréquence  $\omega_n$  est un pôle simple, le théorème des résidus permet de calculer l'intégrale :

$$G(k, t) = \frac{k_B T}{\omega_n} \frac{1}{\left. \frac{\partial \chi(k, \omega)^{-1}}{\partial \omega} \right|_{\omega=\omega_n}} e^{i\omega_n t} \quad (\text{I.46})$$

En utilisant les expressions de  $\chi(k, \omega)$  et de  $\omega_n$  calculées précédemment, on obtient :

$$G(k, t) = \frac{k_B T}{\gamma k^2} e^{-t/\tau_k} \quad (\text{I.47})$$

Le temps caractéristique  $\tau_k$ , défini d'après (I.39), correspond au temps de corrélation des fluctuations de hauteur de l'interface. Les corrélations temporelles des fluctuations thermiques vérifient donc la relation de dispersion (I.39). Il est intéressant de noter que les corrélations temporelles dépendent à la fois de la tension de surface et de la viscosité du milieu, alors que les corrélations spatiales dépendent uniquement de la tension de surface. La mesure des fluctuations de hauteur dans le temps, donne donc accès à la fois aux propriétés interfaciales et aux propriétés volumiques du milieu fluctuant.

**Remarque :**

En pratique, les vecteurs d'onde sondés avec la technique de diffusion de la lumière sont compris entre  $10^4$  et  $10^5 \text{ m}^{-1}$ . L'utilisation des rayons X (XPCS) permet d'atteindre des plus grands vecteurs d'onde :  $10^5 - 10^6 \text{ m}^{-1}$ . Avec notre montage, nous verrons que les vecteurs d'onde sondés sont fixés par la largeur d'un faisceau laser. En modifiant la focalisation du faisceau, il est possible de sonder la gamme de vecteurs d'onde  $3 \cdot 10^4$  et  $5 \cdot 10^5 \text{ m}^{-1}$ .

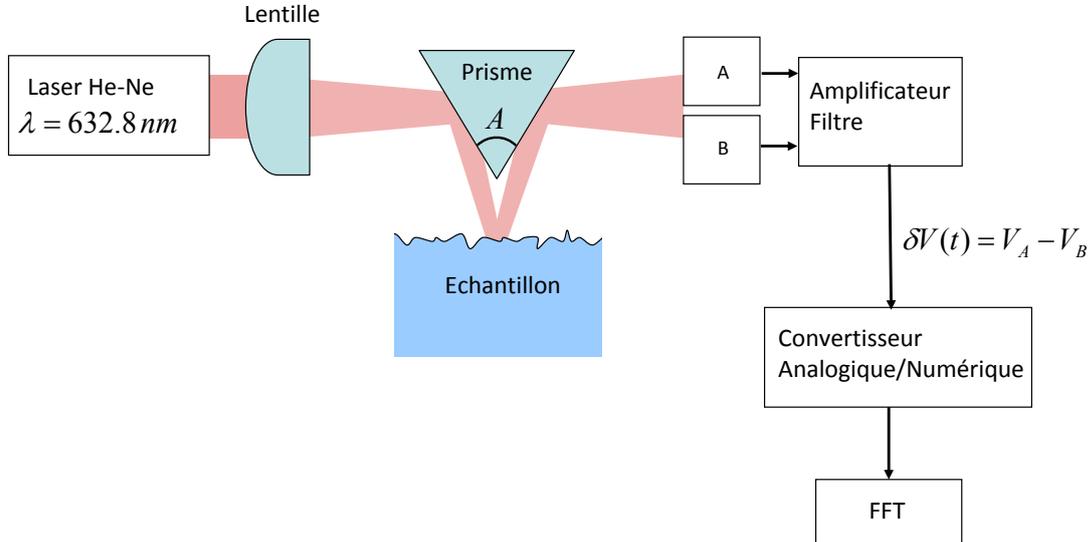
### 3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

Dans ce paragraphe, on présente une technique optique permettant de mesurer les propriétés dynamiques des fluctuations de hauteur d'une interface. Cette technique optique consiste à mesurer indirectement les fluctuations de hauteur à partir de la réflexion d'un faisceau laser sur la surface fluctuante. Un principe expérimental similaire est utilisé dans les AFM, où la déflexion d'un microlevier est mesurée par la déviation d'un faisceau focalisé sur l'extrémité libre d'un levier. Les résultats présentés dans le chapitre II et dans le premier paragraphe du chapitre III sont obtenus en utilisant ce montage. Notons qu'une variante du montage, adaptée à la mesure des fluctuations de films minces, est développée au paragraphe 2 du chapitre III.

#### 3.1 Description du montage expérimental

On focalise un faisceau laser, généré par un laser à gaz hélium-néon, de longueur d'onde  $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ , grâce à une lentille convergente de focale  $f$  (figure I.3). La surface réfléchissante d'un prisme permet d'envoyer ce faisceau convergent sur l'interface fluctuante à étudier en incidence quasi-normale. Le faisceau réfléchi sur cette interface est ensuite réfléchi sur la deuxième face du prisme afin d'être envoyé vers une photodiode constituée de deux quadrants  $A$  et  $B$ . Chaque quadrant délivre une tension proportionnelle à l'intensité lumineuse qu'il reçoit. On centre les deux quadrants par rapport au faisceau réfléchi de sorte que les moyennes des tensions délivrées par les quadrants soient égales,  $\langle V_A(t) \rangle_t = \langle V_B(t) \rangle_t$ . Afin de pouvoir effectuer ce réglage précisément, la photodiode est montée sur un platine de translation qui se déplace verticalement. Après avoir pré-amplifié les deux tensions délivrées par les quadrants, un amplificateur effectue la différence de tension  $\delta V(t) = V_A(t) - V_B(t)$  et l'amplifie. Le signal  $\delta V(t)$  est donc sensible à la position verticale du faisceau laser réfléchi. De plus, l'amplificateur applique un filtre passe-bas afin d'éviter le repliement fréquentiel à l'échantillonnage maximal du signal. La fréquence de ce filtre passe-bas est fixée par la fréquence d'échantillonnage du signal. Le signal  $\delta V(t)$  amplifié et filtré est ensuite numérisé à la fréquence d'échantillonnage  $f_{\text{éch}} = 2.10^5 \text{ Hz}$ . Le signal numérique obtenu est traité par un ordinateur.

On obtient ainsi un montage sensible aux fluctuations de la pente de l'interface sous le faisceau. En effet, lorsque la pente de l'interface est modifiée, le faisceau laser réfléchi est dévié. Or le signal  $\delta V(t)$  est sensible à la position du faisceau réfléchi. Une fluctuation instantanée de la pente locale de l'interface va donc induire une fluctuation du signal mesuré  $\delta V(t)$ .



**Figure I.3** – Schéma du montage optique permettant de mesurer les fluctuations d'interface. Le faisceau, d'un laser He-Ne, est focalisé sur la surface libre d'un échantillon après avoir été réfléchi sur la première surface d'un prisme. La réflexion du faisceau sur l'échantillon est ensuite réfléchi par la deuxième surface du prisme afin d'être orientée vers une photodiode composée de deux quadrants *A* et *B*. La différence des tensions délivrées par ces deux quadrants est filtrée et amplifiée. Le signal est ensuite numérisé afin de calculer sa densité spectrale de puissance.

### 3.2 Acquisition et traitement du signal

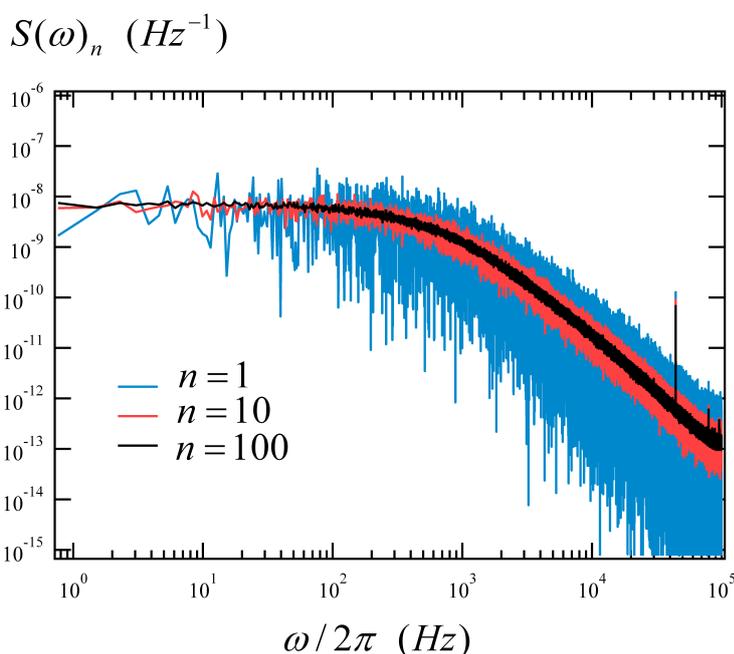
La tension délivrée par chaque quadrant est proportionnelle à l'intensité du faisceau laser utilisé. Afin de mesurer un signal indépendant de l'intensité du faisceau laser, on étudie la différence de tension normalisée par la somme des tensions délivrées par chaque quadrant, soit  $\delta V/V_{tot}$ . Où  $V_{tot}$  est la somme des tensions délivrées par chacun des quadrants *A* et *B*. Afin d'étudier le spectre des fluctuations de hauteur, on calcule la densité spectrale de puissance de ce signal normalisé. On rappelle que la densité spectrale de puissance correspond au carré du module de la transformée de Fourier du signal. On note  $S(\omega)$  le spectre ainsi calculé :

$$S(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{\delta V}{V_{tot}} \right) \right|^2 \right\rangle_n \quad (\text{I.48})$$

Où TF désigne la transformée de Fourier,  $T$  correspond à la durée d'une acquisition du signal et  $n$  correspond au nombre d'acquisition choisie pour calculer  $S(\omega)$ . La durée d'acquisition  $T$  dépend de la fréquence minimum,  $f_{min}$ , à laquelle on souhaite étudier les fluctuations. Si l'on souhaite mesurer les fluctuations à la fréquence minimum de 1 Hz, on doit prendre  $T = 1$  s. La fréquence maximale du spectre,  $f_{max}$ , est fixée par la fréquence d'échantillonnage du signal telle que  $f_{max} = f_{éch}/2$ .

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

Sur la figure I.4, on représente les spectres de fluctuation d'une huile silicone obtenus pour  $n = 1$ ,  $n = 10$  et  $n = 100$ . On remarque que le bruit des spectres diminue considérablement avec  $n$ , le nombre de spectres moyennés. Dans la suite de cette thèse, tous les spectres présentés ont été obtenus en prenant  $n = 100$ . Pour les spectres de la figure I.4, on a choisi  $T = 1.3$  s, la fréquence minimale calculée dans les spectres est donc  $f_{min} \approx 0.76$  Hz, la durée d'acquisition totale nécessaire pour calculer le spectre moyen  $S(\omega)_{n=100}$  est donc d'environ 130 secondes. On a choisi  $f_{éch} = 2.10^5$  Hz, on a donc  $f_{max} = 10^5$  Hz.

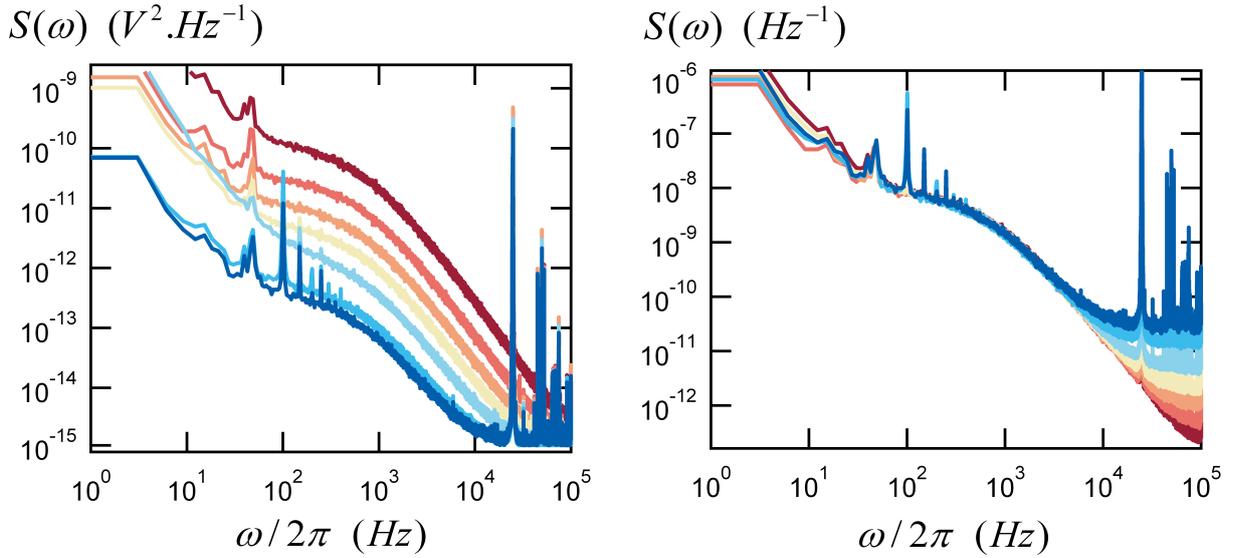


**Figure I.4** – Comparaison des spectres de fluctuations  $S(\omega)_n$  obtenus pour  $n = 1$ ,  $n = 10$  et  $n = 100$ . Les fluctuations ont été mesurées à la surface libre d'une huile silicone caractérisée par les propriétés mécaniques suivantes  $\gamma = 20.6$  mN/m,  $\eta = 20$  mPa.s et  $\rho = 950$  kg/m<sup>3</sup>.

#### Sur la normalisation du signal

Afin de vérifier la normalisation du signal par la tension  $V_{tot}$ , on compare les spectres de fluctuations obtenus, en utilisant un faisceau laser de différentes puissances optiques  $P$ , modifiant ainsi les tensions délivrées par les quadrants. On représente respectivement les spectres non normés et normés, obtenus pour différentes puissances  $P$  sur la figure I.5-a et sur la figure I.5-b. Aux basses fréquences, les spectres normés (5-b) se superposent. L'amplitude du spectre des fluctuations est indépendante de la puissance optique du faisceau utilisé, la normalisation est correcte. Aux hautes fréquences, les spectres normés ne se superposent plus. Sur la figure I.5-a, on remarque que les spectres non normés convergent à haute fréquence vers un plateau. Dans nos conditions d'amplification et de numérisation du signal temporel,

il s'agit du niveau minimal auquel les fluctuations du signal peuvent être détectées. Ce seuil explique les différents plateaux à hautes fréquences (figure I.5-b) dont la hauteur et l'apparition dépendent de la puissance utilisée. Pour obtenir un spectre de fluctuation indépendant de la puissance du faisceau utilisé sur la plus grande largeur spectrale, il est donc favorable de choisir une grande puissance.



**Figure I.5** – Comparaison des spectres de fluctuation obtenus avec un faisceau laser pour différentes puissances  $P$ . Pour chaque puissance  $P$  utilisée, on représente le spectre de fluctuation non normé (graphique A) et normé (graphique B). Pour des fluctuations du signal  $\delta V(t)$  supérieures à un seuil, correspondant au plateau  $S(\omega) \approx 10^{-15} V^2 Hz^{-1}$ , visible à hautes fréquences sur le graphique A, les spectres se normalisent correctement (graphique B). Pour des fluctuations inférieures à ce seuil, la normalisation n'est plus correcte. Les fluctuations sont mesurées à la surface libre d'une huile silicone caractérisée par les propriétés mécaniques suivantes :  $\gamma = 20.6 mN/m$ ,  $\eta = 20 mPa.s$  et  $\rho = 950 kg/m^3$ .

En normalisant correctement les spectres, pour différentes puissances du faisceau laser, on vérifie la linéarité de la réponse de la photodiode. On vérifie également que les fluctuations de surface sont indépendantes de cette puissance optique. C'est la preuve que pour les puissances testées ( $P_0 < 2 mW$ ), le faisceau laser ne perturbe pas le milieu sondé. Pour de très grandes puissances, on peut supposer que l'interaction du faisceau avec le milieu fluctuant ne sera plus négligeable. En effet, dans le cas des grandes puissances, la déformation de l'interface due à la pression de radiation pourrait devenir suffisamment importante pour modifier le signal mesuré [13]. L'élévation de température, due à l'absorption du faisceau laser dans le milieu, pourrait également être suffisante pour affecter les fluctuations de surface. Cet aspect sera abordé dans le chapitre III.

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

**Remarque :**

En pratique, l'angle au sommet du prisme (noté  $A$  sur la figure I.3) est de  $100^\circ$ . Ainsi, l'angle d'incidence formé entre le faisceau laser incident et la normale à l'interface est de  $10^\circ$ . On a vérifié que l'angle d'incidence n'a pas d'effet sur le signal mesuré. Les spectres obtenus pour un même milieu pour des angles d'incidence compris entre  $0^\circ$  et  $20^\circ$  ont été mesurés et se superposent parfaitement.

### 3.3 Description théorique du spectre mesuré

L'objectif de ce paragraphe est de relier le spectre mesuré  $S(\omega)$  aux fluctuations de hauteur de l'interface, caractérisées par la fonction d'autocorrélation temporelle  $\langle \tilde{\zeta}(k, t') \tilde{\zeta}(k, t + t') \rangle_{t'}$ , calculée au paragraphe 2.3.

Nous avons vu que le spectre mesuré, correspond à la densité spectrale de puissance de la différence de tension normalisée.

$$S(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{\delta V}{V_{tot}} \right) \right|^2 \right\rangle \quad (\text{I.49})$$

Or la tension délivrée par un quadrant est proportionnelle à l'intensité lumineuse qu'il reçoit. En effet, les quadrants de la photodiode ont une réponse linéaire. Le spectre mesuré peut donc s'exprimer en fonction des intensités totales  $I_A$  et  $I_B$  reçues sur chacun des quadrants.

$$S(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{I_A - I_B}{I_A + I_B} \right) \right|^2 \right\rangle \quad (\text{I.50})$$

Les intensités totales  $I_A$  et  $I_B$  reçues sur chacun des quadrants sont soumises à des fluctuations instantanées  $\delta I$  opposées car l'intensité réfléchie par l'interface, notée  $2I_0$ , est constante :

$$I_A = I_0 + \delta I \quad (\text{I.51})$$

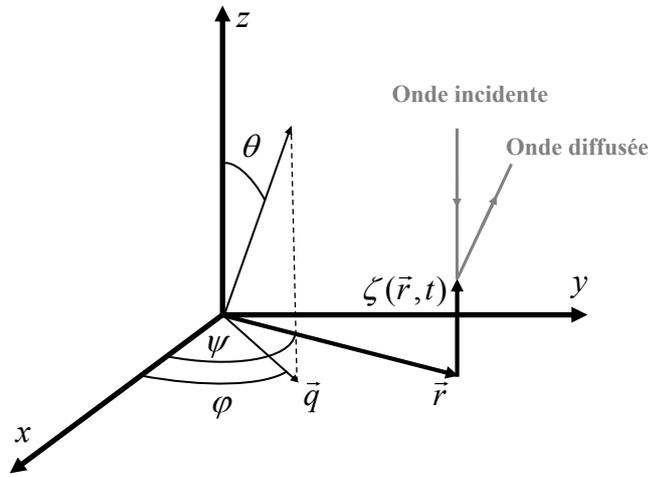
$$I_B = I_0 - \delta I \quad (\text{I.52})$$

La puissance du bruit mesuré,  $S(\omega)$ , s'exprime donc comme :

$$S(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \frac{|\text{TF}(\delta I)|^2}{I_0^2} \right\rangle \quad (\text{I.53})$$

Nous allons maintenant calculer la fluctuation d'intensité  $\delta I$  ainsi que l'intensité  $I_0$ . Pour cela, il est nécessaire de calculer l'intensité diffusée par l'interface vers chaque quadrant  $A$  et  $B$  de la photodiode. Nous détaillons le calcul publié dans [14].

On se place dans le cas où l'interface fluctuante est située au col du faisceau laser, la surface d'onde du faisceau est donc plane. De plus, on considère le cas où l'incidence du faisceau est normale à l'interface. Afin de calculer l'intensité diffusée vers chaque quadrant, on cherche à exprimer le déphasage  $\phi$  de l'onde lumineuse qui est diffusée en un point de l'interface repéré par le vecteur  $\vec{r}(r, \psi)$  et la hauteur  $\zeta(\vec{r}, t)$  suivant l'axe  $z$  (figure I.6).



**Figure I.6** – Définition des paramètres géométriques du calcul. Le faisceau incident est normal au plan  $z = 0$ . La direction de diffraction est repérée par le couple d'angle  $(\theta, \varphi)$ . La hauteur d'un point de coordonnée  $\vec{r}$  situé sur la surface est  $z = \zeta(\vec{r}, t)$ .

Ce déphasage dépend de la direction suivant laquelle l'onde lumineuse est diffusée, on repère cette direction par le couple d'angles  $(\theta, \varphi)$ . Le déphasage  $\phi$  s'exprime suivant la relation<sup>1</sup> :

$$\phi(\vec{r}, t) = \frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} + (1 + \cos \theta) \zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{I.54})$$

Où  $\vec{q}$  est la projection plane du vecteur de transfert :

$$\vec{q} = \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \varphi \\ \sin \theta \sin \varphi \end{pmatrix} \quad (\text{I.55})$$

et  $\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau. Pour le laser He-Ne,  $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ .

1. En effet, le vecteur unitaire  $(\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$  est orthogonal au plan d'onde dans la direction de diffraction passant par l'origine pris comme référence. La distance à ce plan du point de la surface de coordonnées  $(\vec{r}, \zeta(\vec{r}))$  est donc la différence de marche en réflexion, elle s'écrit  $\vec{q} \cdot \vec{r} + \cos \theta \zeta(\vec{r})$ . La différence de marche totale est obtenue en rajoutant celle de l'onde incidente :  $\zeta(\vec{r})$ .

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

En pratique, l'angle polaire  $\theta$  est petit, le déphasage peut s'écrire :

$$\phi(\vec{r}, t) \approx \frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} + 2\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{I.56})$$

L'intensité dans la direction définie par les angles  $(\theta, \varphi)$  est donnée par le carré du module du champ électrique et s'écrit :

$$I(\theta, \varphi) = \iint d\vec{r} d\vec{r}' E(r) E(r') e^{i(\phi(\vec{r}, t) - \phi(\vec{r}', t))} \quad (\text{I.57})$$

où  $E(r)$  est le champ électrique réfléchi sur la surface. En supposant que le faisceau laser est gaussien et en notant  $R$  son rayon au col, le champ s'écrit :

$$E(r) = E_0 e^{-r^2/2R^2} \quad (\text{I.58})$$

$\vec{q}$  est un vecteur de norme  $\sin \theta$ , on a  $dq_x dq_y = d\vec{q} = \sin \theta \cos \theta d\theta d\varphi$ . L'intensité totale sur un quadrant (demi-espace  $0 < \theta < \pi/2, 0 < \varphi < \pi$ ) s'écrit :

$$I_A = \int d\vec{q} I(\theta, \varphi) = \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi I(\theta, \varphi) \quad (\text{I.59})$$

Pour des interfaces usuelles, nous avons vu au paragraphe 2.2 que la rugosité de la surface est de l'ordre de quelques Ångströms. La différence des hauteurs  $\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)$  est donc très faible devant la longueur d'onde  $\lambda$ , ce qui permet de développer le terme de phase dans l'expression de l'intensité  $I_A$  (I.59) au premier ordre en  $\frac{4\pi}{\lambda} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)]$ . En effectuant ce développement limité et en exprimant les grandeurs  $\zeta(\vec{r}, t)$  et  $E(r)$  dans l'espace de Fourier, on montre dans l'annexe A, que la différence d'intensité  $\delta I$  entre les deux quadrants peut s'écrire :

$$\delta I = \int d\vec{k} F(\vec{k}) \zeta(\vec{k}, t) \quad (\text{I.60})$$

où  $F(\vec{k})$  est une fonction qui dépend de l'éclairement du faisceau et où l'on a posé :

$$\zeta(\vec{k}, t) = \int d\vec{r} \zeta(r, t) e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{I.61})$$

Pour un système ergodique, le théorème de Wiener-Khintchine stipule que la densité spectrale de puissance correspond à la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation correspondante. Ce théorème permet ainsi de relier une mesure à un calcul de physique statistique. En supposant notre système ergodique, le théorème de Wiener-Khintchine permet d'exprimer le spectre mesuré  $S(\omega)$  à partir de la fonction d'autocorrélation de  $\delta I$ .

$$S(\omega) = \frac{1}{T_0^2} \text{TF}[\langle \delta I(t') \delta I^*(t' + t) \rangle_{t'}] \quad (\text{I.62})$$

En utilisant la forme (I.60) de la différence d'intensité, on montre également dans l'annexe A que le spectre mesuré peut alors se mettre sous la forme :

$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{I.63})$$

Où  $P(k, \omega)$  correspond à la densité spectrale de puissance de hauteur de l'interface (I.25), définie au paragraphe 2.3. Et  $\Phi(k)$  est une fonction de pondération, calculée à partir de  $F(\vec{k})$ , qui ne dépend pas du milieu sondé mais uniquement de la longueur d'onde du laser  $\lambda$  et de la largeur  $R$  du faisceau au col.

Dans l'annexe B, on calcule cette fonction de pondération :

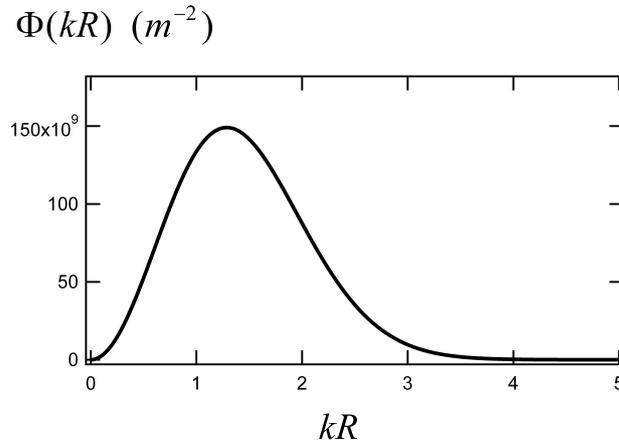
$$\Phi(k) = \frac{1}{\pi^2 \lambda^2} e^{-\frac{\kappa^2 R^2}{2}} \int_0^{2\pi} d\alpha \operatorname{erf}^2 \left( \frac{\kappa R}{2} \sin \alpha \right) \quad (\text{I.64})$$

Une bonne approximation de la fonction  $\Phi(k)$  est donnée par :

$$\Phi(k) \cong \frac{1}{\pi^2 \lambda^2} B k^2 R^2 e^{-\frac{k^2 R^2}{c}} \quad (\text{I.65})$$

où  $B = 0.979$  et  $c = 1.658$ .

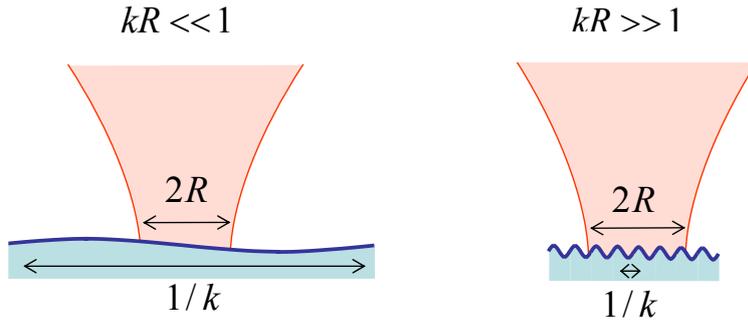
Contrairement aux techniques de diffusion, pour lesquelles une très faible gamme de vecteur d'onde est sélectionnée, le spectre mesuré  $S(\omega)$  avec cette technique dépend de l'ensemble des modes de fluctuations de surface. Cependant, la contribution de ces différents modes spatiaux dans le signal mesuré, n'est pas égale. La fonction  $\Phi(k)$  permet de tenir compte de l'inégalité de ces différentes contributions.



**Figure I.7** – Fonction de pondération  $\Phi$  en fonction du produit  $kR$  (calculée pour  $\lambda = 632.8$  m). Le signal possède une sensibilité maximale lorsque la longueur d'onde de fluctuation est comparable à la taille du faisceau,  $kR \sim 1$ .

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

On remarque d'après l'expression (I.64) que la fonction de pondération peut s'exprimer en fonction du produit  $kR$  (Figure I.7). Lorsque la longueur d'onde est très grande devant la taille du faisceau ( $kR \ll 1$ ), à l'échelle du faisceau, l'interface est plane et la pente entre l'interface et l'horizontale est proportionnelle au vecteur d'onde  $k$ . Ce cas correspond au schéma de gauche de la figure I.8. Il est satisfaisant de retrouver le comportement  $\Phi \sim (kR)^2$  dans la limite  $kR \ll 1$ . A l'opposé, lorsque la longueur d'onde est très faible devant la taille du faisceau,  $kR \gg 1$ , le faisceau est peu dévié, la différence de tension  $\delta V$  est donc peu sensible à ces modes de fluctuation. Il s'agit du cas représenté sur le schéma de droite de la figure I.8. C'est la raison pour laquelle la fonction de pondération tend rapidement vers zéro lorsque  $kR \gg 1$ . La fonction d'appareil passe par un maximum lorsque la longueur d'onde de fluctuation est comparable à la taille du faisceau  $kR \sim 1$ .



**Figure I.8** – Représentation d'une fluctuation de surface à un vecteur  $k$  très faible (schéma de gauche) et très grand (schéma de droite) devant la largeur  $R$  du faisceau laser.

Avec un raisonnement simplifié, nous allons voir qu'il est possible d'évaluer rapidement la contribution associée à chaque mode  $k$  de fluctuation dans le spectre mesuré. Ce raisonnement, moins rigoureux que celui du calcul précédent, permet de calculer des contributions assez proches de celles données par la fonction de pondération (I.64). Puisque la technique est sensible à la pente de l'interface sous le faisceau, quel que soit le mode  $k$  de fluctuation de l'interface, on suppose que le signal mesuré est proportionnel à une pente effective  $\alpha_{\text{eff}}$  obtenue en calculant la moyenne des pentes locales de l'interface pondérées par l'intensité  $I(r)$  du faisceau. Si l'on détecte les fluctuations dans la direction  $x$ , la pente effective s'écrit :

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{\int d\vec{r} \frac{\partial \zeta(\vec{r}, t)}{\partial x} I(\vec{r})}{\int d\vec{r} I(\vec{r})} \quad (\text{I.66})$$

où  $\zeta(\vec{r}, t)$  est la hauteur de l'interface que l'on définit par l'expression  $\zeta(\vec{r}, t) = \zeta_0 e^{i[\vec{k} \cdot \vec{r} + \phi(t)]}$ .

## Chapitre I. Mesure des fluctuations d'une interface par réflexion spéculaire

---

Pour un faisceau gaussien, l'intensité s'écrit  $I(\vec{r}) = I_0 e^{-r^2/R^2}$ , la pente effective devient :

$$\alpha_{\text{eff}} = k\zeta_0 e^{-\frac{k^2 R^2}{4}} e^{i\phi} \quad (\text{I.67})$$

Or le spectre mesuré est sensible à la statistique des fluctuations de pente, le spectre est donc proportionnel à la moyenne quadratique des pentes effective :

$$S \sim \langle \alpha_{\text{eff}}^2 \rangle \quad (\text{I.68})$$

$$\sim k^2 \zeta_0^2 e^{-\frac{k^2 R^2}{2}} \quad (\text{I.69})$$

On retrouve une dépendance en  $k$  proche de celle obtenue pour la fonction de pondération par le calcul détaillé, qui prédit que  $\Phi \sim k^2 e^{-\frac{k^2 R^2}{c}}$  avec  $c = 1.658$ . La prise en compte des modes de fluctuation tels que  $kR \ll 1$  est identique. En revanche, pour les modes tels que  $kR \gg 1$ , celle-ci diffère légèrement compte tenu de la différence du coefficient numérique dans la gaussienne.

### **Remarque :**

Notons qu'un montage comparable au nôtre a été développé par T. Mitsui et K. Aoki [15, 16]. Ce montage mesure les fluctuations de surface également à partir de la réflexion spéculaire d'un faisceau laser. Dans leur travail, les spectres de fluctuation mesurés sont décrits avec la fonction d'appareil obtenue avec le raisonnement simplifié :  $\Phi(k) = k^2 e^{-k^2 R^2/2}$ . Cette équipe s'est appliquée à réduire le bruit du signal mesuré. Afin d'éviter de prendre en compte le bruit autre que celui dû aux fluctuations de surface, leur montage utilise en parallèle deux faisceaux laser et quatre détecteurs. On rappelle que notre montage utilise uniquement un faisceau laser et deux détecteurs. Le spectre est obtenu en calculant la corrélation croisée de deux signaux  $\delta V_1$  et  $\delta V_2$ . Pour comparaison, dans notre montage on obtient le spectre en effectuant l'auto-corrélation du signal  $\delta V$ . Bien que ces modifications alourdissent et compliquent le montage, elles leur permettent d'augmenter significativement le rapport signal sur bruit.

Dans ce paragraphe, nous avons calculé le spectre de fluctuation mesuré avec notre montage. Contrairement aux méthodes de diffusion, où les fluctuations sont mesurées à un vecteur d'onde unique, notre montage est sensible à l'ensemble des modes de surface. Ainsi le spectre s'écrit en sommant la contribution de l'ensemble des vecteurs d'onde (I.63). Ceci explique la grande sensibilité de notre montage. Au chapitre II, nous verrons que la technique est suffisamment sensible pour mesurer les fluctuations à la surface d'un matériau dont le module élastique est de quelques centaines de kPa. Cependant, compte tenu de la taille finie du faisceau  $R$ , ces contributions sont inégales. La fonction d'appareil  $\Phi$  (I.64), en forme de cloche

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

autour de  $kR \approx 1$ , rend compte de ces différentes contributions. Ainsi, le spectre mesuré dépend à la fois des propriétés physiques du milieu sondé mais également de la largeur du faisceau (et de sa longueur d'onde). Il est donc essentiel de déterminer précisément la largeur du faisceau utilisé. C'est l'objectif du paragraphe suivant.

#### 3.4 Détermination de la largeur du faisceau

Afin de calculer le spectre  $S(\omega)$ , il est nécessaire de connaître précisément la taille  $R$  du faisceau focalisé dans le plan de l'interface. En effet, nous avons vu que cette longueur, paramètre de la fonction de pondération  $\Phi$ , détermine la longueur d'onde des fluctuations à laquelle le signal est le plus sensible. Dans ce paragraphe, nous allons voir comment cette largeur peut être mesurée. Comme dans le calcul de la fonction de pondération (en annexe B), nous supposons que le faisceau généré par le laser est assimilable à un faisceau gaussien. Avant de voir comment mesurer  $R$ , nous allons rappeler quelques propriétés générales du faisceau gaussien.

##### 3.4.1 Propriétés du faisceau gaussien

Le champ électrique  $E(r, z)$  pour un faisceau gaussien, de vecteur d'onde  $2\pi/\lambda$ , se propageant suivant l'axe  $z$ , est [17] :

$$E(r, z) = E_0 \frac{R_0}{R(z)} e^{-\frac{r^2}{2R^2(z)}} e^{-i\left(\frac{2\pi}{\lambda}z - \phi(z) + \frac{2\pi}{\lambda} \frac{r^2}{2R(z)}\right)} \quad (\text{I.70})$$

$R_0$  est le rayon minimum du faisceau en  $z = 0$  appelé col du faisceau.  $R(z)$  est la largeur du faisceau à la position  $z$  (figure I.9) :

$$R(z) = R_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (\text{I.71})$$

Avec  $z_R = 2\pi R_0^2/\lambda$ , la longueur de Rayleigh définissant la limite entre le champ lointain et le champ proche. La section du faisceau  $R$  croît faiblement pour  $z \ll z_R$ , l'onde ressemble à une onde plane, on peut considérer la lumière collimatée. Pour  $R \gg z_R$ , la section augmente suivant  $R \propto z$ , l'onde se comporte comme une onde sphérique d'extension limitée par un cône, de demi-angle de divergence :

$$\theta_0 = \tan^{-1} \left( \frac{\sqrt{2}R_0}{z_R} \right) \cong \frac{\lambda}{\sqrt{2\pi}R_0} \quad (\text{I.72})$$

Cette expression résume les propriétés d'un faisceau gaussien en reliant divergence, longueur d'onde et taille minimum de faisceau. Un faisceau gaussien diverge d'autant plus et d'autant

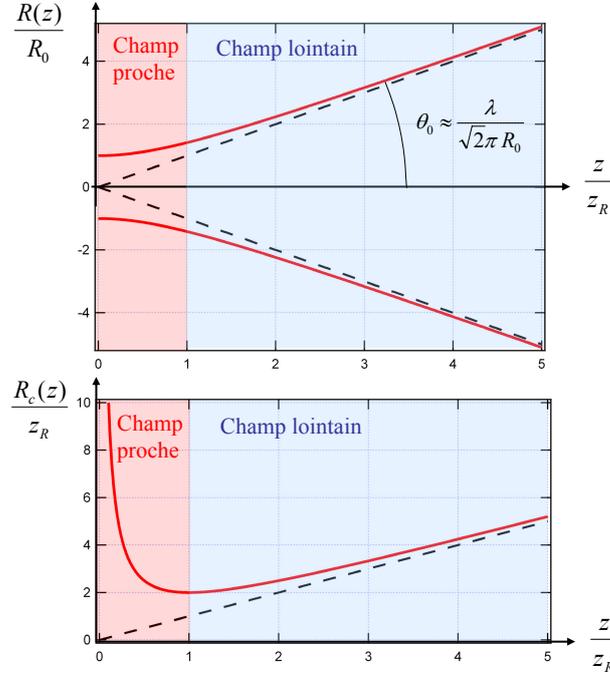
plus vite que son diamètre minimum est petit.

$R_c(z)$  est le rayon de courbure de la surface d'onde à la distance  $z$  (figure I.9) :

$$R_c(z) = z \left( 1 + \frac{zR^2}{z^2} \right) \quad (\text{I.73})$$

Pour  $z \rightarrow 0$ ,  $R_c \rightarrow \infty$ . Au col du faisceau, le rayon de courbure diverge, l'onde peut effectivement être considérée comme une onde plane.

Enfin, on note  $\phi(z) = \tan^{-1}(z/z_R)$  la phase de Gouy.



**Figure I.9** – Variation de la largeur  $R$  (graphique a) et du rayon de courbure  $R_c$  (graphique b) du faisceau gaussien avec la position  $z$  suivant la direction de propagation.

Il est possible de réécrire le champ électrique, défini par l'expression (I.70), en regroupant les termes variant avec le rayon :

$$E(r, z) = E_0 \frac{R_0}{R(z)} e^{-i \frac{\pi r^2}{\lambda q(z)}} e^{-i \left( \frac{2\pi}{\lambda} z - \phi(z) \right)} \quad (\text{I.74})$$

Où l'on pose  $q(z)$ , un rayon de courbure complexe, défini par :

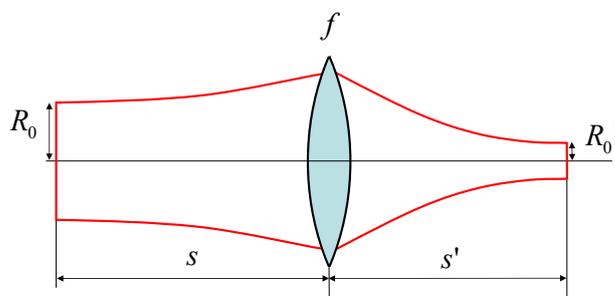
$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R_c(z)} + i \frac{\lambda}{2\pi R^2(z)} \quad (\text{I.75})$$

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

D'après les expressions de  $R_c(z)$  et de  $R(z)$  données précédemment, l'expression du rayon de courbure complexe est :  $q(z) = z - iz_R$ .

#### 3.4.2 Focalisation d'un faisceau gaussien

Dans la description précédente, nous avons vu que le faisceau gaussien est caractérisé par une longueur  $z_R$  (calculée avec la largeur minimale  $R_0$  et la longueur d'onde  $\lambda$ ) et par la position de son col. Afin de savoir à quelle distance l'interface fluctuante doit se situer par rapport à la lentille pour être au col et quelle est la largeur  $R$  de ce col, nous devons savoir comment ces deux paramètres caractéristiques sont modifiés lorsque le faisceau gaussien traverse une lentille (figure I.10).



**Figure I.10** – Focalisation d'un faisceau gaussien par passage à travers une lentille convergente de focale  $f$ . Avant le passage de la lentille, le faisceau possède une largeur minimale  $R_0$  et son col se situe à la distance  $s$  de la lentille. La traversée de la lentille modifie ces deux paramètres, le faisceau focalisé possède une largeur minimale  $R'_0$  et son col se situe à la distance  $s'$  de la lentille.

Un raisonnement simple permet de donner une estimation de ces deux paramètres  $s'$  et  $R'_0$ . Ce raisonnement consiste à assimiler le faisceau laser incident à une onde plane, que l'on imagine être transformée en une onde sphérique convergeant au foyer,  $s' = f$ . Dans ce cas, le demi-angle de divergence de l'onde focalisée est :  $\theta'_0 = \sqrt{2}R_0/f$ . Or, nous avons vu que la largeur du faisceau gaussien, déterminée par la diffraction, est reliée à la divergence et à la longueur d'onde du faisceau par la relation (I.72). On peut donc en déduire la taille minimum  $R'_0$  du faisceau focalisé :

$$R'_0 = \frac{\lambda}{\sqrt{2}\pi\theta'_0} = \frac{f\lambda}{2\pi R_0} \quad (\text{I.76})$$

Ce raisonnement, où l'on assimile le faisceau incident au cas limite d'une onde plane suppose implicitement que la longueur de Rayleigh du faisceau incident  $z_R$  est très grande devant la focale  $f$  de la lentille ainsi que devant la distance  $s$ , séparant le col du faisceau incident du centre de la lentille (figure I.10). Afin de savoir s'il est possible d'utiliser la relation (I.76) pour calculer la taille du faisceau focalisé, il est donc nécessaire de savoir si les conditions  $z_R \gg f$  et  $z_R \gg s$  sont respectées. En pratique, le fabricant du laser donne  $R_0 = 0.20 \text{ mm}$ , on

calcule ainsi  $z_R \approx 0.40 \text{ m}$ . Or les lentilles utilisées possèdent des focales  $f < 70 \text{ mm}$ . Quelle que soit la lentille, on a donc bien  $z_R \gg f$ . En revanche, dans le montage utilisé (figure I.3), le laser se situe à une dizaine de centimètres de la lentille, on a donc  $z_R \approx s$ . L'assimilation du faisceau incident au cas limite d'une onde plane n'est donc pas rigoureux, le col du faisceau focalisé ne se situe donc pas exactement au foyer de la lentille ( $s' \neq f$ ) et la taille minimum du faisceau donnée par la relation (I.76) est seulement une approximation de sa valeur réelle.

Afin de déterminer précisément la position et la taille du col du faisceau focalisé, il est nécessaire d'effectuer un développement plus élaboré. Pour cela, on s'intéresse à la modification du rayon de courbure d'une surface d'onde au passage d'une lentille mince. Dans le cas de l'optique géométrique, la relation entre les rayons de courbure des ondes avant et après le passage de la lentille correspond à la relation de conjugaison. Dans le cas de l'optique gaussienne, nous avons vu précédemment que le faisceau est caractérisé par un rayon de courbure complexe  $q(z)$  :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R_c(z)} + i \frac{\lambda}{2\pi R^2(z)} = \frac{1}{z - iz_R} \quad (\text{I.77})$$

En appliquant la relation de conjugaison à la partie réelle de  $q(z)$ , on obtient une relation de passage sur les rayons de courbures complexes des faisceaux juste avant et juste après la traversée de la lentille. En combinant la relation obtenue à la relation (I.73), qui donne la variation du rayon de courbure avec la propagation, on détermine la position  $s'$  et la longueur  $z'_R$  du faisceau focalisé :

$$s' = \frac{f(s^2 - sf + z_R^2)}{(s - f)^2 + z_R^2} \quad (\text{I.78})$$

$$z'_R = \frac{f^2 z_R}{(s - f)^2 + z_R^2} \quad (\text{I.79})$$

Dans le cas général, la position  $s'$  et la largeur  $R'_0$  (calculable grâce à  $z'_R$ ) sont des fonctions de la position  $s$  et de la largeur  $R_0$  du faisceau incident. On peut vérifier, dans le cas limite où  $z_R \gg f$  et  $z_R \gg s$ , que l'on retrouve les expressions obtenues précédemment  $s' = f$  et  $R'_0 = f\lambda/2\pi R_0$ . En dehors de ces limites, la focalisation dépend également de la position relative du laser et de la lentille.

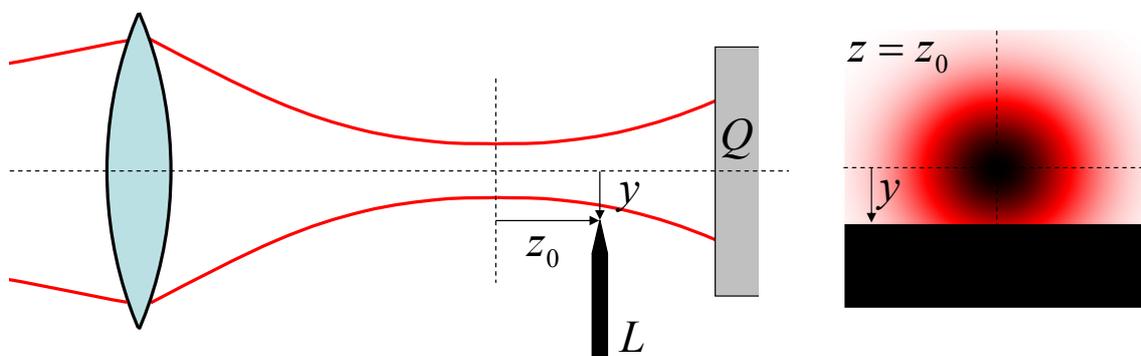
En pratique, pour  $f = 60 \text{ mm}$  et  $s = 0.40 \text{ m}$  les formules (I.78), (I.79) donnent  $s' = 64 \text{ mm}$  et  $R'_0 = 23 \mu\text{m}$  (alors que  $f\lambda/2\pi R_0 = 30.1 \mu\text{m}$ ). Autrement dit, le col du faisceau focalisé se situe  $4 \text{ mm}$  plus loin que le foyer de la lentille et la taille du faisceau  $R'_0$ , évaluée par la relation (I.76), est surestimée de 31%. Afin de pouvoir placer correctement l'interface au col et de déterminer précisément la largeur  $R$ , à utiliser dans la fonction de pondération  $\Phi$ , il est donc nécessaire d'utiliser les relations (I.78) et (I.79).

## I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

### 3.4.3 Mesure

Nous avons mesuré la largeur  $R$  du faisceau laser à une position  $z_0$  suivant la direction de propagation. Pour cela, on obture le faisceau en plaçant une lame de rasoir dans le plan  $z = z_0$  à une hauteur  $y$  et on mesure la puissance lumineuse transmise  $P_{mesurée}(y)$ , reçue sur une photodiode (figure I.11). Nous avons vu que la distribution radiale d'intensité, pour un faisceau gaussien, est de la forme :

$$I(r) = I_0 e^{-\frac{r^2}{R^2}} \quad (\text{I.80})$$



**Figure I.11** – Principe de la mesure de la largeur du faisceau laser (à la distance  $z_0$  du col). On obture le faisceau en plaçant une lame de rasoir ( $L$ ) dans le plan  $z = z_0$  et on mesure l'intensité transmise, reçue sur le quadrant ( $Q$ ) d'une photodiode. En effectuant cette mesure pour différentes hauteurs  $y$  de lame, on en déduit la largeur  $R$  recherchée.

Lorsque l'on obture le faisceau avec la lame de rasoir, la puissance transmise mesurée par la photodiode est :

$$P_{théorique}(y) = \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy I(x, y) \quad (\text{I.81})$$

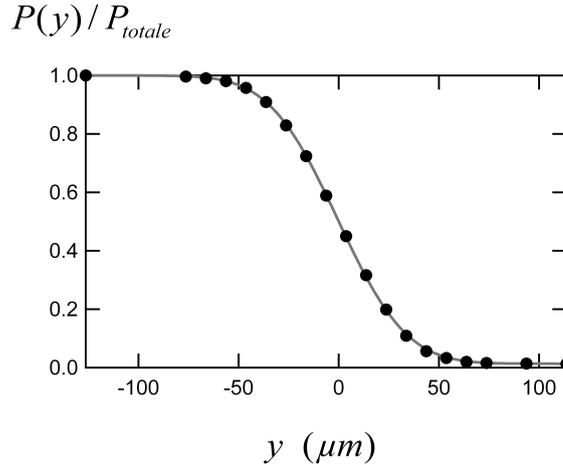
On peut calculer l'expression de la puissance transmise  $P_{théorique}$  normalisée par  $P_{totale}$ , la puissance totale transmise sans lame de rasoir :

$$\frac{P_{théorique}(y)}{P_{totale}} = \frac{1}{2} \left[ 1 - \operatorname{erf} \left( \frac{y}{R} \right) \right] \quad (\text{I.82})$$

où  $\operatorname{erf}$  représente la fonction erreur,  $\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$ .

En déplaçant la lame de rasoir, à l'aide d'une vis micrométrique, à différentes hauteurs  $y$ , puis en ajustant les points obtenus  $P_{mesurée}(y)/P_{totale}$  avec l'expression théorique (I.82), on en déduit la largeur  $R$  du faisceau. Sur la figure I.12, on représente une série de points ex-

périmentaux et l'ajustement correspondant. On remarque que l'accord entre ces points et la courbe théorique est très bon, l'incertitude renvoyée par l'ajustement sur la largeur  $R$  est inférieure au pourcent. En répétant cette mesure de la largeur du faisceau pour différentes po-

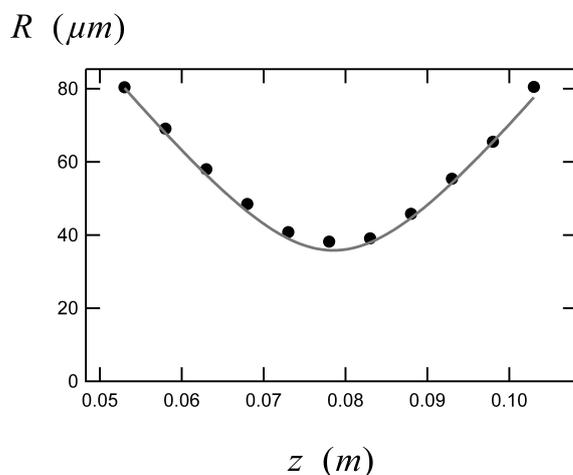


**Figure I.12** – Ajustement de la puissance expérimentale normalisée  $P_{mesurée}(y)/P_{totale}$  (correspondant aux points) par l'expression théorique (I.82) (en trait continu). Le rayon  $R$  du faisceau, retourné par l'ajustement est  $R = 38.2 \pm 0.2 \mu m$ .

sitions, on obtient le profil de variation de la largeur suivant l'axe de propagation (figure I.13). On ajuste ce profil d'après l'expression (I.71) afin de déterminer la largeur minimum  $R'_0$  et la position du col du faisceau. On vérifie que les valeurs obtenues sont en très bon accord avec celles calculées par (I.78) et (I.79). Cette vérification justifie l'utilisation de ces formules pour déterminer les paramètres du faisceau après focalisation. Cela justifie également la description du faisceau laser par un faisceau gaussien, hypothèse utilisée dans le calcul de la fonction de pondération.

Dans ce paragraphe, nous avons donné les lois de l'optique gaussienne permettant de prédire la position et la largeur d'un faisceau après la traversée d'une lentille. Nous avons pu voir que ces deux paramètres ne dépendent pas uniquement de la focale de la lentille mais également de la distance à laquelle on place le laser (par rapport à la lentille). En mesurant le profil d'intensité du faisceau et l'évolution de sa largeur suivant sa propagation, nous avons vérifié que l'approximation de notre faisceau laser à un faisceau gaussien est correcte et que les lois de l'optique gaussienne peuvent être utilisées pour caractériser le faisceau incident à la surface étudiée dans notre technique de mesure des fluctuations.

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire



**Figure I.13** – Variation de la largeur  $R$  du faisceau laser avec la position  $z$  suivant l’axe de propagation. La courbe en trait plein correspond à l’ajustement des points expérimentaux en utilisant l’expression (I.71). La position du col ( $s'$ ) et sa largeur ( $R'_0$ ) permettant d’obtenir cet ajustement sont en très bon accord avec les valeurs prédites par (I.78) et (I.79).

### 3.5 Spectres des fluctuations pour un liquide purement visqueux

Dans ce paragraphe, on détermine la sensibilité du spectre  $S(\omega)$  aux propriétés du milieu sondé ainsi qu’aux propriétés du faisceau laser utilisé. Pour cela, on considère le cas simple d’un milieu semi-infini très visqueux. Ensuite, on compare les spectres des fluctuations mesurées à la surface de différents liquides visqueux à ceux prédits par l’expression (I.63) déterminée au paragraphe 3.3.

Au paragraphe 2.3, nous avons étudié la dynamique des ondes capillaires à la surface libre d’un milieu semi-infini, purement visqueux, où les effets inertiels peuvent être négligés. Dans ce cas particulier, correspondant au régime sur-amorti, les fréquences propres du système  $\omega_n$  sont imaginaires pures :

$$\omega_n = i\tilde{\omega} = \frac{i\gamma k}{2\eta} \quad (\text{I.83})$$

La densité spectrale de hauteur de l’interface  $P(k, \omega)$ , calculée à partir du théorème fluctuation-dissipation (I.25), s’écrit alors :

$$P(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi\gamma k^2} \frac{\frac{1}{\tilde{\omega}}}{1 + \left(\frac{\omega}{\tilde{\omega}}\right)^2} \quad (\text{I.84})$$

Pour un vecteur d’onde  $k_0$  fixé, il s’agit d’une fonction lorentzienne de fréquence caractéristique  $\tilde{\omega}_{k_0} = \frac{\gamma k_0}{2\eta}$ . Pour  $\omega \ll \tilde{\omega}_{k_0}$ ,  $P(k_0, \omega) \sim k_B T \frac{\eta}{\gamma^2 k_0^3}$ , pour  $\omega \gg \tilde{\omega}_{k_0}$ ,  $P(k_0, \omega) \sim k_B T \frac{1}{\eta k_0 \omega^2}$ . Par ailleurs, nous avons vu que la technique mesure principalement les fluctuations dont la longueur d’onde est comparable à la taille du faisceau,  $kR \sim 1$ . Le spectre mesuré  $S(\omega)$  est

## Chapitre I. Mesure des fluctuations d'une interface par réflexion spéculaire

---

donc principalement sensible à la densité spectrale de hauteur  $P(k_0, \omega)$  où  $k_0 = 1/R$ . D'après l'expression théorique du spectre, rappelée ci-dessous,

$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{I.85})$$

on peut en déduire les deux limites asymptotiques du spectre :

$$S(\omega) \sim \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{\eta R}{\gamma^2} \quad \text{pour} \quad \omega \ll \frac{\gamma}{\eta R} \quad (\text{I.86})$$

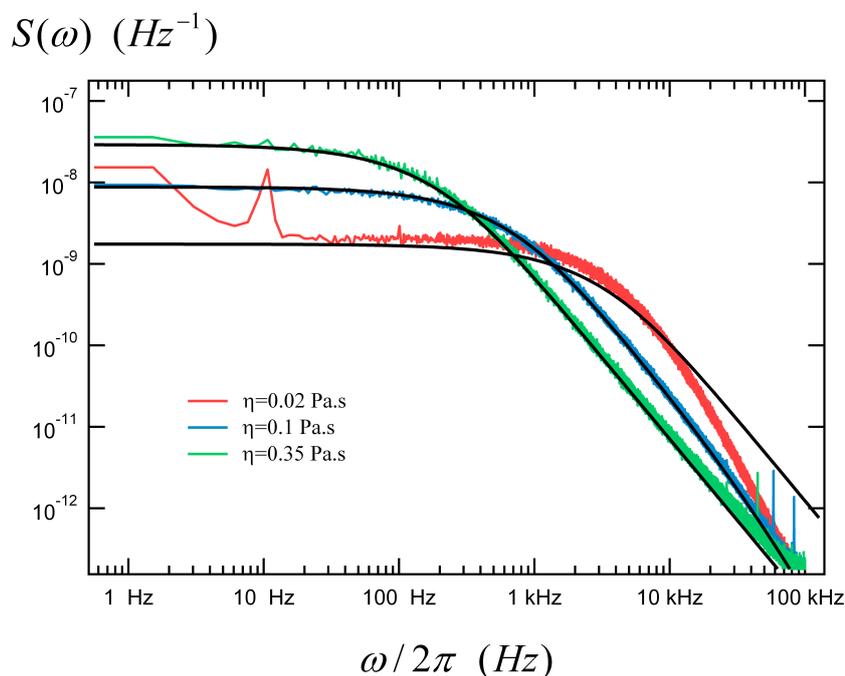
$$S(\omega) \sim \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{1}{\eta R \omega^2} \quad \text{pour} \quad \omega \gg \frac{\gamma}{\eta R} \quad (\text{I.87})$$

Le spectre de fluctuation attendu, dans le cas du régime sur-amorti, possède également une forme lorentzienne. Aux basses fréquences, le spectre possède un plateau principalement sensible à la tension de surface. Aux hautes fréquences, le spectre est indépendant de la tension de surface et il décroît en  $S(\omega) \sim \omega^{-2}$ . Dans les deux limites, le spectre est une fonction du produit  $\eta R$ . Autrement dit, la largeur  $R$  du faisceau utilisé pour mesurer les fluctuations et la viscosité  $\eta$  du milieu fluctuant modifient le spectre de la même manière. Dans ce régime, le signal mesuré ne permet pas de connaître indépendamment les deux paramètres  $\eta$  et  $R$ . Si l'on souhaite déterminer la viscosité  $\eta$  d'un milieu à partir de son spectre de fluctuations, il est essentiel d'avoir correctement déterminé au préalable la largeur  $R$  du faisceau utilisé. En comparant le spectre de fluctuations mesuré à celui calculé numériquement par l'expression (I.85) pour un milieu dont on connaît la tension de surface et la viscosité, on vérifie l'exactitude de la largeur  $R$  choisie. Le bon accord entre le spectre mesuré et le spectre calculé, permet de valider la fonction de pondération calculée.

Sur la figure I.14, on représente en couleur les spectres expérimentaux obtenus pour des huiles silicones commerciales (Rhodorsil, 47V20, 47V100, 47V350). Les courbes noires correspondent aux spectres calculés numériquement par l'équation (I.85) en utilisant les valeurs de viscosité et de tension de surface données par le fabricant, reportées dans le tableau III.2. Les spectres calculés ont été obtenus en prenant  $R = 28.0 \mu m$ , la largeur du faisceau laser dans le plan de l'interface. Cette valeur a été déterminée d'après l'expression I.79 pour une focale  $f = 60 mm$ .

Les spectres des deux huiles les plus visqueuses possèdent bien la forme lorentzienne attendue. Par ailleurs, on vérifie que l'augmentation de la viscosité a pour effet de diminuer la fréquence caractéristique de la lorentzienne et se traduit par une augmentation de l'amplitude du spectre aux basses fréquences (I.86) et une diminution aux hautes fréquences (I.86). Pour les deux huiles les plus visqueuses, l'accord entre le spectre mesuré et le spectre théorique entre 4 Hz et 20 kHz est excellent. La valeur  $R = 28 \mu m$  choisie pour le calcul est donc cohérente avec les spectres mesurés. Cependant, pour  $f > 20 kHz$ , les spectres mesurés

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire



**Figure I.14** – Spectres mesurés à la surface libre d’huiles silicones de différentes viscosités : de bas en haut basse fréquence  $\eta = 0.02, 0.1$  et  $0.35$  Pa.s. Les courbes noires correspondent au calcul numérique des spectres donnés par l’équation (I.85) en utilisant les propriétés des huiles données dans le tableau I.1. Les spectres calculés ont été obtenus en prenant  $R = 28.0 \mu m$ , cette valeur a été déterminée en utilisant l’expression (I.79).

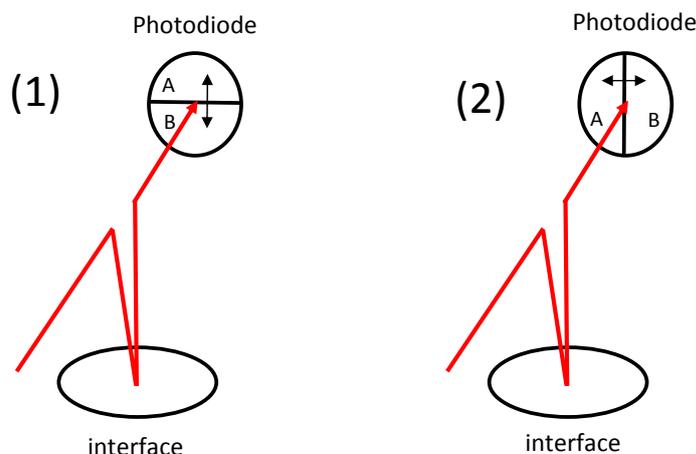
changent légèrement de pente et dévient du spectre théorique. Dans cette zone, l’amplitude des fluctuations mesurées est proche du bruit propre du dispositif de mesure, les fluctuations sont trop faibles pour être correctement mesurées. Pour le cas de l’huile la moins visqueuse  $\eta = 0.02$  Pa.s, l’accord entre le spectre expérimental et théorique n’est pas correct. La pente du spectre, à hautes fréquences, n’est pas celle prévue par le régime sur-amorti, on a  $S_{mesuré} \sim \omega^{-3}$  au lieu de  $S \sim \omega^{-2}$ . Pour cette huile, les fluctuations mesurées se situent dans le régime propagatif, les fréquences propres  $\omega_n$  ne sont pas imaginaires pures. Le terme inertiel non stationnaire  $\rho \frac{\partial v}{\partial t}$ , dans l’équation de Navier Stokes, ne peut plus être négligé pour décrire correctement les fluctuations. Dans le chapitre II, nous verrons comment ce terme inertiel peut être pris en compte. Nous verrons alors que les spectres des liquides peu visqueux sont également bien décrits.

Huiles	Viscosité (Pa.s)	Tension de surface (mN/m)
47V20	0.02	20.6
47V100	0.1	20.9
47V350	0.35	21.1

**Tableau I.1** – Propriétés des huiles silicones données par le fabricant pour  $25^\circ\text{C}$ .

### 3.6 Particularité de la détection à 2 quadrants

Notons que le signal mesuré  $\delta V$ , est uniquement sensible aux variations de pente de la surface libre dans une direction donnée. Cette direction est fixée par la position des deux quadrants. La position relative des deux quadrants définit la direction suivant laquelle les fluctuations sont détectées. Dans le schéma représenté figure I.3, correspondant à la configuration (1) de la figure I.15, les photodiodes sont placées l'une au-dessus de l'autre. En plaçant les quadrants l'un à côté de l'autre, correspondant à la configuration (2) de la figure I.15, on peut mesurer les fluctuations dans une direction perpendiculaire. On vérifie que les spectres obtenus dans ces deux configurations sont strictement identiques. Les fluctuations mesurées sont indépendantes de la direction choisie. Cette vérification confirme que les fluctuations de surface sont isotropes et confirme que l'angle d'incidence du faisceau n'influence pas les spectres. Au chapitre III, nous étudierons des films minces supportés par un substrat texturé. Dans ce cas les fluctuations deviennent anisotropes, les spectres mesurés dans les deux configurations sont différents.



**Figure I.15** – La disposition des quadrants  $A$  et  $B$  de la photodiode définit la direction suivant laquelle les fluctuations sont mesurées. Dans les deux configurations schématisées, les fluctuations sont mesurées dans deux directions perpendiculaires.

### 3.7 Effet du réglage de la position de l'interface dans le faisceau

Dans ce paragraphe, on discute de l'effet du réglage de la position de l'interface dans le faisceau. Nous verrons que la sensibilité de la technique dépend de ce réglage et se traduit par une diminution de l'amplitude du spectre lorsque l'interface ne se situe pas au col. Nous

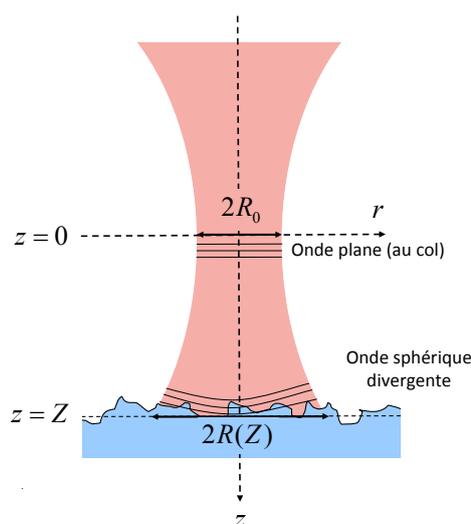
### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

verrons également comment prendre en compte ces effets dans le calcul du spectre.

Dans le calcul de la fonction de pondération  $\Phi$ , effectué en annexes A et B, on suppose que la surface d'onde incidente à l'interface est plane. Or, pour un faisceau gaussien, d'après l'expression du rayon de courbure  $R_c$  donné par (I.73), rappelée ci dessous :

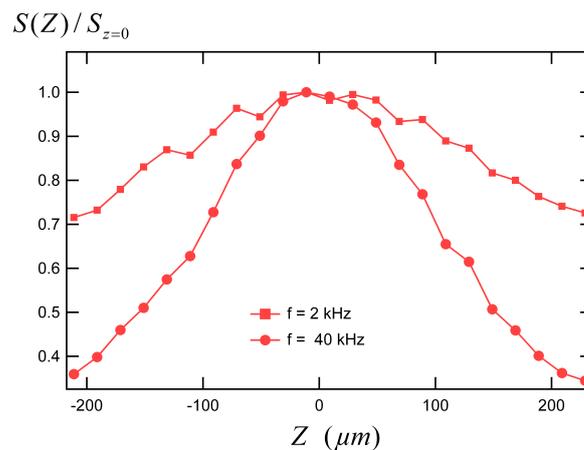
$$R_c(z) = z \left( 1 + \frac{z_R^2}{z^2} \right) \quad (\text{I.88})$$

cette hypothèse est correcte uniquement au col du faisceau. En effet, pour  $z=0$ , on a effectivement  $R_c \rightarrow \infty$ . De part et d'autre du col, c'est-à-dire pour  $z \neq 0$ , le rayon de courbure est fini, la surface d'onde incidente à l'interface n'est donc pas plane mais sphérique (figure I.16). Cette onde sphérique est convergente si l'on place l'interface avant le col ( $z < 0$ ), et divergente si l'on place l'interface après le col ( $z > 0$ ). D'après (I.88), la distance caractéristique sur laquelle le rayon de courbure évolue est la longueur de Rayleigh  $z_R = 2\pi R_0^2/\lambda$ . En effet, c'est cette longueur qui définit la limite entre le champ proche et le champ lointain du faisceau. Notons que plus le faisceau est focalisé, plus la longueur  $z_R$  est faible et moins la surface d'onde peut être considérée plane. De plus, d'après l'expression (I.71), la taille du faisceau augmente de part et d'autre du col. Or, le signal mesuré dépend de la largeur du faisceau éclairant l'interface. On rappelle que cette taille apparaît dans la fonction de pondération  $\Phi$  et définit la longueur d'onde des fluctuations auxquelles le signal  $\delta V$  est principalement sensible. On peut donc déjà affirmer que le spectre mesuré doit dépendre de la position à laquelle on place l'interface dans le faisceau.



**Figure I.16** – Lorsque l'interface se situe à une distance  $Z$  du col du faisceau laser, la largeur  $R(Z)$  du faisceau dans le plan de l'interface est différente de la largeur  $R_0$  au col. Par ailleurs, l'onde lumineuse incidente, n'est plus plane mais sphérique.

En pratique, l'interface ne se situe jamais exactement dans le plan  $z = 0$ . Il est donc intéressant de savoir de quelle façon le spectre est modifié lorsque l'on place l'interface en dehors du col du faisceau laser (figure I.16). Cela nous permettra de savoir quel degré de précision il est nécessaire d'atteindre pour placer l'interface dans le faisceau laser. Pour étudier cet effet, on mesure les spectres de fluctuations en plaçant l'interface à différentes hauteurs  $Z$  dans le faisceau laser. Sur la figure I.17, on représente l'évolution de l'amplitude du spectre normalisée par celle obtenue au col en fonction de la position  $Z$ . On affiche ces variations pour deux fréquences : 2 kHz et 40 kHz. Le liquide sondé est une huile silicone ( $\gamma = 20.6 \text{ mN/m}$  et  $\eta = 20 \text{ mPa.s}$ ) et le faisceau laser utilisé possède une largeur au col de  $R_0 = 3.5 \mu\text{m}$ . L'amplitude du spectre est maximum au col et décroît de façon symétrique de part et d'autre. La chute de l'amplitude du spectre dépend de la fréquence. Lorsque l'interface se situe à  $\pm 200 \mu\text{m}$  du col, à 2 kHz, l'amplitude du spectre est 1.4 fois moins élevée qu'au col, et à 40 kHz, l'amplitude est 2.6 fois moins élevée qu'au col. Pour le liquide sondé et pour la largeur du faisceau utilisé, les deux fréquences (2 kHz et 40 kHz) se situent respectivement sur le plateau et sur la décroissance (en  $S \sim \omega^{-2}$ ) du spectre. Or, dans ces deux régimes, définis par (I.86), (I.87), l'amplitude du spectre est respectivement proportionnelle et inversement proportionnelle à la taille du faisceau. Les décroissances observées sur la figure I.17 ne peuvent donc pas uniquement être expliquées par l'augmentation de la largeur du faisceau en dehors du col. Autrement dit, on ne peut pas décrire les spectres mesurés en dehors du col par (I.85) en prenant un rayon effectif supérieur à  $R_0$ . Ceci est la preuve que la sensibilité de la technique dépend de la forme du front d'onde du faisceau qui éclaire l'interface. Lorsque l'onde incidente n'est plus plane mais sphérique, la sensibilité de la technique décroît.



**Figure I.17** – Amplitude du spectre normalisé par l'amplitude maximale en fonction de la position  $Z$  à laquelle est située l'interface sondée dans le faisceau laser. On affiche ces variations à 2 kHz et 40 kHz. Les spectres sont obtenus sur une huile telle que  $\gamma = 20.6 \text{ mN/m}$  et  $\eta = 20 \text{ mPa.s}$  avec un faisceau laser tel que  $R_0 = 3.5 \mu\text{m}$ . L'amplitude du spectre est maximale au col du faisceau pour  $z = 0$ . De part et d'autre, l'amplitude du spectre décroît.

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

Afin de décrire correctement les spectres mesurés hors du col, il est nécessaire de reprendre le calcul effectué au paragraphe 3.3 qui détermine le spectre  $S(\omega)$ . Pour tenir compte de la forme exacte du front d'onde du faisceau incident, on décrit le champ du faisceau par la forme générale (I.70), rappelée ci-dessous :

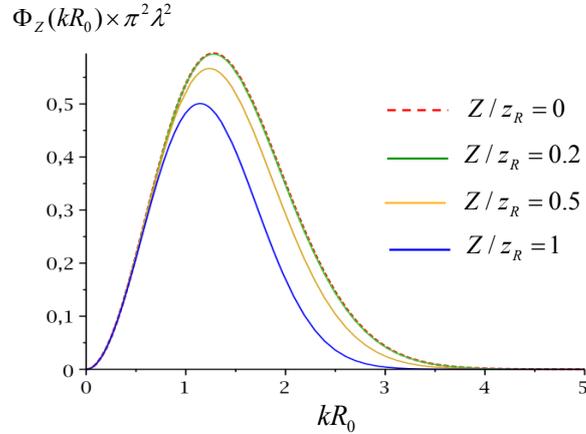
$$E(r, z) = E_0 \frac{R_0}{R(z)} e^{-\frac{r^2}{2R(z)^2}} e^{-i\left(\frac{2\pi}{\lambda}z - \phi(z) + \frac{2\pi}{\lambda} \frac{r^2}{2R(z)}\right)} \quad (\text{I.89})$$

Pour  $z = 0$ , il s'agit du champ gaussien réel utilisé dans le calcul précédent :  $E(r) = E_0 e^{-\frac{r^2}{2R_0}}$ . L'utilisation du champ exact  $E(r, z)$ , défini d'après I.89, permet donc de généraliser le calcul précédent. Ce calcul est effectué en annexe D et montre que les spectres mesurés en plaçant l'interface à une distance  $Z$  du col se mettent sous la même forme :

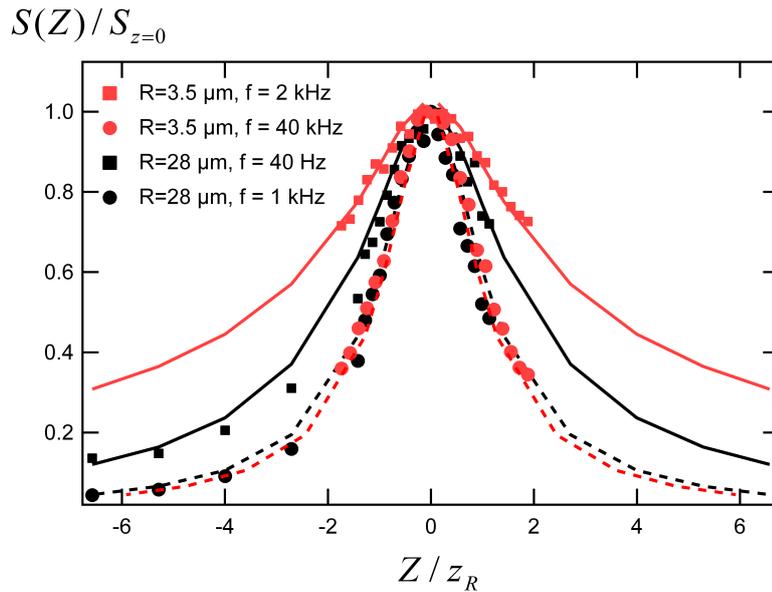
$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_Z(k) k dk \quad (\text{I.90})$$

où  $\Phi_Z$  est une fonction de pondération qui dépend du vecteur d'onde  $k$ , de la longueur d'onde  $\lambda$  et du rapport entre la distance  $Z$  et la longueur de Rayleigh  $z_R$ . Comme pressenti en début de discussion,  $z_R$  est la longueur caractéristique du problème. Sur la figure I.18, on affiche les fonctions de pondération  $\Phi_Z$  normalisées par  $1/\pi^2 \lambda^2$  en fonction du produit  $kR_0$  calculées pour les rapports  $Z/z_R = 0, 0.2, 0.5$  et  $1$ . Pour les deux premiers rapports, quel que soit le vecteur d'onde  $k$ , on n'observe aucune différence. Pour ces rapports, la sensibilité est très proche de celle obtenue en plaçant l'interface exactement au col. En revanche pour  $Z/z_R=0.5$  et  $Z/z_R=1$ , aux vecteurs d'onde tels que  $kR_0 \geq 1$ , la fonction de pondération est plus faible. Lorsque l'on place l'interface à une distance  $Z$  comparable à  $z_R$ , la technique devient moins sensible aux fluctuations telles que  $kR_0 \geq 1$ .

Sur la figure I.19, on représente en rouge les points de la figure I.17 en fonction du rapport  $Z/z_R$ . On rappelle que ces points ont été obtenus avec un faisceau tel que  $R_0 = 3.5 \mu\text{m}$ . Sachant que  $z_R = 2\pi R_0^2/\lambda = 122 \mu\text{m}$ , les points correspondent à un rapport  $Z/z_R$  inférieur à 2. Les courbes rouges en traits pleins et traits pointillés représentent les amplitudes de fluctuations calculées grâce à l'expression (I.90) aux deux fréquences 2 kHz et 40 kHz. Pour chaque fréquence, la diminution de l'amplitude des spectres est correctement décrite. Les points noirs correspondent à une mesure des fluctuations en dehors du col où la largeur minimale du faisceau est  $R_0 = 28 \mu\text{m}$ . Dans ce cas, la longueur de Rayleigh est égale à  $z_R = 7.8 \text{mm}$ . La diminution de l'amplitude du spectre est à nouveau bien décrite par la nouvelle expression du spectre (I.90). Notons que cette nouvelle expression permet de décrire les mesures obtenues des rapports  $Z/z_R$  relativement importants. En effet, dans le calcul de la fonction d'appareil  $\Phi_Z$ , aucune hypothèse n'a été effectuée sur la distance  $Z$ . L'expression (I.90) est donc valable aussi bien en champ proche ( $|Z| < z_R$ ) qu'en champ lointain ( $|Z| > z_R$ ).



**Figure I.18** – Fonctions de pondération  $\Phi_Z$  normalisées par  $1/\pi^2\lambda^2$  en fonction du produit  $kR_0$  calculées pour les rapports  $Z/z_R = 0, 0.2, 0.5$  et  $1$ . Les courbes obtenues pour les rapports  $Z/z_R = 0$  et  $Z/z_R = 0.2$  affichées respectivement en trait rouge pointillés et trait vert continu sont difficiles à distinguer.



**Figure I.19** – Variations de l'amplitude normalisée des spectres en fonction du rapport  $Z/z_R$ . Les points rouges correspondent aux points affichés sur la figure I.17. Les points noirs sont obtenus avec un faisceau tel que  $R_0 = 28 \mu m$ . Les courbes en traits pleins et en traits pointillés correspondent aux amplitudes calculées d'après (I.90) et se superposent aux points expérimentaux quelle que soit la largeur du faisceau, quelle que soit la fréquence.

En conclusion, le spectre mesuré avec notre technique est sensible à la position à laquelle est placée l'interface dans le faisceau. L'amplitude du spectre diminue lorsqu'on éloigne l'interface du col. Le spectre mesuré en dehors du col peut être correctement décrit en introduisant une nouvelle fonction d'appareil  $\Phi_Z$  qui dépend de la distance séparant l'interface du col.

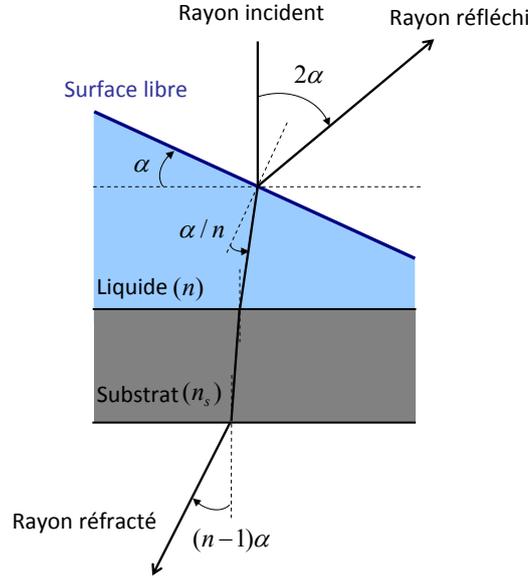
### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire

Cette fonction d'appareil est obtenue en généralisant le calcul effectué au paragraphe 3.3 en utilisant la forme exacte du champ lumineux pour un faisceau gaussien. D'après l'expression de  $\Phi_Z$ , la vitesse à laquelle l'amplitude décroît dépend du rapport  $Z/z_R$ . Ainsi, le réglage de la position de l'interface dans le faisceau (pour obtenir une sensibilité maximale) est de plus en plus délicat lorsque l'on réduit la taille  $R_0$  du faisceau. Enfin, d'après la forme des fonctions  $\Phi_Z(k)$ , la baisse de l'amplitude du spectre en dehors du col est principalement due à la chute de la sensibilité de la technique aux grands modes de fluctuations. En pratique, pour  $R = 28 \mu m$  ( $z_R = 7.8 \text{ mm}$ ), si l'on souhaite mesurer un spectre dont l'amplitude est moins de 5% différente de celle calculée en utilisant la fonction de pondération au col ( $\Phi_{Z=0}$ ), on doit placer l'interface à moins de 3 mm du col.

### 3.8 Mesure en transmission

Dans ce paragraphe, on montre que l'on est capable de mesurer les fluctuations en détectant le faisceau réfracté à la surface libre du milieu. On montre que les spectres obtenus sont identiques à ceux mesurés à partir du faisceau réfléchi à un facteur près qui dépend de l'indice optique du milieu.

Jusqu'ici, la technique présentée permet de mesurer les fluctuations de hauteur d'interface à partir de la détection d'un faisceau laser réfléchi sur l'interface étudiée. Nous allons montrer la possibilité de mesurer ces fluctuations à partir de la détection du faisceau réfracté par l'interface. En effet lorsque l'interface fluctue, les rayons réfléchis et réfractés par cette interface sont déviés, il est donc possible de mesurer les fluctuations d'interface aussi bien en détectant les fluctuations du faisceau réfléchi que celles du faisceau réfracté. Cependant les rayons réfléchis et réfractés ne sont pas déviés de la même manière. Pour évaluer ces déviations, on considère un rayon incident, normal à la surface libre horizontale, séparant l'air et un milieu fluctuant d'indice optique  $n$ . Lorsque cette surface libre fluctue et forme un angle  $\alpha$  avec l'horizontale, le rayon réfléchi est dévié d'un angle  $2\alpha$  et le rayon réfracté dans le liquide est dévié dans la direction opposée d'un angle  $\alpha/n$  (Figure (I.20)). En pratique, le faisceau réfracté par la surface libre n'est pas directement détectable. En effet, avant de se propager dans l'air et de pouvoir être détecté par les photodiodes, ce faisceau est à nouveau réfracté par les deux interfaces du substrat transparent. Le rayon réfracté à la traversée du substrat est alors dévié d'un angle  $(n-1)\alpha$ . Cette valeur ne dépend pas de l'indice optique du substrat, mais uniquement de l'indice  $n$  du milieu fluctuant. Par ailleurs, le spectre de fluctuation mesuré est proportionnel à la fonction de corrélation de fluctuation d'angle du faisceau détecté. D'après les déviations calculées pour les rayons réfléchis et réfractés, les spectres de fluctuations  $S_{\text{réflexion}}^A$  et  $S_{\text{réfraction}}^A$ , obtenus en détectant respectivement le faisceau réfléchi et le faisceau réfracté par l'interface, comme représenté sur le schéma (A) de la figure I.21, sont



**Figure I.20** – Déviations du rayon réfléchi et réfracté par le dioptre séparant l'air du milieu fluctuant d'indice optique  $n$ . Ces déviations s'obtiennent à partir des lois de Snell-Descartes et fixent les amplitudes respectives des spectres mesurés en détectant le faisceau réfléchi ou le faisceau réfracté. Notons qu'en réfraction, la déviation du rayon devient dépendante de l'indice optique  $n$ .

liés tels que :

$$S_{\text{réflexion}}^A = (2)^2 S \quad (\text{I.91})$$

$$S_{\text{réfraction}}^A = (n - 1)^2 S \quad (\text{I.92})$$

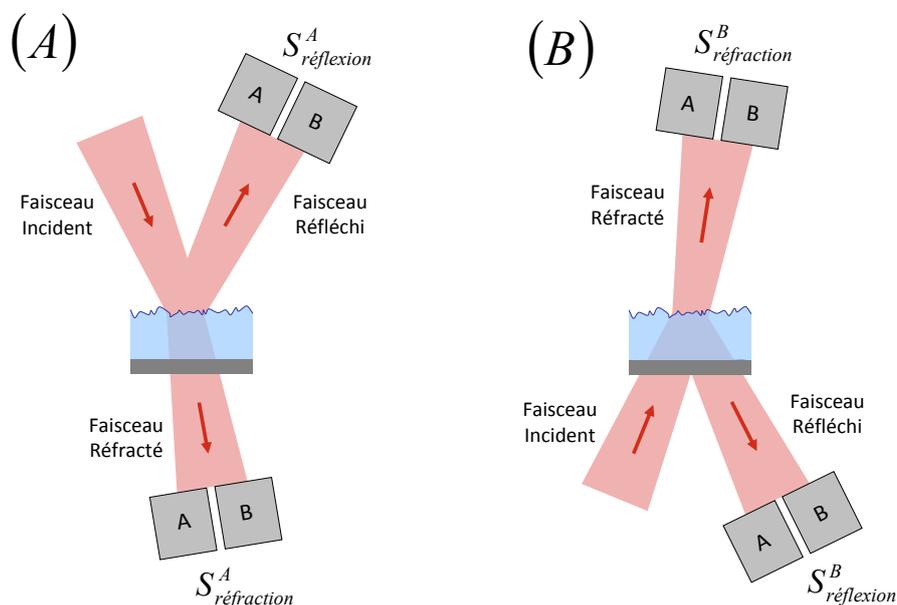
Il est également possible de mesurer les fluctuations de l'interface en éclairant l'interface par-dessous comme représenté sur le schéma (B) de la figure I.21. En évaluant les déviations des rayons avec le même raisonnement d'optique géométrique que celui effectué précédemment, on peut relier les spectres de fluctuations  $S_{\text{réflexion}}^B$  et  $S_{\text{réfraction}}^B$  :

$$S_{\text{réflexion}}^B = (2n)^2 S \quad (\text{I.93})$$

$$S_{\text{réfraction}}^B = (n - 1)^2 S \quad (\text{I.94})$$

On peut vérifier la validité des expressions (I.91), (I.92), (I.93) et (I.94) en comparant les spectres de fluctuations obtenus dans les quatre configurations possibles (figure I.21). On mesure ces différents spectres sur une huile purement visqueuse dont on connaît l'indice optique,  $n = 1.61$ . Les spectres obtenus sont représentés sur le graphique (a) de la figure I.22. Comme attendu, l'amplitude des spectres en réflexion est supérieure à celle des spectres en réfraction. Sur le graphique (b), on représente ces spectres normalisés par les sensibilités correspondantes, calculées avec  $n = 1.61$ . On vérifie que l'on obtient une unique spectre, noté  $S$

### I.3 Description de la mesure des fluctuations de surface par réflexion spéculaire



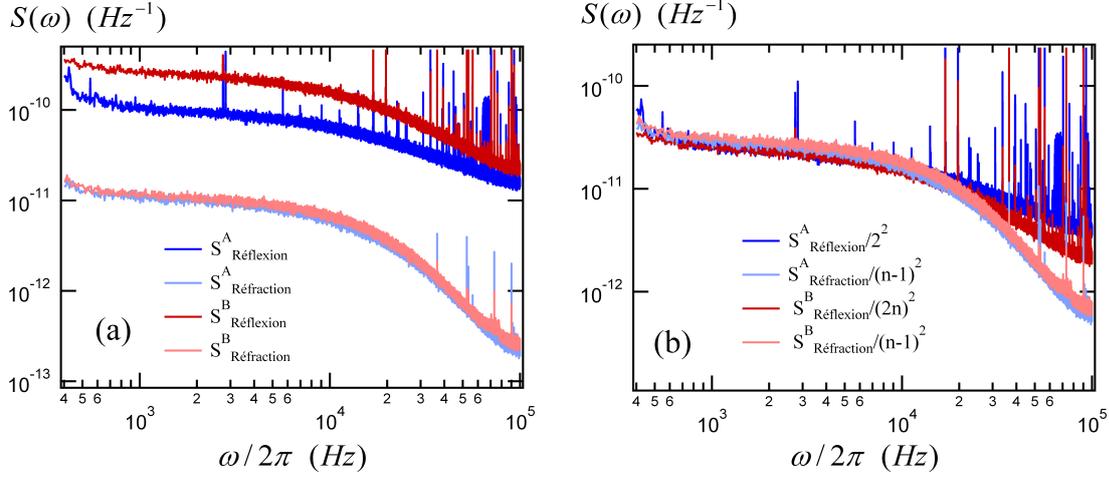
**Figure I.21** – Configurations possibles pour mesurer les fluctuations d'interface. Sur le schéma (A), on éclaire la surface libre par-dessus tandis que sur le schéma (B), on l'éclaire par-dessous. Dans les deux cas, il est possible de mesurer les fluctuations en détectant le faisceau réfléchi ou réfracté.

dans les expressions (I.91), (I.92), (I.93) et (I.94). Cependant, à hautes fréquences, il existe un écart entre les spectres normalisés obtenus en réflexion et ceux obtenus en réfraction. Cet écart s'explique par la grande différence d'intensité reçue dans ces deux cas, qui fixe le seuil de détection des fluctuations à des niveaux différents. En effet dans notre cas, l'intensité transmise est environ dix fois plus importante que celle réfléchie par l'interface. Donc malgré la plus faible sensibilité aux fluctuations en réfraction qu'en réflexion, le niveau du seuil de détection des fluctuations reste inférieur en réfraction.

Dans ce paragraphe, les sensibilités aux fluctuations d'interface dans les différentes configurations ont été obtenues en effectuant un raisonnement d'optique géométrique. Nous allons voir que ces sensibilités peuvent également être retrouvées avec le calcul du spectre théorique, effectué précédemment. Dans ce calcul, où l'on évalue les intensités diffusées sur chacun des détecteurs, on utilise le déphasage des ondes diffusées dans la direction de ces détecteurs. Lorsque la détection s'effectue sur le faisceau réfléchi (pour le cas (A) de la figure I.21), nous avons vu que ce déphasage s'écrit :

$$\frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} + 2\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{I.95})$$

Or, dans ce calcul, on effectue un développement limité de ce déphasage en  $\frac{2\pi}{\lambda} a [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)]$ , avec  $a = 2$ .



**Figure I.22** – (a) : Spectres de fluctuations obtenus pour une huile visqueuse dans les quatre configurations présentées sur la figure I.21. (b) Normalisation des spectres par les sensibilités respectives données dans les relations (I.91), (I.92), (I.93) et (I.94).

Dans le cas où la détection s'effectue sur le faisceau réfracté, le déphasage s'écrit :

$$\frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} + (1 - n)\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{I.96})$$

où  $n$  est l'indice optique du milieu fluctuant. On peut donc effectuer le même type de développement limité en  $\frac{2\pi}{\lambda} a [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)]$ . Mais dans ce cas, on a  $a = (1 - n)$ . Or, la suite du calcul ne dépend pas de la configuration et montre que le spectre  $S(\omega)$  est proportionnel au terme  $a^2$ . On retrouve bien le même résultat que celui obtenu en optique géométrique, c'est-à-dire  $S(\omega) = (n - 1)^2 S$  en réfraction et  $S(\omega) = (2)^2 S$  en réflexion.

Dans la suite de cette thèse, nous serons amené à considérer un cas où le signal mesuré dépend à la fois du faisceau réfléchi et du faisceau réfracté par la surface libre. Dans ce cas, la sensibilité du montage aux fluctuations s'écrira comme une combinaison des deux sensibilités en réflexion et en réfraction vues dans ce paragraphe. La sensibilité dépendra alors de l'indice optique du milieu fluctuant.

## 4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une technique optique sensible aux fluctuations d'interface activées thermiquement. Ces fluctuations sont mesurées simplement en détectant la réflexion d'un faisceau laser sur l'interface. Contrairement à la technique de diffusion, cette technique à l'avantage de prendre en compte les contributions de différents modes

spatiaux. Par conséquent, l'information spatiale est affaiblie mais le signal obtenu est très intense et permet de mesurer des fluctuations de très faibles amplitudes. Nous avons calculé la sensibilité de la technique aux différents modes de surface et relié les propriétés dynamiques des fluctuations de hauteur au spectre mesuré. En utilisant des huiles calibrées, nous avons observé un excellent accord entre l'amplitude des fluctuations expérimentale et celle prédite théoriquement. Si l'interface est bien placée au col du faisceau, la sensibilité de la technique dépend seulement de la largeur du faisceau et de la longueur d'onde. En connaissant ces deux paramètres, le signal mesuré nous renseigne sur les propriétés dynamiques du milieu sondé. L'objectif du chapitre suivant est de déterminer ces propriétés à partir du signal mesuré dans le cas de milieux viscoélastiques.



---

---

# Chapitre II

---

## Mesure des fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

### 1 Introduction

Les propriétés dynamiques des fluctuations dépendent à la fois des propriétés visqueuses et élastiques du milieu. Ainsi la mesure des fluctuations permet de caractériser le comportement mécanique linéaire du milieu sans avoir à le solliciter. Contrairement à la rhéologie macroscopique typique, aucune contrainte n'est appliquée, ceci est particulièrement utile pour l'étude des fluides complexes où même une petite déformation imposée peut entraîner une réorganisation de la structure au sein du matériau et donc changer ses propriétés viscoélastiques (écrouissage ou rhéofluidification). De plus, il est possible d'accéder aux informations à des fréquences supérieures à 10 Hz - 100 Hz, pour lesquelles la caractérisation des matériaux avec un rhéomètre classique n'est pas possible et constitue un véritable challenge.

Cette idée de sonder le matériau à partir de l'observation des conséquences de l'agitation thermique a déjà été exploitée dans de nombreuses expériences que l'on peut classer en deux catégories : les techniques de diffusion de la lumière et celles de micro-rhéologie. Les techniques de diffusion débutèrent dans les années 70 et consistent à mesurer la lumière diffusée par le volume (DLS, DWS) ou bien par la surface libre du milieu étudié. En mesurant l'intensité à différents angles, le spectre des différents modes spatiaux est sondé. Ces techniques possèdent une bonne résolution spatiale mais la faible intensité du signal mesuré ne permet pas d'étudier des matériaux trop rigides. Les techniques de micro-rhéologie (passives) consistent à suivre le déplacement d'une ou plusieurs particules dans le milieu et déterminent la complaisance du matériau. Ainsi, la micro-rhéologie accède aux propriétés locales mais s'applique uniquement aux matériaux transparents. Par ailleurs, le comportement sondé peut parfois dépendre de la taille de la particule introduite.

La méthode expérimentale présentée au chapitre précédent a l'avantage de pouvoir mesurer les fluctuations de façon non invasive dans une large gamme de fréquences (5 décades) atteignant 100 kHz. Ainsi, l'analyse des spectres  $S(\omega)$  doit permettre de caractériser les pro-

priétés viscoélastiques du milieu dans le même gamme de fréquence. La description de la méthode fait l'objet de ce chapitre. De plus, compte tenu de l'intensité du signal détecté (largement supérieure aux techniques de diffusion), notre montage offre la perspective de caractériser des matériaux relativement rigides. Les résultats présentés dans ce chapitre ont été publiés dans les articles suivants : [18, 19]. Avant d'extraire les propriétés viscoélastiques à partir du spectre, nous allons généraliser l'expression de la susceptibilité lorsque les effets de l'inertie affectent les fluctuations et lorsque le milieu n'est plus seulement visqueux mais également élastique. Dans ce cas général d'un milieu viscoélastique, nous étudierons la sensibilité du spectre aux différentes grandeurs du problème, comme cela a été fait précédemment dans le cas particulier d'un milieu purement visqueux.

## 2 Fluctuations de surface d'un liquide peu visqueux : effet de l'inertie

Dans certaines conditions, le spectre de fluctuations mesuré est sensible aux effets inertiels. Dans cette partie, nous allons voir comment prendre en compte les effets inertiels dans la description des fluctuations de surface et comment ces effets affectent les spectres mesurés.

### 2.1 Propriétés dynamiques des fluctuations pour un liquide peu visqueux

Dans le paragraphe 2.3, la susceptibilité  $\chi(k, \omega)$  a été déterminée dans le cas d'un milieu purement visqueux où le terme inertiel non stationnaire  $\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t}$ , de l'équation de Navier-Stokes, peut être négligé dans la description des fluctuations d'interface. Cette hypothèse est correcte lorsque le nombre de Stokes est tel que  $St = \frac{\omega \rho}{\eta k^2} \ll 1$ . Dans ce régime visqueux, les fluctuations sont sur-amorties, la susceptibilité s'écrit :

$$\chi(k, \omega) = \frac{1}{k(\gamma k + 2i\omega\eta)} \quad (\text{II.1})$$

A haute fréquence, le nombre de Stokes peut devenir de l'ordre de 1. A titre d'exemple, pour une huile silicone de viscosité  $\eta = 100 \text{ mPa.s}$  et  $R = 28 \text{ }\mu\text{m}$ ,  $St \sim 1$  pour  $f = 20 \text{ kHz}$ . Dans ce cas, le terme inertiel non stationnaire ne peut plus être négligé, l'équation de Navier-Stokes à résoudre est la suivante :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = \vec{\nabla} p + \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} \quad (\text{II.2})$$

La résolution de l'équation (II.2), pour les mêmes conditions aux limites que celles définies au paragraphe 2.3, mène à un champ de vitesse qui s'écrit sous la forme d'une double décroissance exponentielle. La première décroissance en  $\exp(-k|z|)$ , fait naturellement apparaître la longueur d'onde de fluctuation. La seconde décroissance, moins évidente, est proportionnelle à  $\exp(-l|z|)$  où  $l = k\sqrt{1 - iSt}$  est une longueur complexe qui dépend à la fois du

## II.2 Fluctuations de surface d'un liquide peu visqueux : effet de l'inertie

---

vecteur d'onde et du nombre de Stokes. D'après cette résolution, effectuée par Bouchiat [11], la susceptibilité s'écrit :

$$\chi(k, \omega) = \frac{1}{k \left( \gamma k - \frac{\omega \eta}{St} \left[ 4\sqrt{1 + iSt} - (2 + iSt)^2 \right] \right)} \quad (\text{II.3})$$

Avec  $St = \frac{\omega \rho}{\eta k^2}$ . Dans ce cas, la susceptibilité dépend de la viscosité  $\eta$ , de la tension de surface  $\gamma$ , mais aussi de la masse volumique du milieu  $\rho$ .

### Les comportements asymptotiques :

Lorsque les effets inertiels sont négligeables ( $\rho \rightarrow 0$ ), on retrouve la susceptibilité du régime visqueux (I.38). Dans cette limite, la fréquence propre  $\omega_n$  du système, qui correspond au pôle de la susceptibilité, est imaginaire pure :

$$\omega_n = \frac{i\gamma k}{2\eta} \quad (\text{II.4})$$

Les perturbations décroissent exponentiellement au cours du temps. Il n'y a pas de propagation d'onde à la surface.

A l'opposé, lorsque le milieu est très peu visqueux ( $\eta \rightarrow 0$ ), les effets inertiels dominent et la susceptibilité s'écrit :

$$\chi(k, \omega) = \frac{1}{k \left( \gamma k - \frac{\rho \omega^2}{k^2} \right)} \quad (\text{II.5})$$

Dans cette limite, les fréquences propres sont réelles :

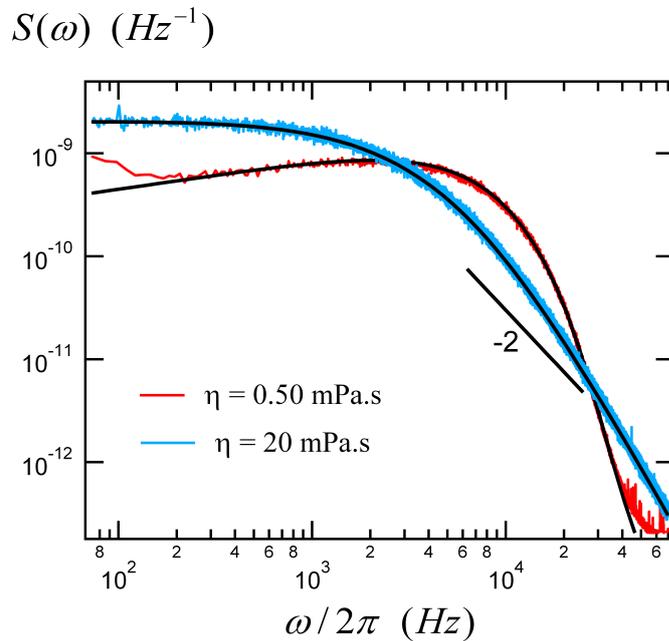
$$\omega_n = \sqrt{\frac{\gamma k^3}{\rho}} \quad (\text{II.6})$$

Il s'agit du régime propagatif, les perturbations peuvent être vues comme des ondes de surface. Dans ce régime, notons que la dynamique des fluctuations est indépendante de la viscosité.

## 2.2 Spectre mesuré d'un liquide peu visqueux

Nous allons étudier les spectres de fluctuations obtenus dans le cas où ces effets inertiels interviennent. Sur la figure I.14 du paragraphe 3.5, les effets de l'inertie ont déjà été observés pour l'huile la moins visqueuse ( $\eta = 20 \text{ mPa.s}$ ). En effet, pour cette huile, il existe un désaccord à haute fréquence entre le spectre mesuré et celui calculé numériquement avec une susceptibilité définie par (II.1). En recalculant le spectre avec la susceptibilité (II.3), qui prend en compte les effets inertiels, on obtient un excellent accord avec le spectre mesuré quelle que

soit la fréquence considérée (Figure II.1). On peut accentuer l'effet de l'inertie, en mesurant les fluctuations sur un liquide dont la viscosité est encore plus faible. Sur la figure II.1, on représente également le spectre mesuré pour une huile de viscosité  $\eta = 0.5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  (en rouge). L'accord avec le spectre calculé (en trait noir) est toujours excellent. La nouvelle expression de la susceptibilité (II.3) permet de décrire correctement tous les spectres mesurés. L'effet de l'inertie augmente fortement la pente du spectre à haute fréquence. On remarque également la disparition du plateau à basse fréquence, qui est remplacé par une pente légèrement positive. Les spectres ont perdu leur forme lorentzienne.



**Figure II.1** – Spectres mesurés pour des huiles de faibles viscosités  $\eta = 20 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  (bleu) et  $\eta = 0.50 \text{ mPa}\cdot\text{s}$  (rouge). Les courbes noires correspondent au calcul numérique des spectres donnés par l'équation (I.85) où la susceptibilité est définie par (II.3). Les spectres ne possèdent plus la forme lorentzienne caractéristique du régime visqueux en raison des effets inertiels.

Il est intéressant de connaître la sensibilité du spectre  $S(\omega)$  aux paramètres  $\gamma$ ,  $\eta$ ,  $\rho$ ,  $R$  pour le régime inertiel, comme cela a été fait au paragraphe 3.5 pour le régime visqueux. Cependant, on remarque que dans le cas limite du régime inertiel, la susceptibilité est réelle (II.5). Or, la densité spectrale de hauteur  $P(k, \omega)$ , donnée par le théorème fluctuation-dissipation, est proportionnelle à la partie imaginaire de la susceptibilité. Donc, afin de calculer la fonction  $P(k, \omega)$ , il est nécessaire d'utiliser l'expression générale (II.3), dont la partie imaginaire n'a pas d'expression analytique simple. Autrement dit, les sensibilités du spectre  $S(\omega)$  dans le régime inertiel, ne sont pas accessibles directement. Le calcul permettant de connaître les sensibilités est effectué dans la partie suivante 3.2 et les résultats sont affichés dans le

diagramme de la figure II.2.

### 3 Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

#### 3.1 Propriétés dynamiques des fluctuations pour un milieu viscoélastique

Dans ce paragraphe, nous allons voir qualitativement comment la nature élastique du fluide peut affecter les fluctuations à son interface.

Au paragraphe 2.3, nous avons montré qu'il est possible de retrouver la relation de dispersion grâce à une analyse énergétique du problème. Dans cette analyse, on évalue les énergies stockée et dissipée par le fluide. Or pour un fluide visqueux, l'énergie peut uniquement être stockée dans l'interface, on a ainsi obtenu la relation :

$$\omega_n \sim \frac{\gamma k}{\eta} \quad (\text{II.7})$$

Pour un milieu viscoélastique, l'énergie élastique peut également être emmagasinée dans le volume lorsque le matériau se déforme. Ceci est possible à condition que le temps de relaxation des perturbations soit plus faible que le temps caractéristique  $\tau_c$  du matériau viscoélastique. Dans le cas où l'énergie est principalement stockée dans le volume, l'analyse énergétique donne la relation :

$$\omega_n \sim \frac{1}{\tau_c} \quad (\text{II.8})$$

Les fréquences propres  $\omega_n$  sont indépendantes du vecteur d'onde  $k$ . La relaxation des perturbations est contrôlée par le temps caractéristique du matériau. Cette analyse montre que la dynamique des fluctuations à l'interface peut être modifiée par l'élasticité du matériau.

Pour connaître exactement les relations de dispersion pour un milieu viscoélastique, il faut déterminer les pôles de la susceptibilité (II.3) où la viscosité n'est plus une constante réelle mais une fonction complexe de la fréquence. La partie imaginaire de la viscosité permet de tenir compte de l'élasticité du matériau. A priori, les pôles de la susceptibilité doivent être recherchés dans le plan complexe des fréquences. Afin de travailler avec des fréquences complexes, il est nécessaire d'utiliser un modèle pour décrire les variations des propriétés viscoélastiques. Or le choix du modèle semble influencer les relations de dispersion trouvées. En résumé, lorsque les propriétés mécaniques dépendent de la fréquence, la détermination des relations de dispersion n'est pas aisée [20], [21]. Ces relations sont pourtant utiles lorsque l'on souhaite identifier les différents modes de surface. Par exemple, dans le cas où l'on excite un fluide à une certaine fréquence et que l'on observe les ondes qui se propagent à sa surface [22]. Dans notre cas, la détermination de ces relations de dispersion n'est pas indispensable. En

effet, il est possible de calculer la fonction d'autocorrélation de hauteur  $P(k, \omega)$  en utilisant la relation donnée par le théorème fluctuation-dissipation, rappelée ci-dessous :

$$P(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi \omega} \text{Im}(\chi(k, \omega)) \quad (\text{II.9})$$

Pour un milieu viscoélastique, la susceptibilité  $\chi(k, \omega)$  dépend de la viscosité complexe  $\eta^*(\omega)$ . On peut relier  $\eta^*(\omega)$  au module viscoélastique complexe  $G^*(\omega) = G'(\omega) + G''(\omega)$  :

$$\eta^*(\omega) = \frac{G^*(\omega)}{i\omega} \quad (\text{II.10})$$

où  $G'(\omega)$  et  $G''(\omega)$  correspondent respectivement au module élastique et au module visqueux du milieu.

En injectant la viscosité complexe, définie à partir du module viscoélastique complexe (II.10), dans l'expression de la susceptibilité (II.3), on obtient :

$$\frac{1}{\chi(k, \omega)} = \gamma k^2 + \frac{G^{*2}(\omega) k^3}{\omega^2 \rho} \left[ 4 \sqrt{1 - \frac{\omega^2 \rho}{k^2 G^*(\omega)}} - \left( 2 - \frac{\omega^2 \rho}{k^2 G^*(\omega)} \right)^2 \right] \quad (\text{II.11})$$

Et on peut calculer le spectre des fluctuations avec la même expression que celle définie au paragraphe 3.3 :

$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{II.12})$$

Finalement, pour un milieu viscoélastique, le spectre des fluctuations dépend de la tension de surface  $\gamma$ , de la masse volumique  $\rho$  et des modules visqueux et élastique,  $G''(\omega)$  et  $G'(\omega)$ . On rappelle que la fonction de pondération  $\Phi(k)$  reste identique quel que soit le milieu considéré. Elle dépend uniquement de la largeur du faisceau utilisé  $R$ , et de la longueur d'onde lumineuse  $\lambda$ .

### 3.2 Les dépendances du spectre mesurés : diagramme $|G^*|$ vs $\omega$

Compte tenu de l'expression compliquée de la susceptibilité (II.11), il est difficile de savoir quels sont les paramètres auxquels le spectre  $S(\omega)$  est réellement sensible. En effet, le spectre  $S(\omega)$ , donné par l'expression (II.12) ne peut pas être calculé analytiquement. Cependant, afin de connaître le rôle des différents paramètres, il est possible d'effectuer son développement asymptotique en fonction de la fréquence  $\omega$  et du module viscoélastique  $|G^*| = \sqrt{G'^2 + G''^2}$ . Les résultats du développement asymptotique, effectué en annexe E, sont réunis sur le diagramme de la figure II.2. On distingue 4 régions, notées A, B, C et D. Chaque région corres-

## II.3 Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

pond à un développement différent, et le résultat se met sous la forme :

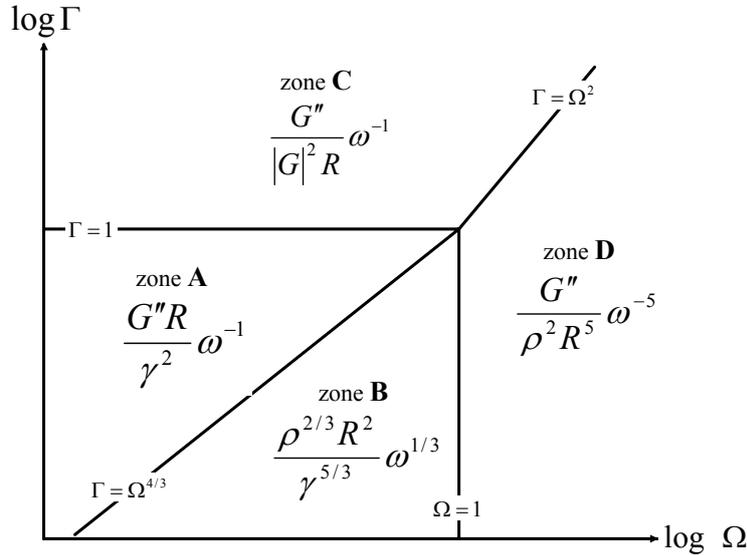
$$S(\omega) = Af(G^*, \gamma, \rho, R) \omega^n \quad (\text{II.13})$$

où  $A$  est une constante fixée par les propriétés du faisceau laser, et  $f$  une fonction des propriétés du milieu et de  $R$  la largeur du faisceau. Sur le diagramme de la figure II.2, l'expression de  $f$  est donnée pour chaque région ainsi que la valeur de l'exposant  $n$ . Notons que  $f$  est une fonction de  $G^*(\omega)$ , et dépend donc aussi de la fréquence  $\omega$ . Afin de pouvoir comparer des milieux de différentes tensions de surface, le diagramme est affiché en fonction des variables de  $\omega$  et  $G^*(\omega)$  normalisées. Ces variables normalisées sont notées  $\Omega$  et  $\Gamma$  :

$$\Omega = \omega \sqrt{\frac{\rho R^3}{\gamma}} \quad (\text{II.14})$$

$$\Gamma = \frac{|G^*| R}{\gamma} \quad (\text{II.15})$$

Les frontières entre les différentes régions du digramme dépendent donc de la tension de surface  $\gamma$ , de la masse volumique  $\rho$  et de largeur  $R$  du faisceau. En pratique, la tension de surface varie relativement peu par rapport aux décades couvertes par  $|G^*|$  suivant les systèmes et par rapport à  $\omega$  dans l'expérience.



**Figure II.2** – Diagramme  $|G^*|$  vs  $\omega$  réunissant les résultats du développement asymptotique du spectre  $S(\omega)$ . Afin de pouvoir comparer sur le même diagramme le comportement de milieux dont les énergies de surface et les densités sont différentes,  $|G^*|$  et  $\omega$  sont normalisées respectivement par les quantités  $\gamma/R$  et  $\sqrt{\gamma/\rho R^3}$ . Les valeurs normalisées sont notées  $\Gamma$  et  $\Omega$ . Chacune des 4 régions, notées A, B, C et D, correspond à un développement différent.

### Discussion sur le diagramme obtenu

Notons que quelle que soit la région du diagramme, l'expression du développement asymptotique dépend de  $R$ . La forme et l'amplitude des spectres mesurés dépendent de la largeur du faisceau. En modifiant la focalisation du faisceau laser, on peut modifier les effets sondés par la technique.

#### Cas d'un liquide newtonien

Pour un liquide purement visqueux, le module viscoélastique  $G^*$  est imaginaire et se relie à la viscosité  $\eta$ , tel que :  $G^* = i\omega\eta$ . Dans le diagramme de la figure II.2, un liquide newtonien correspond donc à une droite de pente 1.

Lorsque la viscosité est suffisamment grande, la droite de pente 1, traverse les régions A et C du diagramme. Les développements dans les régions A et C, pour un liquide newtonien, sont  $\eta R/\gamma^2$  et  $1/\eta R\omega^2$ . On retrouve les expressions (I.86) et (I.86) calculées au paragraphe 3.5. Le spectre des fluctuations possède une forme lorentzienne. Nous avons pu vérifier cette forme sur les spectres de la figure I.14. Aux très hautes fréquences, la droite traverse également la région D, dont le développement est  $\eta/\rho^2 R^5 \omega^4$ . Dans cette région, le spectre devient sensible aux effets inertiels. La pente du spectre devient plus importante que pour une lorentzienne, comme observé pour l'huile de viscosité  $\eta = 20 \text{ mPa.s}$  sur la figure I.14. Notons que la frontière séparant les régions C et D, définie par  $\Gamma = \Omega^2$ , correspond à  $St = 1$  pour  $k = 1/R$ .

Lorsque la viscosité est faible, la droite associée dans le diagramme traverse les régions B et D. Dans ces deux régions, le spectre est sensible aux effets de l'inertie. Aux basses fréquences,  $S(\omega)$  n'est plus constant mais croît comme  $\omega^{1/3}$ . Aux hautes fréquences,  $S(\omega)$  décroît comme  $\omega^{-4}$ . Ces deux variations peuvent être observées pour l'huile de viscosité  $\eta = 5 \text{ mPa.s}$  sur la figure II.1. Dans la région B, le spectre ne dépend pas de la viscosité. Les fluctuations mesurées sont dans le régime propagatif. La relation de dispersion associée à ces ondes capillaires (II.6) est effectivement indépendante de la viscosité. Remarque : dans la région D, le spectre est fortement sensible à la largeur  $R$ ,  $S(\omega) \sim R^{-5}$ . Si l'on connaît correctement la viscosité et la masse volumique du milieu, on peut utiliser le spectre mesuré pour déterminer précisément la largeur du faisceau.

#### Cas d'un milieu viscoélastique

Pour un milieu viscoélastique, le module viscoélastique a une partie réelle non nulle. Afin de connaître les régions du diagramme traversées, permettant de trouver les paramètres qui contrôlent l'amplitude et la forme du spectre, il est nécessaire de spécifier les variations des

modules  $G'$  et  $G''$  avec la fréquence.

Lorsque le module élastique est suffisamment grand pour que  $G' \gg G''$  et  $|G^*| \approx G' > \gamma/R$ , l'énergie thermique n'est plus stockée à la surface mais dans le volume. C'est pourquoi, dans ces conditions, le développement de la région C ne dépend pas de la tension de surface mais des deux modules viscoélastiques  $G'$  et  $G''$ . Dans ce cas, les ondes mesurées sont des ondes de Rayleigh. Dans les autres cas, au premier ordre, le spectre ne dépend pas du module élastique, mais uniquement du module visqueux  $G''$ .

### 3.3 Cas d'un solide viscoélastique : PDMS réticulé

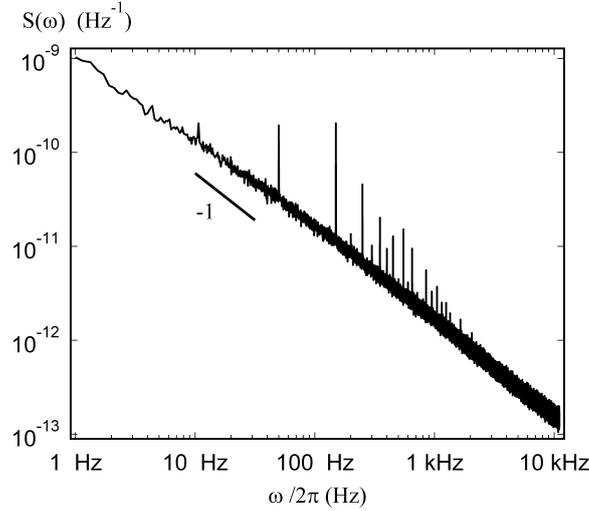
Dans ce paragraphe, on s'intéresse aux fluctuations de surface d'un élastomère : le PDMS réticulé. On utilise le montage présenté au chapitre I pour mesurer les fluctuations de ce matériau dans une gamme de fréquence où le module élastique atteint  $10^6$  Pa. L'utilisation du diagramme présenté au paragraphe 3.2, nous informe que les fluctuations sondées sont sensibles aux propriétés viscoélastiques du matériau. Cette sensibilité nous encourage à analyser le spectre afin de savoir s'il est possible d'en extraire précisément les propriétés viscoélastiques.

#### 3.3.1 Spectre mesuré

Le solide viscoélastique étudié est un Poly(DiMethylSiloxane) (PDMS) réticulé. Le PDMS est réticulé par du Sylgard 184 (Dow Corning). Le mélange PDMS/réticulant à 5% en masse est réticulé à  $70^\circ\text{C}$  pendant 48h dans un moule en aluminium. On découpe un cube de 1 cm de large dans le matériau obtenu et on mesure les fluctuations sur trois différentes surfaces. Les deux surfaces qui ont été en contact respectivement avec l'air et le moule pendant la réticulation, et la surface obtenue en coupant l'échantillon à mi-hauteur. Les spectres mesurés sur ces trois surfaces sont identiques. Ceci nous indique que les propriétés du PDMS réticulé sont les mêmes à sa surface et dans le volume pour la profondeur sondée<sup>1</sup>. On affiche l'un des spectres mesurés sur la figure II.3, on remarque que sa forme est complètement différente de celle observée pour un liquide visqueux. Quelle que soit la fréquence considérée, le spectre semble varier en  $S(\omega) \sim \omega^{-1}$ . Les pics sur le spectre ne sont pas dus aux fluctuations de surface mais correspondent aux radiations électromagnétiques. Ces pics apparaissent à la fréquence de 50 Hz et ses harmoniques. Le spectre des fluctuations est uniquement affiché pour les fréquences comprises entre 1 Hz et 10 kHz. Aux fréquences inférieures à 1 Hz, malgré le soin qui a été pris pour isoler le montage optique, le bruit mécanique perturbe le signal mesuré. Aux fréquences supérieures à 10 kHz, les fluctuations du signal temporel  $\delta V$  sont trop faibles pour être détectées.

---

1. Comme nous le verrons plus tard, le matériau est sondé sur une profondeur fixée par la largeur  $R$  du faisceau laser. Dans notre cas, on a  $R = 28 \mu\text{m}$ .



**Figure II.3** – Spectre des fluctuations mesurées à la surface libre du PDMS réticulé : un solide viscoélastique.

### 3.3.2 Propriétés viscoélastiques linéaires mesurées par rhéologie mécanique

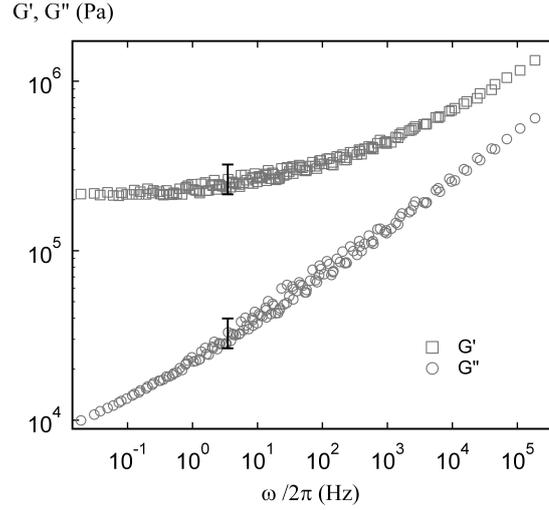
Pour savoir dans quelle région du diagramme se situent les fluctuations mesurées dans le spectre de la figure II.3, on détermine les propriétés mécaniques du PDMS réticulé par rhéologie mécanique. Cette mesure a été réalisée grâce à un rhéomètre (Paar LCR 501) utilisant la géométrie plan/plan. La mesure s'effectue sur un échantillon cylindrique de 8 mm de diamètre et de 1.8 mm d'épaisseur collé aux plans du rhéomètre avec de la glue cyanoacrylate (Loctite 406). On applique à l'échantillon une déformation sinusoïdale  $\gamma^*$ , d'amplitude  $\gamma_0$  et de pulsation  $\omega$ . On choisit une faible amplitude de déformation ( $\gamma_0 = 0.1\%$ ) afin de solliciter le matériau dans sa zone de comportement linéaire. La contrainte mesurée  $\sigma^*$  est alors proportionnelle à la déformation appliquée :

$$\sigma^* = G^* \gamma^* \quad (\text{II.16})$$

Le rhéomètre permet ainsi de déterminer le module viscoélastique complexe dans le domaine linéaire pour des fréquences comprises entre 0.01 Hz et 50 Hz et à une température fixée. Or, pour un polymère amorphe, l'effet de la fréquence de sollicitation sur les modules viscoélastiques est inverse à celui de la température. Les effets de la fréquence et de la température sont dépendants, il s'agit du principe d'équivalence temps-température. Ce principe vient de l'observation que les fréquences de relaxation caractéristiques du matériau sont thermiquement activées et augmentent toutes de la même façon avec la température [23, 24]. En mesurant les courbes  $G'$  vs  $\omega$  et  $G''$  vs  $\omega$ , à plusieurs températures  $T$ , ce principe permet de superposer les différentes courbes par une translation horizontale sur une courbe maîtresse (à une température de référence  $T_0$ ). Cette superposition permet d'étendre artificiellement la gamme de

## II.3 Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

fréquences du rhéomètre. En pratique, on effectue des mesures tous les 3°C entre -60°C et 25°C et on choisit comme température de référence  $T_0=25^\circ\text{C}$ . La courbe maîtresse obtenue est représentée sur la figure II.4. L'utilisation du principe d'équivalence temps-température permet de connaître les modules viscoélastiques à 25°C entre 0.01 Hz et 200 kHz.



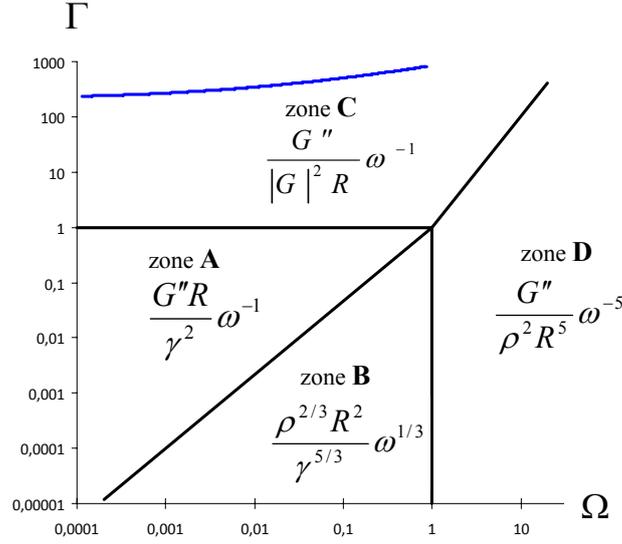
**Figure II.4** – Variation du module élastique  $G'$  et du module visqueux  $G''$  avec la fréquence du PDMS réticulé, à la température de référence  $T_0=25^\circ\text{C}$ . Par souci de clarté, on affiche la barre d'erreur à une seule fréquence. Elle correspond à une incertitude de  $\pm 20\%$ . Les modules augmentent faiblement avec la fréquence et le module élastique est toujours supérieur au module visqueux. Aux très basses fréquences, le module élastique converge vers le plateau  $G_0 = 1,9 \cdot 10^5$  Pa.

### 3.3.3 Sensibilité du spectre

Les variations des modules  $G'$  et  $G''$  avec la fréquence, obtenues grâce aux mesures de rhéologie macroscopique (figure II.4), permettent de tracer la courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  du PDMS réticulé dans le diagramme indiquant le développement asymptotique du spectre de fluctuation  $S(\omega)$ . On rappelle que les frontières de ce diagramme dépendent des valeurs de la tension de surface  $\gamma$ , de la masse volumique  $\rho$  et de la largeur  $R$  du faisceau. Pour placer ces frontières, on prend les valeurs du PDMS non réticulé (liquide)  $\rho = 965 \text{ kg/m}^3$  et  $\gamma = 20 \text{ mN/m}$ . Et on prend  $R = 28 \text{ }\mu\text{m}$ , correspondant à la largeur du faisceau utilisé pour obtenir le spectre de fluctuations (figure II.3). Pour ces valeurs, la courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  du PDMS réticulé traverse uniquement la région C (figure II.5). Notons que la courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  se situe à plusieurs décades des frontières avec les régions voisines. Donc, même si la valeur de la tension de surface (fixée à celle du PDMS liquide) est discutable, la courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  est largement dans la zone C. Le spectre de fluctuations de la figure II.3, au premier ordre, est donc de la forme :

$$S(\omega) \sim \frac{G''}{|G^*|^2 R \omega} \quad (\text{II.17})$$

Nous avons vu précédemment que les modules  $G'$  et  $G''$  varient relativement faiblement avec la fréquence (figure II.4), le spectre est donc grossièrement inversement proportionnel à la fréquence,  $S(\omega) \sim \omega^{-1}$ , ce que l'on peut vérifier d'après la figure II.3.



**Figure II.5** – Courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  associée au PDMS réticulé dans le diagramme indiquant le développement asymptotique du spectre  $S(\omega)$ . Les valeurs des modules viscoélastiques, utilisées pour tracer la courbe, sont celles mesurées au rhéomètre (Figure II.4). Les frontières du diagramme ont été placées en prenant  $R = 28 \mu m$ ,  $\gamma = 20 mN/m$  et  $\rho = 965 kg/m^3$ .

**Remarque sur l'effet de la taille du faisceau :**

Dans nos conditions expérimentales, nous avons vu que les fluctuations du signal, au-delà de 10 kHz, sont trop faibles pour être détectées (figure II.3). Or d'après (II.17), l'amplitude du spectre  $S(\omega)$  est inversement proportionnelle à la largeur  $R$  du faisceau utilisé. En diminuant la largeur du faisceau, il est donc possible d'augmenter suffisamment l'amplitude du spectre pour mesurer les fluctuations aux fréquences supérieures à 10 kHz. Notons que la variation du spectre avec la largeur du faisceau en  $S(\omega) \sim R^{-1}$ , n'est pas toujours valable pour le PDMS réticulé. En effet, lorsque  $R$  devient trop faible, la courbe associée au matériau passe sous la frontière  $\Gamma = 1$  du diagramme. Or, lorsque  $\Gamma < 1$ , on obtient la relation  $S(\omega) \sim R$ . Il existe donc une largeur de faisceau optimal,  $R_{\text{optim}} \approx \gamma/|G^*|$ , avec laquelle l'amplitude du spectre serait la plus grande. Pour le PDMS réticulé étudié,  $|G^*| \approx G' = 1,9.10^5 Pa$ , on obtient  $R_{\text{optim}} \approx 0.1 \mu m$ . En pratique, il est impossible d'atteindre cette largeur de faisceau.

Compte tenu du développement (II.17), au premier ordre, l'amplitude du spectre ne dé-

pend pas de la tension de surface mais dépend des modules  $G'$  et  $G''$ . Dans le paragraphe suivant, nous allons voir comment extraire les variations de ces modules avec la fréquence, à partir du spectre de fluctuations  $S(\omega)$ . Les variations obtenues pourront être comparées à celles mesurées avec le rhéomètre.

### 3.3.4 Ajustement du spectre mesuré

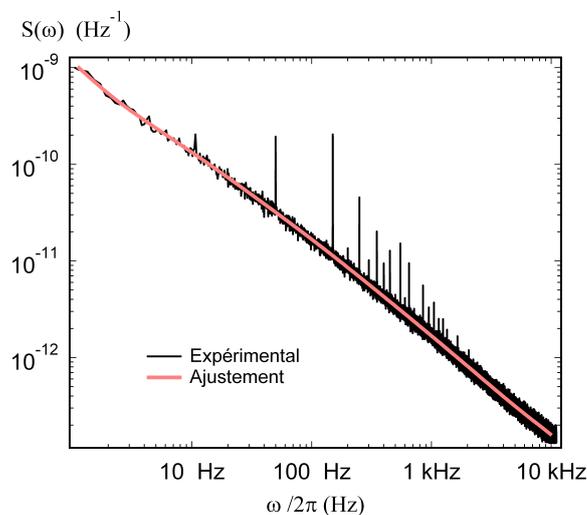
Afin d'extraire les modules viscoélastiques à partir du spectre  $S(\omega)$ , nous avons développé une procédure d'ajustement qui utilise l'expression théorique du spectre (II.12). La détermination de la partie réelle et imaginaire du module  $G^*$  à partir d'un seul spectre de fluctuations, repose sur le fait que les deux modules ne sont pas des fonctions indépendantes mais obéissent aux relations de Kramers-Kroning [25]. Dans notre cas, les relations de Kramers-Kroning, liant les fonctions  $G'(\omega)$  et  $G''(\omega)$ , sont utilisées de manière implicite en décrivant le module  $G^*$  avec un modèle rhéologique qui satisfait les relations. Ainsi, dans la procédure d'ajustement, nous décrivons les variations de  $G^*$  avec la fréquence grâce à une distribution discrète de temps de relaxation :

$$G^*(\omega) = G_0 + \sum_{k=1}^N \frac{H_k i\omega\tau_k}{1 + i\omega\tau_k} \quad (\text{II.18})$$

où les  $H_k$  sont les  $N$  paramètres à ajuster et correspondent aux amplitudes attribuées respectivement aux  $N$  temps de relaxation  $\tau_k$ , fixés de telle sorte qu'ils englobent toute la gamme des échelles de temps du spectre expérimental. Ils sont choisis tels que :

$$\tau_k = \tau_1 p^{k-1} \quad (\text{II.19})$$

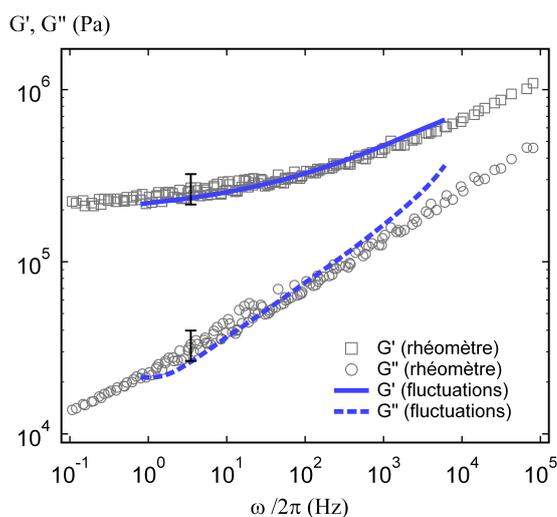
où  $p$  est un nombre positif et  $\tau_1$  correspond au premier temps de relaxation. L'équation II.19 distribue les temps  $\tau_k$  de façon logarithmique. En pratique, on prend  $p = 3$ ,  $\tau_1 = 0.5 \mu\text{s}$  et  $N = 14$ . L'équation (II.18) est adaptée pour décrire les propriétés mécaniques d'un solide viscoélastique, pour lequel la partie réelle de  $G^*$  est non nulle à fréquence nulle. Ainsi, le spectre de fluctuations de la figure II.3 est ajusté avec l'expression (II.12), calculée numériquement, où  $G^*$  est décrit par (II.18). Les temps de relaxation  $\tau_k$  sont fixés et les paramètres ajustables  $H_k$  sont déterminés par une méthode des moindres carrés. La valeur du module élastique à fréquence nulle  $G_0$  est nécessaire pour effectuer l'ajustement. Pour le PDMS réticulé, d'après la mesure de rhéologie macroscopique, on fixe  $G_0 = 1,9 \cdot 10^5 \text{ Pa}$ . L'ajustement obtenu est représenté sur la figure II.6. Il recouvre avec précision le spectre expérimental sur toute la gamme des fréquences.



**Figure II.6** – Ajustement du spectre expérimental des fluctuations du PDMS réticulé. L'ajustement est obtenu en utilisant l'expression théorique (II.12) où les variations du module viscoélastique sont décrites par l'équation (II.18). Les parties réelle et imaginaire du module viscoélastique permettant d'obtenir cet ajustement sont affichées sur la figure II.7.

### 3.3.5 Propriétés viscoélastiques linéaires déduites de l'ajustement

On peut ensuite calculer la partie réelle et la partie imaginaire du module complexe trouvé par la procédure d'ajustement. Les valeurs obtenues sont affichées avec les valeurs mesurées au rhéomètre (Figure 24). Compte tenu de l'incertitude des mesures obtenues avec le rhéomètre, il existe un bon accord entre les deux séries de valeurs. Notons que les valeurs des modules  $G'$



**Figure II.7** – Variations des modules  $G'$  et  $G''$  du PDMS réticulé, obtenues grâce à l'ajustement du spectre de fluctuations (trait bleu continu et discontinu), et obtenues par les mesures au rhéomètre en appliquant le principe d'équivalence temps-température (carrés et cercles).

et  $G''$ , obtenues grâce à cette procédure d'ajustement, ne dépendent quasiment pas des valeurs auxquelles on fixe la tension de surface et la masse volumique du matériau. Effectivement, au premier ordre, le spectre est indépendant de ces deux paramètres (II.17). La connaissance de ces grandeurs n'est donc pas cruciale pour extraire précisément les modules viscoélastiques du spectre des fluctuations. Notons également que le choix du modèle pour décrire  $G^*(\omega)$ , utilisé dans la procédure d'ajustement, n'est pas déterminant. N'importe quel modèle, pourvu qu'il vérifie les relations de Kramers-Kronig, donne le même résultat. Par ailleurs, nous avons vérifié que les résultats ne dépendent pas du choix de la base des temps de relaxation  $\tau_k$ .

### 3.3.6 Conclusion

En conclusion, nous avons montré que le montage optique détaillé au chapitre 1, permet de mesurer les fluctuations d'un solide mou sur un large spectre (1 Hz - 10 kHz). Pour de tels matériaux, la technique n'est plus sensible aux ondes capillaires mais à des ondes viscoélastiques. Autrement dit, le spectre mesuré ne dépend plus de la tension de surface mais des propriétés viscoélastiques du milieu sondé. Ces propriétés viscoélastiques ont été déterminées sur une large bande de fréquences 0.01 Hz - 200 kHz en utilisant un rhéomètre et en appliquant le principe d'équivalence temps-température. En connaissant le module élastique à fréquence nulle, nous avons montré qu'il est possible d'extraire les modules viscoélastiques grâce à un ajustement du spectre de fluctuations. Les modules  $G'(\omega)$  et  $G''(\omega)$ , déduits de cet ajustement, sont en bon accord avec ceux obtenus avec le rhéomètre. Ces résultats montrent que la technique constitue une nouvelle méthode pour caractériser les propriétés viscoélastiques. De plus, la mesure des fluctuations est non invasive, la méthode possède donc un intérêt particulier pour les fluides complexes qui ne peuvent pas être entièrement caractérisés par un rhéomètre classique. Dans la partie suivante, nous allons voir que cette procédure peut s'appliquer dans le cas de fluides complexes.

## 3.4 Cas de fluides complexes

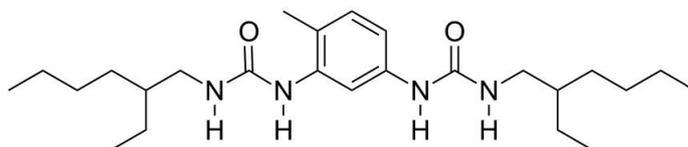
Notre technique optique, en plus d'être non invasive, caractérise les modules viscoélastiques sur un large spectre sans déformation imposée. Elle est donc particulièrement adaptée dans le cas de fluides complexes, qui ne peuvent pas être entièrement caractérisés par un rhéomètre classique. En effet, en raison des multiples échelles de leur structure, les temps caractéristiques des fluides complexes peuvent s'étendre sur plusieurs décades, avec des temps aussi faibles que la milliseconde [26]. Or, à cause des effets de l'inertie, les rhéomètres conventionnels sont limités aux fréquences inférieures à 10 Hz - 100 Hz. De plus, pour obtenir une caractérisation fiable, la contrainte à appliquer doit être très faible car les fluides complexes peuvent développer des écoulements hétérogènes.

Parmi les techniques non conventionnelles déjà développées pour étudier les fluides complexes, on peut citer celle de micro-rhéologie, qui fût l'objet de nombreux travaux ces dernières années [3, 27, 28]. Cette technique consiste à suivre une sonde colloïdale qui diffuse librement dans le milieu ou que l'on contrôle en utilisant une pince optique. Le mouvement de la sonde peut être reliée aux propriétés mécaniques du milieu et les propriétés viscoélastiques linéaires peuvent ainsi être obtenues sur une gamme étendue de fréquence. Par conséquent, le milieu doit être à la fois liquide et transparent. De plus, lorsque la taille de la sonde est comparable ou inférieure aux tailles caractéristiques du milieu, la sonde peut localement perturber son environnement [29, 30].

Dans ce paragraphe, on répète la procédure d'ajustement, consistant à extraire les modules viscoélastiques à partir du spectre de fluctuations, pour des fluides complexes : deux solutions de polymères supramoléculaires. Pour chaque solution, on compare les propriétés déduites du spectre à des mesures effectuées au rhéomètre. Les deux solutions possèdent des rhéologies comparables mais une différence de viscoélasticité de surface est attendue entre les deux solutions. Pour la première solution, les molécules ne s'adsorbent pas à l'interface, aucun effet de viscoélasticité de surface n'est attendu. Pour la deuxième solution, il existe un échange de molécules entre l'interface et le volume, on peut alors espérer observer un écart entre les propriétés déduites du spectre des fluctuations de celles obtenues grâce au rhéomètre.

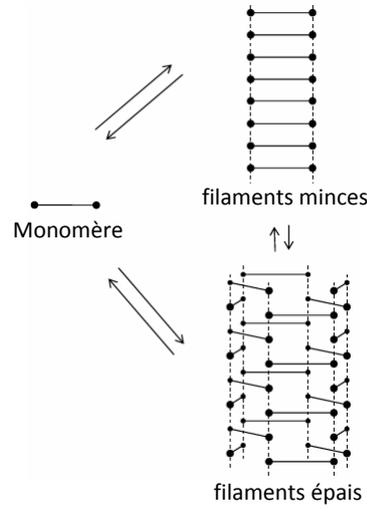
### 3.4.1 Solution d'EHUT

Le premier polymère supramoléculaire considéré est à base d'une bis-urée : l'EHUT (figure II.8). En solution, ces monomères s'associent par liaison hydrogène pour former des édifices [31]. Selon les conditions (solvant, concentration, température), les monomères peuvent s'associer en deux structures différentes : la forme fine (en filament) avec un seul monomère dans la section transversale et la forme épaisse (en tube), plus rigide, avec trois monomères dans la section transversale (figure II.9). La rhéologie de ce système a été étudiée récemment



**Figure II.8** – Structure chimique du monomère EHUT (EthylHexylUreidoToluene).

[32–34]. Aux basses fréquences, le comportement rhéologique des ces solutions est comparable à celui des micelles géantes [35], qui sont des polymères supramoléculaires formés par des molécules tensioactives. Bien que la nature des interactions soit différente dans les deux systèmes, les chaînes formées peuvent se *couper* et se *recombinaer* entre elles. Lorsque le temps caractéristique  $\tau_{\text{vie}}$ , associé à ce processus, est beaucoup plus faible que le temps de reptation



**Figure II.9** – Schéma de l’association supramoléculaire des monomères EHUT. Les liaisons hydrogènes, connectant les fonctions urées, sont représentées en pointillés.

$\tau_{\text{rep}}$  des chaînes, la relaxation de la contrainte est caractérisée par un seul temps  $\tau$ . Ce temps est donné par la moyenne géométrique du temps de vie et du temps de reptation des chaînes [36] :

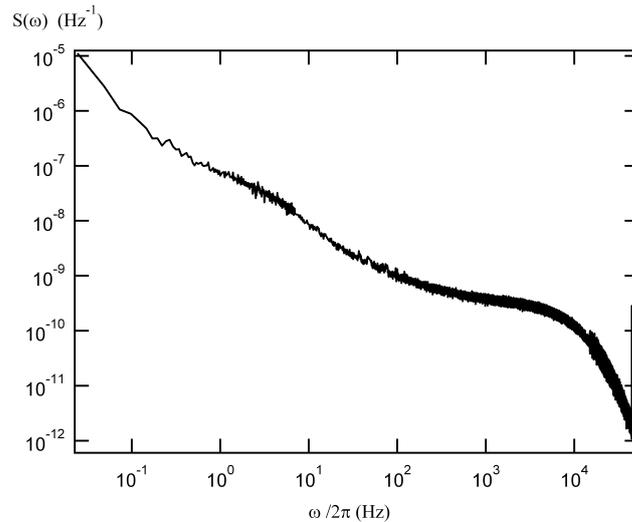
$$\tau \cong \sqrt{\tau_{\text{vie}}\tau_{\text{rep}}}$$

Ainsi, ces solutions de polymères supramoléculaires présentent un comportement de Maxwell dans les basses fréquences, généralement inférieures à 10 Hz.

Aux plus grandes fréquences, le comportement rhéologique des solutions EHUT n’ont jamais été caractérisés à ce jour. Comme pour les solutions de polymères et de micelles géantes, les relaxations sont censées résulter de processus intrachânes. Les chaînes de micelles possèdent une grande longueur de persistance et se comportent comme des polymères semi-flexibles à haute fréquence [37]. A ces échelles de temps, les relaxations dépendent de modes Rouse-Zimm, et des modes de flexion des segments de Kuhn aux fréquences encore plus élevées. La transition entre ces deux régimes correspond à un changement de l’exposant de la loi de puissance décrivant la variation du module visqueux avec la fréquence :  $G'' \propto \omega^{5/9}$  dans le régime de Rouse-Zimm, alors que  $G'' \propto \omega^{3/4}$  dans le régime dominé par la relaxation des segments de Kuhn [37], [38]. Or, la longueur de persistance des chaînes EHUT est au moins aussi grande que celle des micelles géantes, un comportement semi-flexible similaire aux solutions de polymères peut donc être attendu pour les solutions supramoléculaires d’EHUT.

La solution sur laquelle on effectue les mesures a été synthétisée dans l’équipe de L. Bouteiller (UPMC) et est obtenue en mélangeant l’EHUT au dodécane à une concentration de 12 g/L. A la température de 25°C, les solutions sont très viscoélastiques, mais leur viscosité

peut être réduite en augmentant la température jusqu'à 60°C. Lorsque la température est abaissée à 25°C, les échantillons retrouvent leur viscosité initiale en moins de 30 minutes. On verse la solution dans une cellule pour mesurer les fluctuations de sa surface libre, la mesure est effectuée à 25°C. Le spectre  $S(\omega)$  est représenté sur la figure II.10. La gamme des fréquences du spectre s'étend sur plus de 6 décades (de  $3 \times 10^{-2}$  Hz jusqu'à  $5 \times 10^4$  Hz).



**Figure II.10** – Spectre des fluctuations de surface de la solution supramoléculaire d'EHUT. Le spectre a été mesuré avec le même montage optique que celui utilisé pour le solide viscoélastique. La largeur de faisceau est égale à  $R = 28 \mu\text{m}$ .

Afin de savoir à quels paramètres le spectre mesuré est sensible, on souhaite tracer la courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  pour la solution d'EHUT dans le diagramme de la figure II.2, indiquant le développement asymptotique du spectre. Pour cela, il faut connaître les modules viscoélastiques linéaires de la solution.

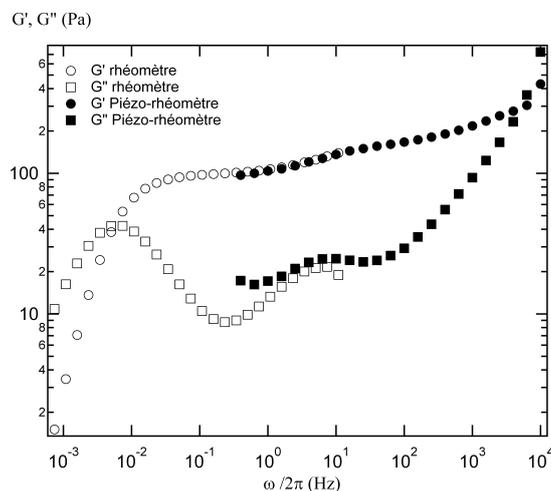
### Propriétés viscoélastiques de la solution d'EHUT : rhéologie mécanique

Aux basses fréquences, les modules ont été mesurés avec le rhéomètre à contrainte imposée (Haake RS600), équipé de la géométrie cône-plan. Pendant la mesure, les contraintes imposées sont suffisamment faibles pour garantir la linéarité. Avec cette mesure, les modules viscoélastiques de la solution sont déterminés à 25°C entre  $10^{-3}$  Hz et 10 Hz (figure II.11).

Aux hautes fréquences, les modules ont été mesurés par J.F. Paliarne (ENS Lyon) en utilisant le piézo-rhéomètre qu'il a développé. Avec cet appareil, l'échantillon est contenu entre deux plaques de verre parallèles, montées sur des céramiques piézo-électriques. L'élément piézo-électrique fait osciller l'une des plaques et permet de comprimer périodiquement l'échantillon. La contrainte induite, transmise à la seconde plaque, est mesurée par l'autre élément piézoélectrique. Ce dispositif permet de déterminer les modules viscoélastiques en ap-

## II.3 Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

pliquant des amplitudes de déformations inférieures à  $10^{-4}$  [39]. Les modules viscoélastiques de la solution sont déterminés à  $25^\circ\text{C}$  entre 0.4 Hz et  $10^4$  Hz (figure II.11).



**Figure II.11** – Modules viscoélastiques linéaires de la solution supramoléculaire d'EHUT, mesurés avec un rhéomètre classique (symboles vides) et mesurés avec un piézo-rhéomètre (symboles pleins).

A partir des modules  $G'$  et  $G''$  mesurés avec le rhéomètre et le piézo-rhéomètre (figure II.11), on trace la courbe  $|G^*|$  vs  $\omega$  dans le diagramme indiquant le développement asymptotique du spectre (figure II.12). Pour placer les frontières du diagramme, il est nécessaire de connaître la tension de surface de la solution. On obtient sa valeur en effectuant une mesure de goutte pendante, on obtient  $\gamma = 25 \pm 1$  mN/m. On remarque que la tension de surface mesurée est identique à celle du solvant, le dodécane  $\gamma = 24.8$  mN/m. Les molécules d'EHUT ne s'adsorbent pas de manière significative à l'interface avec l'air. D'après le diagramme de la figure II.12, le spectre des fluctuations possède différents développements selon la fréquence considérée. Aux basses fréquences, le spectre est de la forme :

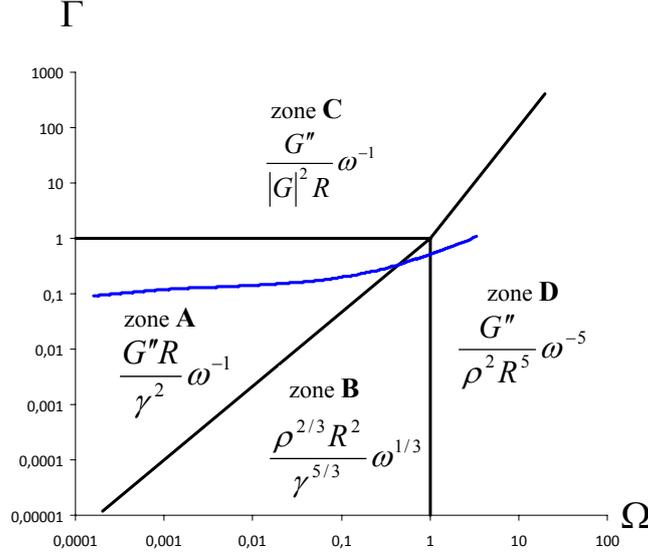
$$S(\omega) \sim \frac{G''(\omega)R}{\gamma} \omega^{-1} \quad (\text{II.20})$$

Dans ce régime, le spectre est sensible aux ondes capillaires. Aux hautes fréquences, le spectre est de la forme :

$$S(\omega) \sim \frac{G'''(\omega)}{\rho R^5} \omega^{-5} \quad (\text{II.21})$$

Dans ce régime, les fluctuations sont sensibles aux effets inertiels. En observant la forme du spectre mesuré sur la figure II.10, on distingue ces deux régimes. Au premier ordre, le spectre des fluctuations n'est pas sensible au module élastique  $G'$ . Sa dépendance apparaît seulement dans les termes d'ordre supérieur. Contrairement au cas du solide viscoélastique,

le spectre dépend de la tension de surface (aux basses fréquences) et de la masse volumique (aux hautes fréquences). Afin de déterminer correctement les modules viscoélastiques à partir du spectre, il est important de fixer précisément ces deux paramètres dans la procédure d'ajustement.



**Figure II.12** – Diagramme  $|G^*|$  vs  $\omega$  pour la solution supramoléculaire d'EHUT tracés avec les valeurs des modules viscoélastiques de la figure II.11. Les frontières du diagramme sont placées en prenant  $\gamma=24.8$  mN/m,  $\rho=746$  kg/m<sup>3</sup>, et  $R=28$   $\mu$ m.

### Ajustement du spectre

Pour déterminer le module viscoélastique complexe de la solution d'EHUT à partir de son spectre de fluctuations, nous utilisons la même procédure d'ajustement que celle utilisée pour le PDMS réticulé. La solution d'EHUT est un liquide, le module élastique à fréquence nulle est donc nul. On décrit le module viscoélastique complexe d'après l'équation (II.18) où  $G_0 = 0$ , soit :

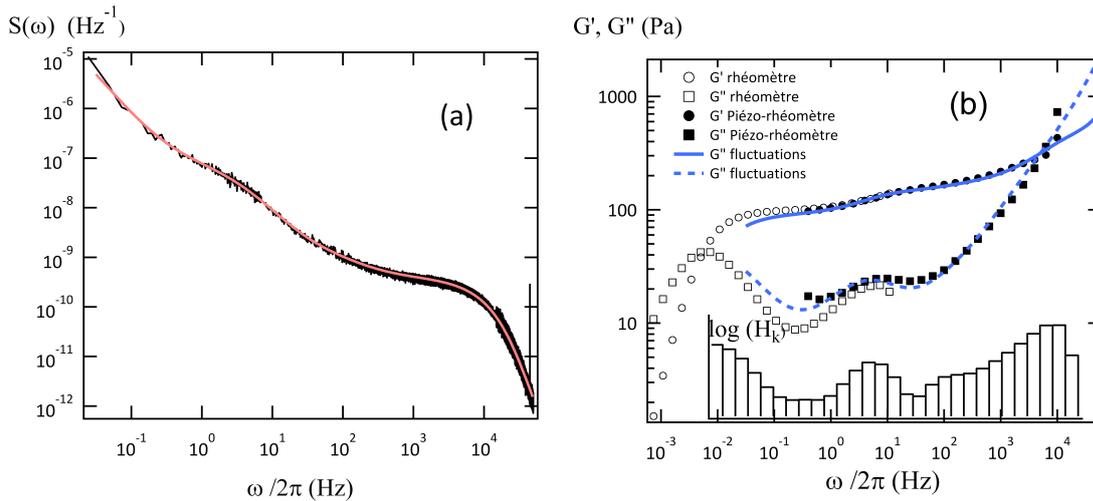
$$G^*(\omega) = \sum_{k=1}^N \frac{H_k i\omega\tau_k}{1 + i\omega\tau_k} \quad (\text{II.22})$$

Contrairement au cas du PDMS réticulé, la description de  $G^*(\omega)$  dans la procédure d'ajustement, ne nécessite pas d'avoir mesuré au préalable les propriétés mécaniques du milieu à fréquence nulle. Le module viscoélastique complexe peut donc entièrement être déterminé à partir du spectre de fluctuations, à condition de connaître précisément la tension de surface.

En pratique, on utilise 29 temps de relaxation, fixés tels que  $\tau_1 = 0.05$   $\mu$ s et  $p = 3$ . Dans

## II.3 Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

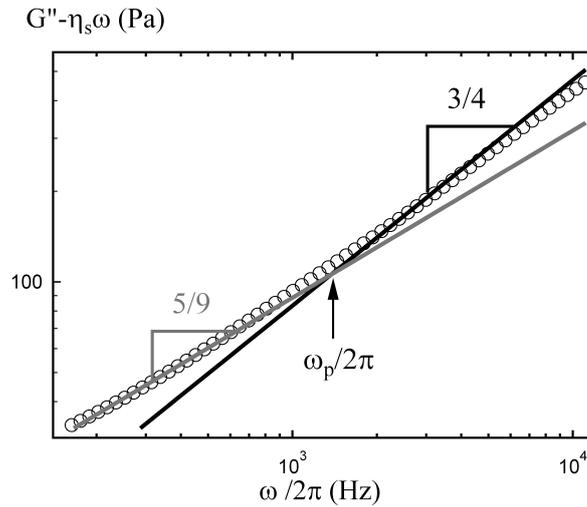
la procédure d'ajustement, les valeurs de la tension de surface et de la masse volumique sont fixées à celles du solvant, le dodécane  $\gamma = 24.8 \text{ mN/m}$  et  $\rho = 746 \text{ kg/m}^3$ . L'ajustement du spectre obtenu est représenté sur la figure II.13-a. Les modules élastique et visqueux qui résultent de cet ajustement sont affichés sur la figure II.13-b avec les mesures rhéométriques. On rappelle que les mesures dites rhéométriques ont été effectuées avec un rhéomètre classique entre  $10^{-3} \text{ Hz}$  et  $10 \text{ Hz}$  et avec un piézo-rhéomètre entre  $0.4 \text{ Hz}$  et  $10^4 \text{ Hz}$ . Aux hautes fréquences, les valeurs déduites de l'ajustement sont en très bon accord avec les mesures rhéométriques, la différence relative est inférieure à 12%. Aux basses fréquences, l'accord avec les mesures rhéométriques est satisfaisant. Bien qu'il existe une différence relative atteignant 25% pour  $G''$ , cette valeur se situe dans l'incertitude des mesures rhéométriques. Sur la figure II.13-b, on affiche également les valeurs des paramètres  $H_k$  vers lesquels converge la procédure d'ajustement. Ces valeurs représentent le poids attribué à chacun des temps de relaxation  $\tau_k$  du modèle de Maxwell généralisé (II.22).



**Figure II.13** – (a) : Ajustement du spectre des fluctuations pour la solution d'EHUT. (b) : Modules viscoélastiques de la solution d'EHUT, déduits de l'ajustement du spectre des fluctuations (traits bleus), mesurés avec un rhéomètre (symboles vides), et mesurés avec un piézo-rhéomètre (symboles pleins).

Aux basses fréquences, les modules viscoélastiques correspondent à un comportement de Maxwell, le temps de relaxation associé est proche de  $\tau = 150 \text{ s}$ . Ce temps caractéristique correspond au processus de *coupage/recombinaison* des structures tubulaires formées par les molécules d'EHUT. Aux plus hautes fréquences, on distingue un second minimum de  $G''$  proche de  $\tau = 0.2 \text{ s}$ . Ce second temps caractéristique a déjà été observé dans des mesures réalisées à haute fréquence par Shikata *et al.* [34]. Cela peut être dû à des défauts dans la structure tubulaire principale composée de structures plus dynamiques tels que des filaments des brins simples (figure II.9). Aux fréquences supérieures à  $10^2 \text{ Hz}$ , la relaxation du matériau dépend des processus intrachânes, comparables à ceux présents dans les polymères semi-flexibles et les micelles géantes. En conséquence, les modules viscoélastiques suivent des

lois de puissance similaires dans ces différents systèmes. La figure II.14 montre les variations du module visqueux sans la contribution du solvant  $G'' - \eta_s \omega$  dans la gamme  $10^2$  Hz -  $10^4$  Hz. Une loi de puissance avec un exposant  $5/9$  décrit correctement les variations de  $G'' \eta_s \omega$



**Figure II.14** – Variation du module visqueux à hautes fréquences déduit du spectre des fluctuations sans la contribution du solvant,  $G'' \eta_s \omega$  (cercles vides). Entre 100 Hz et 1.3 kHz,  $G'' \eta_s \omega$  croît selon une loi de puissance avec un exposant  $5/9$  (ligne grise), alors qu'aux fréquences supérieures à 1.3 kHz, une loi de puissance avec un exposant  $3/4$  (ligne noire) décrit mieux les variations. La fréquence délimitant ces deux régimes est  $\omega_p/2\pi=1.3$  kHz.

entre 100 Hz et 1.3 kHz. Au-delà de cette valeur, les variations de  $G'' \eta_s \omega$  sont mieux décrites avec un exposant  $3/4$ . De tels comportements aux hautes fréquences sont similaires à ceux observés pour les solutions de micelles géantes. Ceci s'interprète comme la transition entre le régime où la relaxation est dominée par les modes de Rouse-Zimm et celui où la relaxation est dominée par les modes de flexion des segments de Kuhn [37]. La fréquence  $\omega_p$  à laquelle est censée apparaître cette transition dépend de la longueur de persistance des chaînes  $l_p$  tel que  $\omega_p \approx k_B T / 8 \eta_s l_p^3$ . Pour la solution d'EHUT, où  $\omega_p / 2\pi = 1.3$  kHz, la longueur de persistance correspondante est  $l_p = 36$  nm. Cette valeur est comparable à celle donnée dans la littérature (d'environ 100 nm)[35].

## Conclusion

Nous avons montré que les propriétés rhéologiques linéaires d'une solution de polymère supramoléculaire peuvent être caractérisées sur une très large gamme de fréquences à partir de son spectre de fluctuations. Les modules visqueux et élastiques déduits du spectre de fluctuations ont été comparés à ceux obtenus grâce à des mesures rhéométriques où un échantillon macroscopique de la solution est sollicité. Aucune différence significative n'est

observable entre les différentes mesures. Contrairement au cas du solide viscoélastique, le spectre des fluctuations est sensible aux ondes capillaires. Afin de déterminer les modules à partir du spectre, il est donc nécessaire de connaître précisément la tension de surface de la solution.

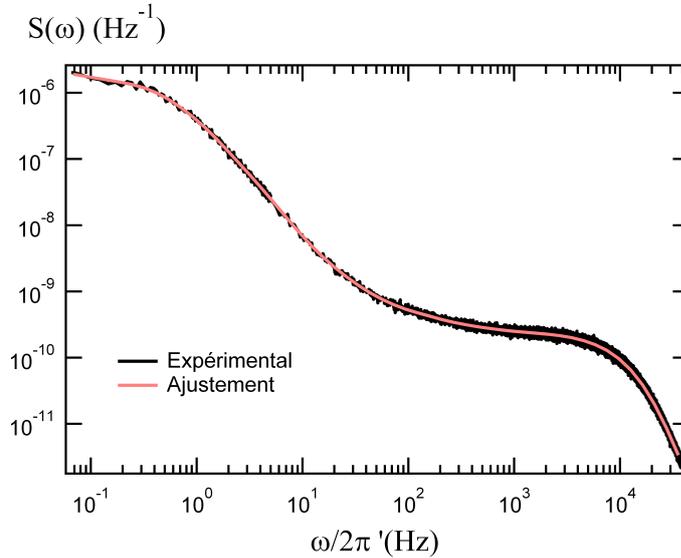
Dans le paragraphe suivant, nous discutons des mesures effectuées sur un système qui présente des propriétés viscoélastiques linéaires semblables, mais dont les effets viscoélastiques de surface sont également attendus : une solution de micelles géantes. En effet, il est intéressant de savoir si la technique peut être sensible aux effets de viscoélasticité de surface.

### 3.4.2 Solution de micelles géantes

La rhéologie des micelles géantes a été largement étudiée [40]. Celle-ci est comparable à celle de la solution d'EHUT, mais une différence de viscoélasticité de surface est attendue entre les deux solutions. Contrairement à la solution d'EHUT, les molécules tensioactives présentes dans la solution micellaire s'adsorbent à la surface libre. Par conséquent, on peut s'attendre à observer des effets de viscoélasticité de surface, résultant de l'échange de molécules entre la surface et le volume. Cependant la viscoélasticité de surface n'a jamais été observée pour un tel système. Les mesures du module de dilatation sont difficiles, en particulier pour les solutions de tensioactifs solubles pour lesquelles le module de dilatation est généralement faible.

La solution de micelles utilisée est composée de cetylpyridinium chloride (CPCL) et de sodium salicylate (NaSal) telle que  $[CPCL]/[NaSal]=2$  et  $=10wt.\%$  en solution aqueuse  $[NaCl]=0.5 M$ . Nous avons mesuré la tension de surface de la solution avec la technique de la goutte pendante à  $25^\circ C$ , on obtient  $\gamma = 30 \pm 2 mN/m$ . Cette valeur est en accord avec les mesures effectuées par Akers et al [41]. Comme attendu, la tension de surface de la solution de micelles géantes est beaucoup plus faible que celle du solvant aqueux, en accord avec l'adsorption significative des molécules à l'interface avec l'air. On rappelle que dans le cas de la solution d'EHUT, la tension de surface mesurée est identique à celle du solvant (dodécane).

Sur la figure II.15, on représente le spectre de fluctuations mesuré à la surface libre de la solution de micelles géantes. Le spectre de fluctuations a pu être mesuré sur près de 6 décades entre  $4.8 \times 10^{-2} Hz$  et  $3.5 \times 10^4 Hz$ . On ajuste ce spectre avec la même procédure utilisée précédemment pour la solution supramoléculaire d'EHUT. Les variations du module viscoélastique complexe avec la fréquence sont décrites par un modèle de Maxwell généralisé II.22. L'ajustement obtenu est représenté en rouge. Les modules viscoélastiques, déduits de cet ajustement, sont représentés sur la figure II.15 en trait continu pour  $G'$  et en traits pointillés pour  $G''$ . Sur la figure II.15, on affiche également les paramètres  $H_k$  vers lesquels la procédure d'ajustement a convergé. Les modules viscoélastiques possèdent des variations comparables à celles observées pour la solution d'EHUT. En effet, on retrouve un comporte-



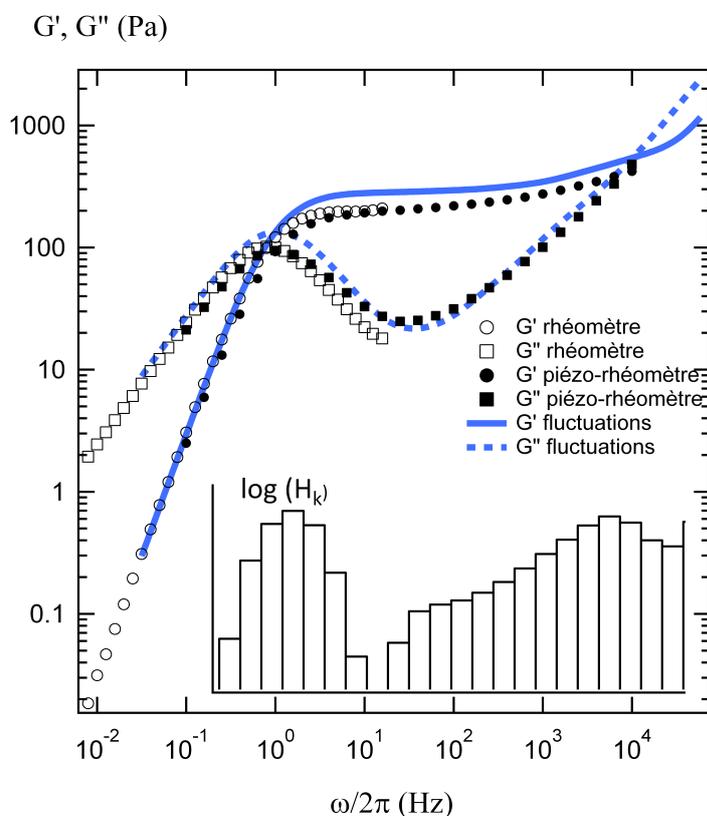
**Figure II.15** – Spectre des fluctuations mesurées à la surface libre de la solution de micelles géantes avec l’ajustement obtenu (en rouge). L’expression de la susceptibilité utilisée dans cet ajustement considère uniquement la viscoélasticité de volume et ignore la viscoélasticité de surface.

ment de Maxwell aux basses fréquences, mais celui-ci se situe à des fréquences plus élevées. Le temps de relaxation associé passe de  $\tau = 150$  s pour la solution d’EHUT à  $\tau = 1$  s pour la solution de micelles géantes. Dans le cas des micelles géantes, les fréquences auxquelles les fluctuations sont mesurées englobent le comportement de Maxwell. Les variations des modules élastique et visqueux en loi de puissance sont également décalées à des fréquences plus élevées.

Comme pour la solution d’EHUT, les modules viscoélastiques linéaires déduits du spectre de fluctuations sont comparés à des mesures rhéométriques de référence. L’accord avec ces mesures est satisfaisant. Cependant, le plateau du module élastique aux fréquences intermédiaires est environ 25% plus élevé que celui mesuré avec le piézo-rhéomètre. Les éventuelles sources d’erreur sur ce module élastique sont discutées dans le paragraphe 3.6.

### 3.5 Sensibilité à la viscoélasticité de surface

Comme indiqué précédemment, la solution de micelles géantes est un système pour lequel des effets de viscoélasticité de surface peuvent être attendus. Afin de savoir si ces effets peuvent être détectés à partir du spectre de fluctuations  $S(\omega)$ , on compare les spectres de fluctuations calculés dans le cas où la viscoélasticité de surface est prise en compte dans l’expression de la susceptibilité et celui où la viscoélasticité de surface n’est pas prise en compte II.11.



**Figure II.16** – Modules viscoélastiques linéaires pour la solution de micelles géantes déduits du spectre de fluctuations [en trait continu bleu ( $G'$ ) et en pointillé bleu ( $G''$ )], et mesurés directement à l'aide d'un rhéomètre classique (symboles vides) aux basses fréquences et d'un piézo-rhéomètre (symboles pleins) aux plus hautes fréquences. En bas de la figure, on affiche les paramètres  $H_k$  du modèle II.22 utilisé dans la procédure d'ajustement.

L'expression de la susceptibilité, où la viscoélasticité de surface est prise en compte, est donnée en annexe F. Pour calculer le spectre dans le cas où l'on prend en compte la viscoélasticité de surface, on suppose que le module de dilatation est indépendant de la fréquence et on suppose que sa partie réelle est égale à sa partie imaginaire :  $\text{Re}(\epsilon^*) = \text{Im}(\epsilon^*) = 100 \text{ mN/m}$ . De telles valeurs surestiment le module de dilatation, qui, dans la littérature, sont généralement inférieures à 50 mN/m pour des couches de surfactants solubles [42]. Malgré cette majoration du module de dilatation, l'effet produit sur le spectre calculé reste très faible. La différence entre les deux spectres calculés, avec et sans prise en compte du module de dilatation, est inférieure à 0.2%. De plus, l'influence de la viscoélasticité de surface apparaît aux fréquences supérieures à 500 Hz.

Ces résultats indiquent que les effets de viscoélasticité de surface ne modifient pas significativement le spectre de fluctuations, même pour des valeurs de module de dilatation importantes. Le manque de sensibilité à la viscoélasticité de surface peut également être com-

pris en considérant la longueur sur laquelle l'échantillon est sondé avec la technique, fixée par la largeur du faisceau laser à la surface (ici  $28 \mu\text{m}$ ). Cette taille est beaucoup plus grande que l'épaisseur de la couche de surfactant, il est donc cohérent que la rhéologie extraite du spectre de fluctuations corresponde principalement aux propriétés volumiques du milieu sondé. Ainsi, diminuer la largeur du faisceau laser permettrait d'augmenter la sensibilité aux effets de viscoélasticité de surface.

En conclusion, nous avons confirmé la précision de notre méthode, consistant à extraire les propriétés viscoélastiques linéaires à partir du spectre de fluctuations, en utilisant une deuxième solution de polymère supramoléculaire. Nous avons également montré que, dans les conditions expérimentales actuelles, malgré d'éventuels effets de viscoélasticité de surface, les propriétés déduites du spectre correspondent aux propriétés volumiques du milieu sondé. Dans le paragraphe suivant, nous discutons de la précision des mesures ainsi réalisées.

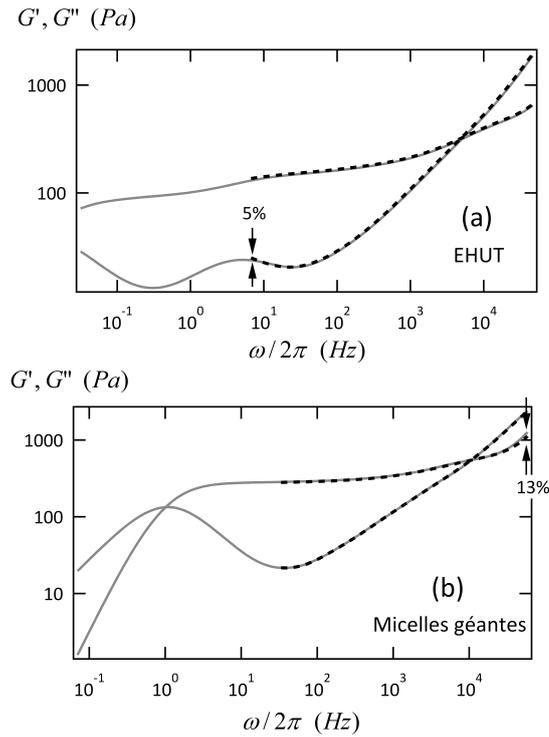
### 3.6 Précision de la mesure des propriétés viscoélastiques

Premièrement, nous discutons de l'influence de la largeur du spectre mesuré sur les valeurs des modules viscoélastiques qui en sont déduits. Comme indiqué précédemment, la procédure d'ajustement du spectre utilise implicitement les relations de Kramers-Kronig. L'écriture explicite des relations de Kramers-Kronig implique l'utilisation d'intégrales effectuées sur une gamme infinie de fréquences. Généralement ces intégrales sont utilisées pour déduire la partie réelle d'une grandeur physique à partir de la partie imaginaire de cette même grandeur déterminée expérimentalement. Cependant, l'utilisation de ces intégrales sur une gamme limitée de fréquences peut conduire à des erreurs importantes. Par exemple, dans les expériences de micro-rhéologie, la partie imaginaire de la complaisance mécanique est mesurée par le biais des fluctuations de déplacement d'un traceur microscopique. La partie réelle de la complaisance est ensuite déduite en intégrant numériquement les relations de Kramers-Kronig, ce qui génère des erreurs significatives. Les mesures brutes doivent être corrigées en utilisant des hypothèses sur le comportement de la partie imaginaire à des fréquences en dehors du spectre expérimental, comme expliqué par [43].

Dans notre cas, comme suggéré par Persson [44], les parties réelle et imaginaire du module viscoélastique sont directement obtenus en ajustant le spectre expérimental avec un spectre théorique impliquant une expression du module viscoélastique qui satisfait les relations de Kramers-Kronig. Il n'y a pas de correction à effectuer. Cependant, il est possible que la largeur du spectre expérimental influence les valeurs des modules  $G'$  et  $G''$  déduits de l'ajustement. Pour étudier qualitativement cette influence, on peut comparer les modules viscoélastiques obtenus en faisant varier la fréquence limite inférieure à partir de laquelle l'ajustement du

## II.3 Fluctuations de surface d'un milieu viscoélastique

spectre est effectué. Sur les figures II.17-a et II.17-b, on représente respectivement les modules obtenus pour la solution d'EHUT et pour la solution de micelles géantes en ajustant le spectre sur la plage fréquentielle maximale (en traits gris) et en ajustant le spectre sur une plage fréquentielle moitié moins grande (en pointillés noirs). Comme le montre les figures



**Figure II.17** – Modules viscoélastiques linéaires pour les solutions d'EHUT (a) et de micelles géantes (b) déduits de l'ajustement du spectre des fluctuations de surface. Les traits continus gris correspondent aux résultats de l'ajustement effectué sur la largeur maximale du spectre (identiques aux figures II.13 et II.16), les pointillés noirs correspondent aux résultats de l'ajustement effectué sur une largeur fréquentielle moitié moins grande.

II.17-a et II.17-b, les valeurs de  $G'$  et  $G''$ , entre les deux ajustements, diffèrent de moins de 5% pour la solution d'EHUT et de moins de 13% pour la solution de micelles géantes. Les plus grands écarts sont atteints aux fréquences minimale et maximale du spectre sur lequel est effectué l'ajustement. Dans l'intervalle 50 Hz-10 kHz, les modules diffèrent, respectivement, de moins de 1% et 3% pour les solutions d'EHUT et de micelles géantes. En conclusion, pour un matériau dont les propriétés viscoélastiques sont comparables à celles des solutions supra-moléculaires étudiées, les modules extraits du spectre des fluctuations sont très peu sensibles à la largeur de la plage fréquentielle sur laquelle on effectue l'ajustement.

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'influence de la tension de surface sur les valeurs

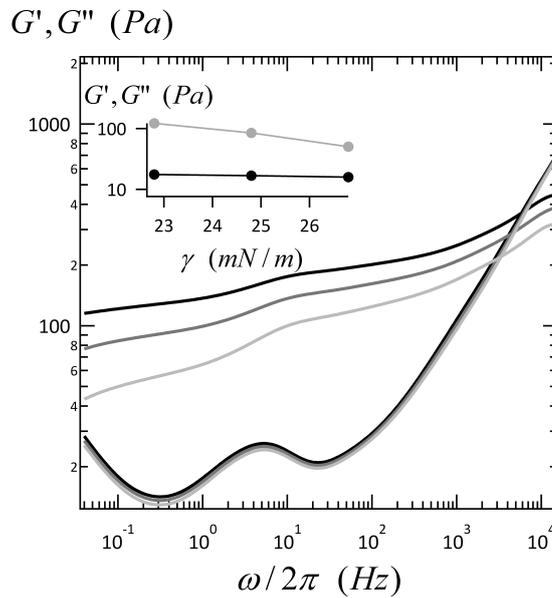
des modules déduits du spectre de fluctuations. En effet, dans le cas général, la tension de surface du matériau doit être connue afin de déterminer correctement les modules viscoélastiques. Nous avons vu précédemment, dans le cas du solide viscoélastique, que sa valeur n'a pas besoin d'être connue précisément. En effet, lorsque le module viscoélastique  $G^*$  est suffisamment grand pour que  $|G^*|R/\gamma > 1$ , les effets viscoélastiques dominent les fluctuations d'interface et le spectre mesuré est indépendant de la tension de surface au premier ordre (région C du diagramme figure II.2). En revanche, pour des fluides complexes, comme les solutions d'EHUT et de micelles géantes, les effets de tension de surface sont (au moins) aussi importants que les effets viscoélastiques. En particulier aux basses fréquences, où le spectre des fluctuations possède un développement au premier ordre de la forme :

$$S(\omega) \sim \frac{G''R}{\gamma^2} \omega^{-1} \quad (\text{II.23})$$

Dans ce régime, le spectre des fluctuations dépend fortement de la valeur de la tension de surface. Dans le cas de la solution de micelles géantes, nous avons constaté qu'il est possible de considérer la tension de surface comme un paramètre ajustable et que ce degré de liberté supplémentaire ne modifie pas les valeurs des modules viscoélastiques obtenues. Lorsqu'on laisse la possibilité de modifier la tension de surface dans la procédure d'ajustement, sa valeur converge systématiquement vers la valeur attendue de 30 mN/m. Dans ce cas, la tension de surface et le module viscoélastique influencent le spectre de manière suffisamment indépendante pour être retrouvés correctement tous les deux par la procédure d'ajustement. Cependant, dans le cas de la solution d'EHUT, la tension de surface doit être fixée afin d'obtenir des modules viscoélastiques cohérents. Cette différence entre les deux solutions, qui possèdent pourtant des propriétés viscoélastiques comparables, peut être comprise en notant que le spectre expérimental, dans le cas de la solution de micelles géantes, inclut le maximum de  $G''$  correspondant au temps de Maxwell. Ce qui n'est pas le cas pour la solution d'EHUT. Les valeurs de  $G'$  et  $G''$  aux basses fréquences sont donc plus contraintes pour la solution de micelles géantes. Or, aux basses fréquences, le spectre dépend fortement de la tension de surface. En conséquence, la valeur de la tension de surface doit elle-même être fortement contrainte, ce qui a été observé lors des ajustements.

Etant donné que, pour la solution EHUT, il est nécessaire de bloquer la valeur de la tension de surface pour extraire correctement les modules viscoélastiques et que les incertitudes dans les mesures de tension de surface peuvent atteindre  $\pm 2$  mN/m, nous avons également étudié la sensibilité des modules élastique et visqueux à la valeur de la tension de surface. Sur la figure II.18, on représente les variations des modules  $G'$  et  $G''$  avec la fréquence obtenues en ajustant le spectre des fluctuations de la solution d'EHUT (figure II.10) où l'on fixe la tension de surface à différentes valeurs. Pour les deux modules, les différences induites sont

plus grandes aux basses fréquences. L'encart montre les variations des modules en fonction de la tension de surface à 0,1 Hz. La variation relative de  $G''$  est du même ordre de grandeur que celle de la tension de surface : on mesure  $\Delta G''/G'' \approx \pm 7\%$  pour  $\Delta\gamma/\gamma = \pm 8\%$ . La différence relative du module élastique est proche de  $\pm 40\%$  à 0.1 Hz, et décroît à 15% aux hautes fréquences. Ces différents ajustements nous indiquent que le module élastique est beaucoup plus sensible à la valeur de la tension de surface que le module visqueux. Malgré cela, la tendance des variations des deux modules avec la fréquence reste acceptable pour les variations de tension de surface testées.



**Figure II.18** – Modules viscoélastiques linéaires de la solution d'EHUT obtenus en ajustant le spectre de fluctuations, pour différentes valeurs de tension de surface :  $\gamma=22.8$  mN/m (ligne noire),  $\gamma=24.8$  mN/m (identique à la figure II.13-b, ligne gris foncé),  $\gamma=26.8$  mN/m (ligne gris clair). L'encart montre les valeurs des modules à 0.1 Hz en fonction de la tension de surface.

## 4 Conclusion

Grâce au montage optique présenté au chapitre I, nous avons mesuré les fluctuations de surface d'un solide viscoélastique dans une large gamme de fréquences (1 -  $10^4$  Hz). Dans ce cas, la dynamique des ondes de surface est contrôlée par la viscoélasticité du matériau. Ainsi, nous avons montré qu'il est possible d'extraire les modules élastiques et visqueux du matériau à partir du spectre de fluctuations. La caractérisation déduite du spectre concorde à celle donnée par un rhéomètre où l'échantillon est sollicité mécaniquement. La procédure consistant à extraire les modules viscoélastiques à partir du spectre a été répétée pour deux fluides complexes de natures différentes. Pour les deux fluides, la rhéologie déduite de la mesure des fluctuations sur une gamme fréquentielle de 6 décades est en bon accord avec

celles données par différents rhéomètres. Ces résultats confirment que notre technique peut être utilisée pour caractériser les propriétés viscoélastiques linéaires volumiques des matériaux à des fréquences inaccessibles avec des rhéomètres conventionnels.

On peut passer en revue les principales limites et avantages de la technique à l'égard des solutions existantes de caractérisation de matériau. Pour les milieux peu élastiques, la technique présente l'inconvénient d'exiger la connaissance de la tension de surface. Par ailleurs, afin de mesurer uniquement le faisceau réfléchi à l'interface, le milieu sondé ne doit pas diffuser le faisceau laser. Notons que cette limitation est valable pour le montage présenté dans cette thèse mais n'est pas rédhibitoire. En effet, en utilisant la réflexion d'un second faisceau, la mesure des fluctuations d'un milieu turbide devient également possible [45]. La technique a l'avantage de sonder l'échantillon sans imposer d'écoulement, elle donne accès aux propriétés dans une large gamme de fréquences et ne nécessite qu'une petite quantité de matière. Contrairement à la micro-rhéologie, il s'agit d'une technique non invasive, qui peut s'appliquer aussi bien à des fluides de faible viscosité qu'à des solides viscoélastiques, qu'ils soient transparents ou non. Enfin, notons que la mesure s'effectue sans contact. Un projet avec Saint-Gobain Recherche est actuellement en cours et exploite cette propriété pour mesurer (à distance) la viscosité du verre à l'état fondu, c'est-à-dire à des températures proches de 1400°C.

---

---

# Chapitre III

---

## Fluctuations de milieux confinés

### 1 Introduction

Jusqu'ici, nous avons mesuré les fluctuations de surface dans le cas où l'épaisseur du milieu sous jacent est largement supérieure aux longueurs d'onde des modes détectés par notre montage. Dans ce cas, la taille du faisceau est la seule longueur pertinente du problème, les fluctuations de surface dépendent uniquement des propriétés du milieu fluctuant. Ainsi, au chapitre précédent, nous avons vu que les fluctuations révèlent les propriétés viscoélastiques du milieu et que la technique peut s'utiliser comme un rhéomètre.

Dans ce chapitre, on s'intéresse aux fluctuations de films minces. Cette configuration présente plusieurs intérêts scientifiques. Premièrement, les fluctuations de surface doivent nous renseigner sur les propriétés mécaniques de films minces et permettre ainsi d'étudier l'effet du confinement. Pour des films de polymères, cet effet du confinement survient à des épaisseurs de film de quelques dizaines de nanomètres, correspondant à quelques rayons de giration. Or, à ces petites échelles, les techniques classiques de caractérisation mécanique sont inadaptées. Cette idée d'exploiter la mesure des fluctuations afin de caractériser les propriétés de films minces de polymères a déjà été appliquée [2, 46]. Pour des raisons détaillées dans la suite, nous n'avons pas développé cet axe de recherche.

Par ailleurs, lorsque l'épaisseur du milieu est comparable ou inférieure à la longueur d'onde des fluctuations, les fluctuations deviennent sensibles à la condition limite entre le milieu et le substrat. La mesure des fluctuations de surface de films minces offre ainsi la possibilité d'évaluer un éventuel glissement entre un liquide et une paroi solide sans devoir appliquer un écoulement. Dans la majorité des techniques existantes, l'évaluation du glissement nécessite d'exercer un écoulement. Or, il a été observé que l'écoulement créé peut introduire des effets indésirables comme la naissance de poches de gaz (appelées également nanobulles) et empêche l'accès aux propriétés intrinsèques de l'interface. La mesure des fluctuations de surface évite ces artefacts et semble être une solution appropriée pour étudier le glissement hydrodynamique. Des longueurs de glissement nanométriques ont déjà été mesurées dans une expérience tirant bénéfice des effets des fluctuations thermiques [4]. Cette méthode consiste

à suivre la diffusion d'une particule colloïdale proche de la paroi solide où se produit le glissement. Contrairement à cette technique, notons que notre mesure des fluctuations ne nécessite pas d'introduire de traceurs dans le liquide.

Les calculs des fluctuations de surface en milieu confiné avec ou sans glissement ont déjà été effectués [12, 47]. Ces calculs seront utilisés tout au long du chapitre pour décrire nos mesures.

## 2 Les différents types de confinements

Dans cette partie, on étudie l'effet du confinement sur la dynamique des fluctuations de surface dans le cas d'un liquide purement visqueux. Pour étudier l'effet du confinement, on considère trois différents types de substrats. Premièrement, on considère le cas où le substrat est solide et possède une forme plane. On étudie également le cas où le substrat solide possède le relief d'un réseau de diffraction. Dans ce cas, les fluctuations d'interface deviennent anisotropes et dépendent de la position par rapport au relief du substrat. Enfin, on s'intéresse au cas où le substrat est liquide.

### 2.1 Substrat solide plan

#### Relation de dispersion

Nous allons reprendre l'analyse énergétique effectuée au paragraphe 2.3 du chapitre I, et considérer le cas où le milieu fluctuant est déposé sur un substrat solide plan et possède une épaisseur  $h$  très faible devant la longueur d'onde  $1/q$ . Ces calculs correspondent à ceux effectués par Henle et Levine [12]. On rappelle que cette analyse évalue l'énergie emmagasinée et l'énergie dissipée par le milieu fluctuant et permet d'obtenir la relation de dispersion du système. Dans cette analyse, on considère un fluide purement visqueux. Dans ce cas, l'énergie peut uniquement être emmagasinée dans l'interface, lorsqu'elle se déforme. La puissance transférée au fluide lorsque la déformation de l'interface se relaxe s'écrit (I.40) :

$$P_{surf} \sim (\gamma k^2 \zeta) A \omega \zeta \quad (\text{III.1})$$

où  $A$  est l'aire de l'interface,  $\zeta$  est la hauteur de déformation de l'interface. La puissance transférée est ensuite dissipée dans le volume du fluide grâce aux effets visqueux. La puissance dissipée s'écrit (I.41) :

$$P_{diss} \sim A \eta \int_0^h dz v \nabla^2 v \quad (\text{III.2})$$

Par ailleurs, la conservation du volume permet de relier la variation de hauteur de l'interface,

## III.2 Les différents types de confinements

---

à la vitesse du fluide.

$$A\partial_t\zeta = A\omega\zeta \approx \int_0^h dzv \quad (\text{III.3})$$

Lorsque l'épaisseur du fluide est très faible devant la longueur d'onde du mode de déformation ( $kh \ll 1$ ), la longueur sur laquelle la vitesse du fluide décroît est l'épaisseur du fluide  $h$ . On a  $\nabla^2 \sim 1/h^2$ . En égalisant la puissance transférée à la puissance dissipée et en tenant compte de la conservation du volume, on obtient la relation de dispersion :

$$\omega_{kh \ll 1} \sim \frac{\gamma k^4 h^3}{\eta} \quad (\text{III.4})$$

On rappelle la relation de dispersion obtenue pour  $kh \gg 1$  :  $\omega_{kh \gg 1} \sim \gamma k/\eta$ . Pour un milieu confiné ( $kh \ll 1$ ), le temps de relaxation  $1/\omega_{kh \ll 1}$  de la déformation dépend très fortement de l'épaisseur  $h$  du milieu. Ce temps est supérieur à celui obtenu dans le cas où l'épaisseur du milieu est infinie. Le confinement du fluide diminue la profondeur sur laquelle la vitesse du fluide varie, le cisaillement du fluide est donc plus important que dans le cas où l'épaisseur est infinie. Les effets visqueux sont amplifiés, ceci se traduit par un ralentissement de la dynamique des fluctuations.

Pour déterminer entièrement la relation de dispersion, il faut calculer la susceptibilité  $\chi(k, \omega)$  du système. Pour cela, on cherche la réponse hydrodynamique du fluide soumis à un champ de contrainte extérieure, comme effectué au paragraphe 2.3 du chapitre I. Dans cette résolution, on remplace la condition à la limite (I.32) par :

$$\vec{v}|_{z=h} = \vec{0} \quad (\text{III.5})$$

La vitesse du fluide s'annule à la distance finie  $h$ . Avec ce changement de condition à la limite, la susceptibilité s'écrit [47], [12] :

$$\chi(k, \omega) = \frac{1}{\gamma k^2 + i\omega\eta B(k)} \quad (\text{III.6})$$

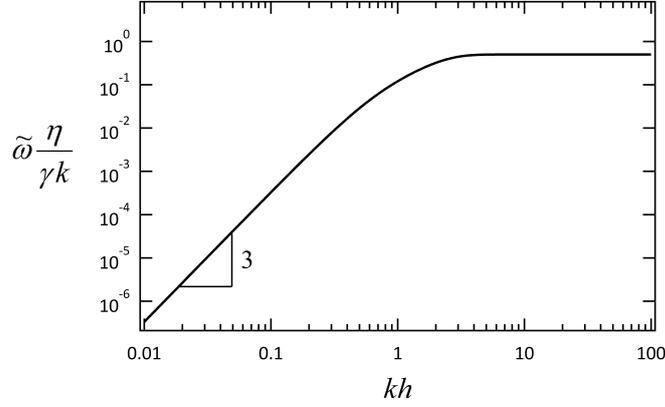
Avec

$$B(k) = 4k \frac{\cosh^2(kh) + k^2 h^2}{\sinh(2kh) - 2kh}$$

Les fréquences propres du système correspondent aux solutions de l'équation de dispersion  $\chi(k, \omega)^{-1} = 0$ . D'après l'expression de la susceptibilité (III.6), il existe une seule solution  $\omega_n$  telle que :

$$\omega_n(k) = i\tilde{\omega}(k) = i \frac{\gamma k^2}{\eta B(k)} \quad (\text{III.7})$$

La variation de la fréquence propre  $\tilde{\omega}$  normalisée par  $\gamma k/\eta$  en fonction du produit  $kh$  est affichée sur la figure III.1. Dans les deux limites, où l'épaisseur est très grande ou très petite



**Figure III.1** – Variation de la fréquence propre normalisée  $\tilde{\omega}\eta/\gamma k$  en fonction du produit  $kh$ .

devant la longueur d'onde, on obtient :

$$\tilde{\omega}(k) = \begin{cases} \frac{\gamma k}{2\eta}, & kh \ll 1 \\ \frac{\gamma k^4 h^3}{3\eta}, & kh \gg 1 \end{cases} \quad (\text{III.8})$$

Dans cette résolution, les termes inertiels (stationnaire et non stationnaire) de l'équation de Navier Stokes sont négligés par rapport au terme visqueux. Pour comparer l'influence des effets inertiels à celle des effets visqueux, il faut calculer respectivement le nombre de Reynolds (I.27) et le nombre de Stokes (I.29). Compte tenu des très faibles déformations, induites par l'agitation thermique, on a :  $Re \sim 10^{-7}$ . Le terme inertiel stationnaire est donc toujours négligeable. En revanche, le terme inertiel non stationnaire ne l'est pas toujours. En effet, pour des fluides peu visqueux, nous avons vu au paragraphe 2.2 qu'il est nécessaire de prendre en compte ce terme inertiel pour décrire correctement les spectres de fluctuations mesurées aux hautes fréquences. Dans le cas d'un milieu confiné, les effets visqueux sont amplifiés, l'importance relative des effets inertiels est donc plus faible. Quelle que soit la viscosité, il existe une épaisseur  $h_0$  en dessous de laquelle les effets inertiels sont négligeables. Cette épaisseur correspond à  $St \sim 1$ , on a donc :

$$h_0 \approx \sqrt{\frac{\eta}{\rho\omega}} \quad (\text{III.9})$$

La relation de dispersion (III.7), correspondant au régime sur-amorti, est donc valable pour une épaisseur de fluide inférieure à  $h_0$ . En pratique, pour de l'eau ( $\eta=1$  mPa.s,  $\rho=10^3$  kg/m<sup>3</sup>) à une fréquence de  $\omega = 200$  rad/s, on obtient  $h_0 = 70$   $\mu$ m. Dans ce chapitre, où l'on s'intéresse aux fluctuations de films d'huile, les effets inertiels ne sont pas visibles en dessous de  $10^4$  Hz.

### Les spectres attendus

Dans ce paragraphe on discute de l'effet du confinement sur le spectre  $S(\omega)$  mesuré avec notre technique.

Au paragraphe précédent, les fréquences propres d'un milieu visqueux d'épaisseur finie ont été déterminées. Pour un mode  $k$  de déformation, il existe une unique fréquence propre  $\tilde{\omega}(k)$ , imaginaire pure, donnée par l'équation (III.7). La fonction d'autocorrélation de hauteur de l'interface  $P(k, t)$  possède donc une seule décroissance exponentielle :

$$G(k, t) = \frac{k_B T}{\gamma k^2} e^{-\tilde{\omega}(k)t} \quad (\text{III.10})$$

Et la transformée de Fourier temporelle de la fonction d'autocorrélation s'écrit :

$$P(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi \gamma k^2} \frac{\frac{1}{\tilde{\omega}}}{1 + \left(\frac{\omega}{\tilde{\omega}}\right)^2} \quad (\text{III.11})$$

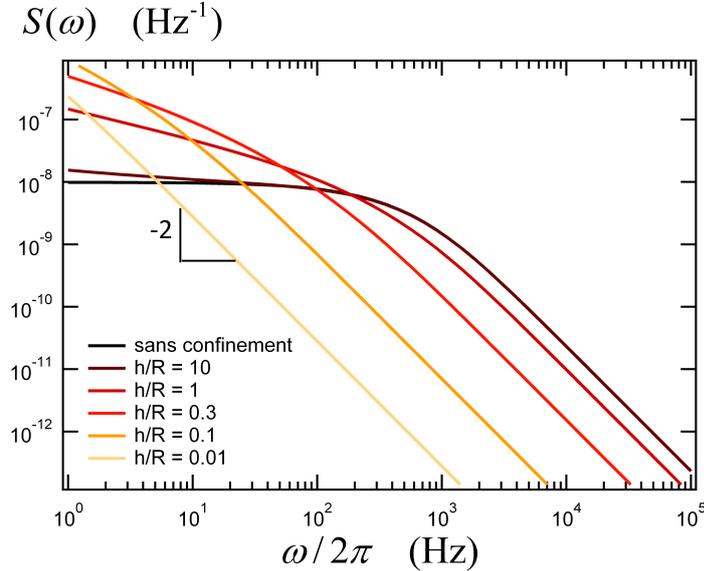
On rappelle l'expression du spectre des fluctuations  $S(\omega)$  mesurées avec notre technique :

$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{III.12})$$

La fonction d'appareil  $\Phi(k)$  tient compte du fait que le signal mesuré est inégalement sensible aux différents modes de fluctuation de surface. Comme la technique est sensible aux fluctuations d'angle,  $\Phi$  est maximum lorsque  $k \approx 1/R$ . Autrement dit, au premier ordre, la technique mesure les fluctuations de surface dont la longueur d'onde est comparable à la largeur du faisceau laser  $R$ . Le spectre  $S(\omega)$  est donc sensible au effet du confinement lorsque l'épaisseur du milieu devient comparable, ou inférieure, à la largeur du faisceau sonde,  $h \leq R$ . Sur la figure III.2, on représente les spectres  $S(\omega)$ , calculés numériquement d'après l'équation (III.12), pour une huile confinée à différentes épaisseurs  $h$ . Pour un rapport  $h/R > 1$ , on vérifie que le spectre dévie très peu du spectre sans confinement. Les premières déviations surviennent aux basses fréquences sur le plateau de la lorentzienne. Pour un rapport  $h/R \leq 1$ , l'effet du confinement est visible sur l'ensemble du spectre. La dynamique des fluctuations est progressivement décalée vers les basses fréquences. Lorsque le rapport  $h/R$  devient très faible, la fréquence propre  $\tilde{\omega}(k)$ , associée au mode  $k = 1/R$ , devient si basse qu'elle n'est plus observable dans la gamme de fréquence affichée. Dans ce cas, quelle que soit la fréquence, le spectre décroît suivant la loi de puissance  $S(\omega) \sim \omega^{-2}$ . En effet, dans le cas où  $h/R \ll 1$ , d'après l'expression de  $\tilde{\omega}$  III.8, le spectre est de la forme :

$$S(\omega) \propto \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{h^3}{\eta \omega^2 R^4} \quad (\text{III.13})$$

Dans ce régime ( $h \ll R$ ), le spectre est très sensible à l'épaisseur du milieu.

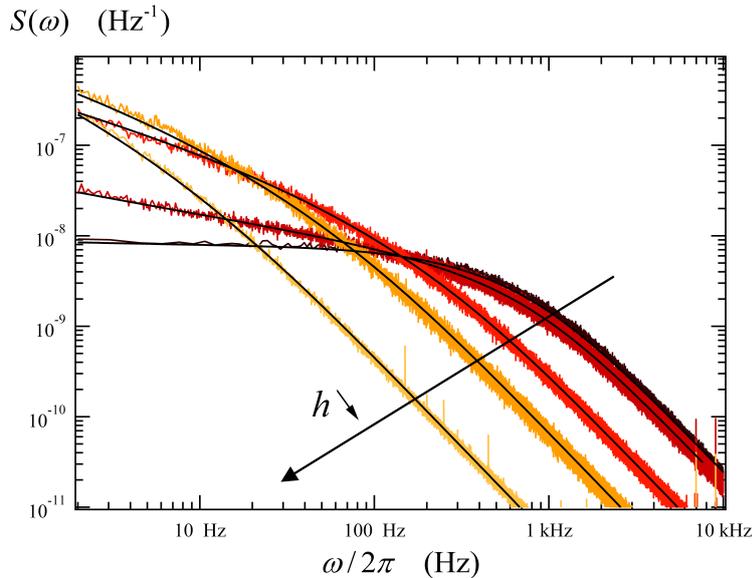


**Figure III.2** – Spectres de fluctuation calculés numériquement d’après III.12 pour une couche d’huile ( $\gamma = 20 \text{ mN/m}$ ,  $\eta = 0.1 \text{ Pa.s}$ ) à différentes épaisseurs  $h$ . La largeur du faisceau est fixée à  $R = 30 \mu\text{m}$ . Le spectre de l’huile pour une épaisseur infinie est également affiché comme référence. Le spectre devient sensible à l’effet du confinement pour des rapports  $h/R \leq 1$ .

### Les spectres mesurés

Pour vérifier expérimentalement l’effet du confinement, on mesure les fluctuations de surface de films d’huile de différentes épaisseurs. On utilise le montage décrit au chapitre I. On rappelle la largeur du faisceau au col  $R = 28 \mu\text{m}$ . L’huile utilisée est une huile silicone (Rhodorsil V100), de tension de surface  $\gamma = 20.9 \text{ mN/m}$ , et de viscosité  $\eta = 0.1 \text{ Pa.s}$ . Les films d’huile reposent sur la surface non polie d’un wafer de silicium, dont la rugosité est d’environ  $2 \mu\text{m}$ . La rugosité du substrat diffuse la lumière du faisceau laser incident et rend négligeable les effets d’interférences entre les faisceaux réfléchis aux interfaces air/liquide et liquide/substrat. Lors de la mesure des fluctuations, on vérifie que l’intensité totale mesurée par les photodiodes est indépendante de l’épaisseur du film. La très faible réflexion à l’interface liquide/substrat permet cependant de mesurer l’épaisseur des films sondés à l’aide d’un profilomètre optique. Pour obtenir des films de différentes épaisseurs, on dépose des gouttes de volume variable sur la surface du wafer, que l’on laisse s’étaler suffisamment afin d’effectuer la mesure des fluctuations sur une interface à l’équilibre et plane. Sur la figure III.3, on représente les spectres mesurés pour 4 films dont les épaisseurs varient de  $5.3$  à  $63 \mu\text{m}$  ainsi que le spectre pour une épaisseur d’environ  $1 \text{ mm}$ . Comme prévu, lorsque l’épaisseur du film est supérieure à la taille du faisceau,  $h = 63 \mu\text{m} > R = 28 \mu\text{m}$ , le spectre dévie peu de la forme lorent-

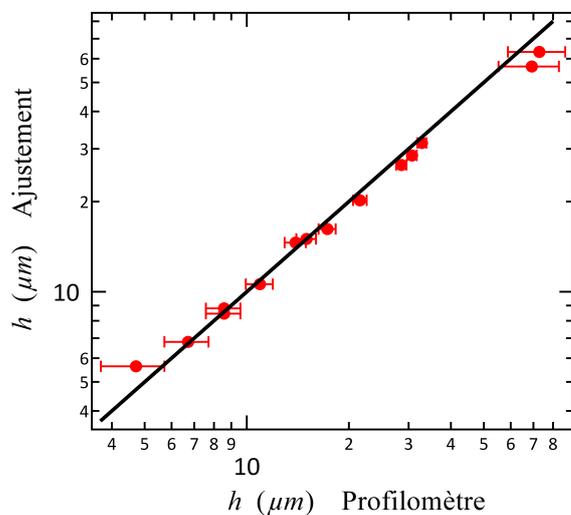
zienne (correspondant au milieu semi-infini). Pour des épaisseurs plus faibles, l'amplitude des spectres décroît rapidement et correspond au ralentissement de la dynamique des fluctuations provoqué par le confinement du milieu.



**Figure III.3** – Spectres de fluctuation obtenus pour des films d’huile sur un wafer de silicium. Les spectres expérimentaux (en couleur) correspondent à différentes épaisseurs de film. Les ajustements, calculés avec l’expression théorique (III.12), sont représentés en noir. Les épaisseurs déduites des ajustements, correspondant aux spectres de bas en haut aux hautes fréquences, sont  $5.3 \mu\text{m}$ ,  $8.4 \mu\text{m}$ ,  $14.6 \mu\text{m}$ , et  $63.2 \mu\text{m}$ . Le dernier spectre est obtenu pour une épaisseur de  $1 \text{ mm}$ , le spectre théorique associé correspond à un milieu semi-infini.

Les spectres expérimentaux sont ajustés en utilisant l’équation (III.12). Puisque les propriétés du liquide sont connues, l’épaisseur du film est l’unique paramètre ajustable. Pour chaque spectre, l’ajustement des données expérimentales est excellent. Les épaisseurs de film, déduites de ces ajustements, sont affichées en fonction des épaisseurs mesurées indépendamment avec le profilomètre sur la figure III.4. Les valeurs sont en bon accord, ceci valide les prédictions du modèle capillaire dans le cas des films minces. Il s’agit de la première vérification de ces calculs sur des systèmes bien contrôlés. Jusqu’ici, le ralentissement de la dynamique des fluctuations de surface a uniquement été observé avec des films de polymères. Dans ces expériences, l’analyse des résultats nécessite une modélisation de la rhéologie du polymère. Dans notre cas, le liquide est newtonien, il est seulement décrit par deux paramètres indépendants de la fréquence : la viscosité et la tension de surface. En raison de la grande rugosité du substrat ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ), les données pour des épaisseurs inférieures à  $5 \mu\text{m}$  ne sont pas affichées car l’épaisseur est mal définie.

## Conclusion



**Figure III.4** – Épaisseurs de film déduites des ajustements des spectres des fluctuations en fonction des épaisseurs mesurées indépendamment avec un profilomètre. Les barres d’erreur horizontales résultent de l’imprécision des mesures au profilomètre, la réflexion sur le substrat étant très faible. Les barres d’erreur verticales sont trop petites pour être visibles. La ligne noire continue correspond à :  $h_{\text{Ajustement}} = h_{\text{Profilomètre}}$ .

Grâce au montage présenté au chapitre I, nous avons mesuré les fluctuations de surface de films visqueux pour des épaisseurs comprises entre  $5.3 \mu\text{m}$  et  $63 \mu\text{m}$ . Le ralentissement de la dynamique des spectres observé est très bien décrit quantitativement par le modèle des ondes capillaires. Dans le paragraphe suivant on s’intéresse aux fluctuations de surface lorsque le substrat solide n’est plus plan mais possède une forme de réseau de diffraction.

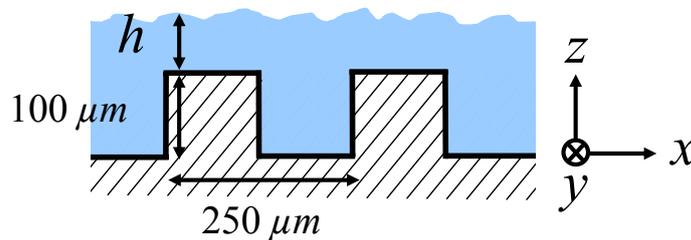
## 2.2 Substrat solide en relief

Dans ce paragraphe on s'intéresse aux fluctuations de surface lorsque le substrat solide possède une surface en relief. Dans ce cas, nous verrons que les fluctuations de surface dépendent de la position par rapport au substrat et deviennent anisotropes.

### Matériel

Le substrat en relief est fabriqué avec une résine époxy synthétisée au laboratoire. Dans un premier temps, le motif est imprimé sur un substrat en plexiglas à l'aide d'une micro fraiseuse, et moulé avec du PDMS (Sylgard 184). Après réticulation, la surface du PDMS qui était en contact avec le plexiglas est utilisée comme moule pour la résine époxy. La résine époxy est réticulée à  $70^{\circ}\text{C}$  pendant 48 heures. Afin de faciliter le démoulage de l'échantillon, la surface en PDMS est silanisée. La silanisation est réalisée en phase vapeur avec le perfluoro-silane (Perfluorodecyltrichlorosilane, ABCR). Finalement, la surface en résine époxy obtenue présente un motif de forme rectangulaire avec une période de  $250\ \mu\text{m}$ , et une hauteur (entre les bosses et les creux) de  $100\ \mu\text{m}$  (figure III.5). La forme et les dimensions du profil ont pu être vérifiées en cartographiant l'interface à l'aide d'un profilomètre optique.

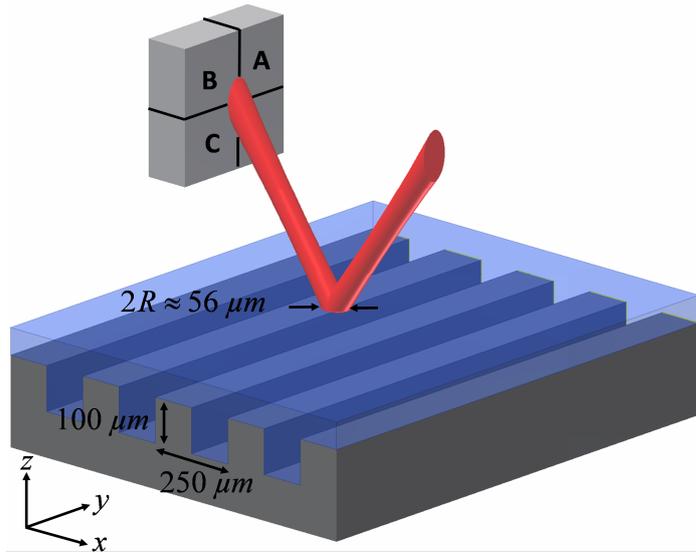
Le liquide utilisé sur ce substrat en relief est une huile spécialement conçue (par l'entreprise Cargille) dont l'indice optique est égal à celui de la résine époxy,  $n = 1.52$ , préalablement mesuré avec un ellispomètre. En égalisant les indices optiques du liquide et du substrat, le faisceau laser utilisé lors de la mesure des fluctuations de surface est uniquement réfléchi sur la surface libre du liquide, il n'y a pas de réflexion sur l'interface liquide/substrat. Par ailleurs, la viscosité de l'huile est  $\eta = 0.1\ \text{Pa}\cdot\text{s}$  et sa tension de surface, mesurée à partir du spectre de fluctuations obtenu pour une couche épaisse, est  $\gamma = 38\ \text{mN/m}$ .



**Figure III.5** – Illustration schématique de la section transversale de l'échantillon avec un substrat en relief. Le substrat possède une forme rectangulaire de période  $250\ \mu\text{m}$  et de hauteur  $100\ \mu\text{m}$ .  $h$  désigne l'épaisseur de liquide au dessus d'une bosse.

Les fluctuations de surface sont mesurées avec le même montage optique que celui pré-

senté au chapitre I. La largeur du faisceau laser dans le plan de l'interface est  $R = 28 \mu\text{m}$ . Afin de mesurer les fluctuations de surface à différentes positions, l'échantillon est posé sur une platine de translation et peut être déplacé (relativement au faisceau laser) dans les deux directions  $x$  et  $y$ . De plus, il est intéressant de comparer les fluctuations mesurées suivant ces deux directions. On rappelle que le montage utilisé détecte les fluctuations d'angle dans la direction donnée par l'orientation des deux quadrants de la photodiode. En pratique, le faisceau réfléchi est centré sur une photodiode constituée de quatre quadrants (figure III.6). Les tensions délivrées par trois quadrants sont utilisées afin de mesurer simultanément les fluctuations dans deux directions différentes. En utilisant les notations de la figure III.6, la différence des tensions délivrées respectivement par les quadrants  $A$  et  $B$  permet de mesurer les fluctuations dans la direction  $y$ , parallèle aux rainures du substrat. En utilisant les quadrants  $B$  et  $C$ , on mesure les fluctuations dans la direction  $x$ , perpendiculaire aux rainures. On note  $S_{\parallel}(\omega)$ , le spectre obtenu en mesurant la différence de tension  $V_A - V_B$ , et  $S_{\perp}(\omega)$  celui obtenu en mesurant la différence de tension  $V_B - V_C$ .



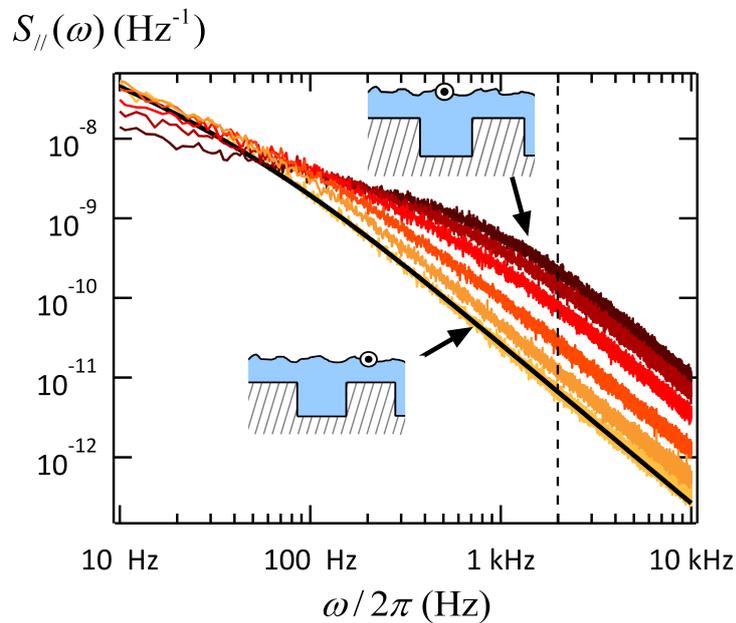
**Figure III.6** – Schéma illustrant la réflexion du faisceau laser sur la surface libre d'un film liquide sur le substrat en relief. Le faisceau réfléchi est centré sur une photodiode à quatre quadrants. Les quadrants sont orientés de façon à pouvoir mesurer les fluctuations dans les directions parallèle (suivant  $y$ ) et perpendiculaire (suivant  $x$ ) aux rainures du substrat.

## Résultats

Lorsque l'épaisseur  $h$  du film liquide est inférieure à environ  $30 \mu\text{m}$ , correspondant à la largeur du faisceau, les spectres  $S_{\parallel}(\omega)$  et  $S_{\perp}(\omega)$  mesurés sont différents. Les fluctuations de surface sont anisotropes. De plus,  $S_{\parallel}(\omega)$  et  $S_{\perp}(\omega)$  dépendent de la position  $x$  du faisceau laser relative au substrat. Lorsque l'on translate l'échantillon suivant la direction  $y$ , on vérifie que

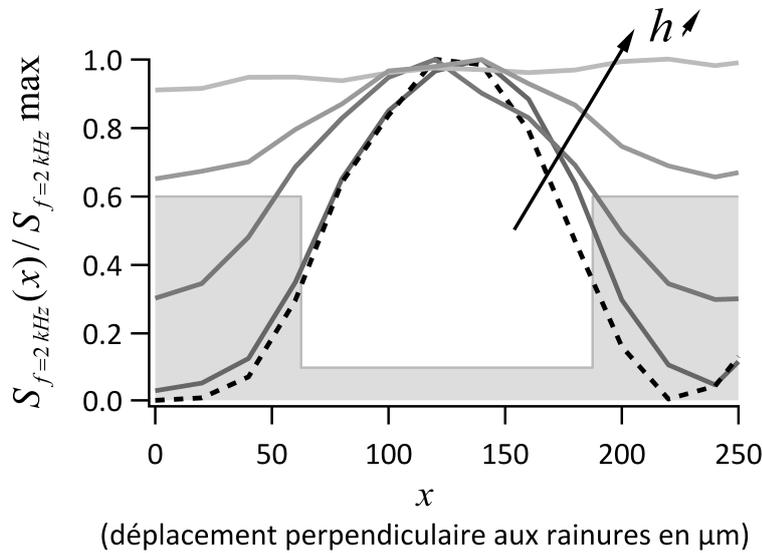
les spectres restent inchangés.

Dans un premier temps, on s'intéresse aux spectres  $S_{//}(\omega)$ , correspondant aux fluctuations de surface détectées dans la direction parallèle aux rainures. Sur la figure III.7, on représente les spectres  $S_{//}(\omega)$  obtenus sur un seul film à différentes positions  $x$ . L'effet du confinement varie périodiquement le long du relief. Aux hautes fréquences, l'amplitude du spectre est maximum au dessus de la région la plus épaisse de liquide et décroît de part et d'autre de cette position. On constate que les spectres mesurés au dessus des bosses du substrat sont très bien décrits en utilisant l'expression calculée pour un film sur un substrat plan (voir l'exemple sur la figure III.7). L'épaisseur du film au dessus d'une bosse peut donc être estimée en ajustant le spectre avec l'expression (III.12) où l'épaisseur est l'unique paramètre ajustable. Cependant, au dessus des creux, la forme des spectres ne peut pas être décrite en utilisant la prédiction pour un substrat plan. Ceci montre qu'au dessus des creux, le confinement dans la direction  $x$  modifie le spectre des fluctuations. En effet, les fluctuations de surface sont sensibles aux conditions aux limites sur les parois verticales du substrat. Un calcul où ces conditions aux limites sont prises en compte serait nécessaire pour prédire quantitativement les fluctuations mesurées.



**Figure III.7** – Spectres de fluctuations d'un film d'huile sur un substrat en relief. Les fluctuations sont mesurées dans la direction parallèle aux rainures du substrat à différentes positions le long de l'axe  $x$  sur une période du relief ( $250 \mu\text{m}$ ). Le pas entre chaque spectre est  $\Delta x = 20 \mu\text{m}$ . La courbe noire correspond à l'ajustement du spectre (en jaune clair) mesuré au dessus d'une bosse du substrat. D'après cet ajustement, l'épaisseur est  $h = 4.5 \mu\text{m}$ . La ligne noire pointillée indique la fréquence à laquelle les valeurs des spectres sont reportées sur la figure III.8.

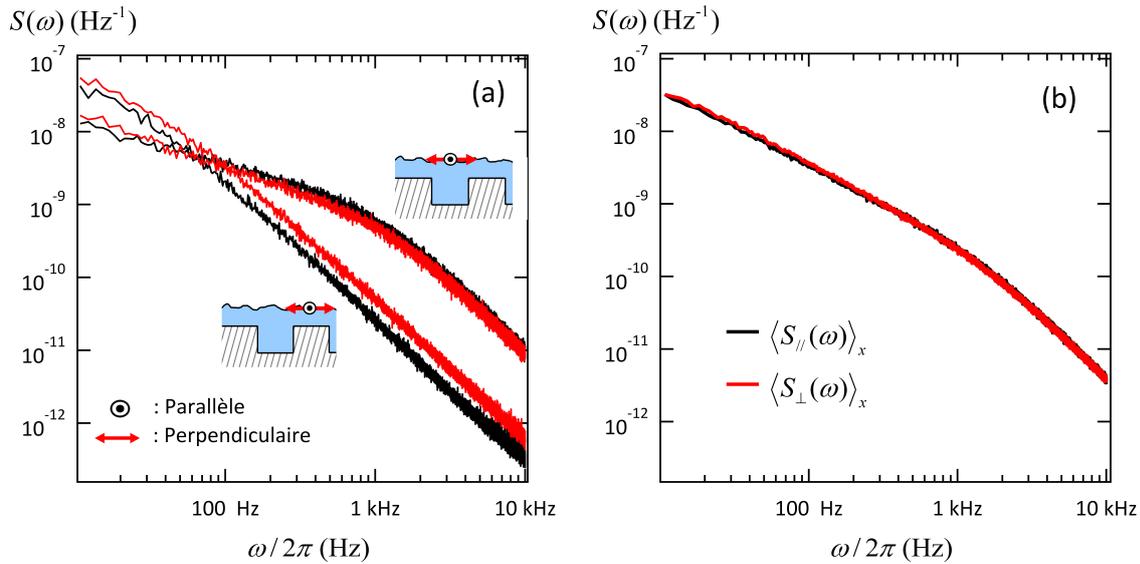
Sur la figure III.8, on représente la variation de l'amplitude du spectre à 2 kHz en fonction de la position  $x$  le long du relief pour des films de différentes épaisseurs. L'amplitude est normalisée par sa valeur maximale (correspondant au spectre mesuré au dessus d'un creux). Les épaisseurs sont estimées en ajustant le spectre obtenu au dessus d'une bosse et varient entre  $2.3 \mu\text{m}$  et  $40 \mu\text{m}$ . Les variations obtenues dépendent fortement de l'épaisseur du film. Lorsque l'épaisseur est grande, le signal est plat, les fluctuations sont indépendantes de la position  $x$ . Tandis que pour les films de plus faible épaisseur, le signal suit le relief du substrat.



**Figure III.8** – Valeur de spectre à 2 kHz normalisé par sa valeur maximale en fonction du déplacement  $x$  perpendiculaire aux rainures du substrat. Les courbes correspondent à des films de différentes épaisseurs  $h$  :  $2.3 \mu\text{m}$  (ligne pointillée), de la ligne grise la plus foncée à la plus claire :  $4.5 \mu\text{m}$ ,  $13 \mu\text{m}$ ,  $30 \mu\text{m}$  et  $40 \mu\text{m}$ . La zone grisée représente le profil du substrat.

Comme indiqué précédemment, les spectres dépendent également de la direction suivant laquelle les fluctuations sont mesurées. La figure III.9-a montre les spectres  $S_{\parallel}(\omega)$  et  $S_{\perp}(\omega)$ , mesurés respectivement dans la direction parallèle et perpendiculaire aux rainures du substrat, dans le cas où le faisceau laser se situe au dessus d'une bosse et au dessus d'un creux. Au dessus d'une bosse, le spectre  $S_{\parallel}(\omega)$  est décalé vers les basses fréquences par rapport au spectre  $S_{\perp}(\omega)$ . Ceci montre qu'au dessus d'une bosse, le confinement est plus important dans la direction parallèle que dans la direction perpendiculaire. Ce résultat peut se comprendre intuitivement comme la conséquence du bord de la bosse du substrat au-delà duquel l'épaisseur du liquide est plus importante. Au dessus d'un creux, l'effet inverse est attendu. Compte tenu des parois verticales, le confinement doit être plus important dans la direction perpendiculaire que dans la direction parallèle. Effectivement, au dessus d'un creux,  $S_{\perp}(\omega)$

est légèrement décalé vers les basses fréquences par rapport à  $S_{//}(\omega)$ . A l'exception du spectre  $S_{//}(\omega)$  mesuré au dessus d'une bosse, l'effet du confinement induit avec ce substrat sur les fluctuations de surface ne peut pas être pris en compte en utilisant l'expression d'un substrat plan avec une épaisseur de liquide effective comme paramètre ajustable. Pour décrire de façon quantitative les spectres, il est nécessaire de prendre en compte correctement les conditions aux limites à l'interface sur le substrat.

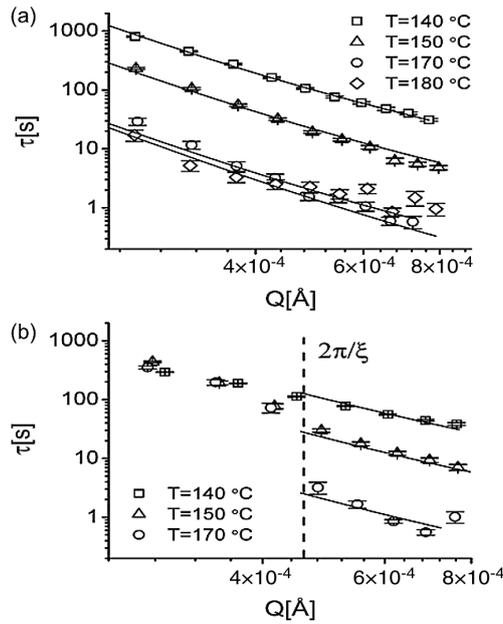


**Figure III.9** – (a) Spectres des fluctuation pour un film d'épaisseur  $h = 4.5 \mu\text{m}$  dans la direction parallèle (en noir) et perpendiculaire (en rouge) aux rainures du substrat. On affiche uniquement les spectres mesurés pour deux positions : au dessus d'une bosse (spectres les plus bas à hautes fréquences) et au dessus d'un creux. Dans les deux cas, les fluctuations sont anisotropes et résultent du substrat sous-jacent. (b) Superposition des spectres moyennés sur une période du substrat dans les directions parallèle (en noir) et perpendiculaire (en rouge).

Sur la figure III.9-b, on représente les spectres moyennés spatialement sur une période du substrat, dans les directions parallèle  $\langle S_{//}(\omega) \rangle_x$  et perpendiculaire  $\langle S_{\perp}(\omega) \rangle_x$ . On remarque que les deux spectres moyens se superposent sur l'ensemble de la gamme de fréquence. Localement, les fluctuations de surface sont anisotropes (figure III.9-a), mais en moyenne elles sont isotropes. De plus, le spectre moyen ne correspond pas au spectre prédit pour un substrat plan dont l'épaisseur de liquide est celle moyennée sur une période du substrat. En fait, quelle que soit la valeur de l'épaisseur de liquide choisie, le spectre calculé avec un substrat plan ne décrit pas correctement les spectres moyens expérimentaux. En effet, bien que l'écoulement soit décrit par des équations linéaires, compte tenu de la condition supplémentaire de vitesse nulle aux parois verticales, l'écoulement ne peut pas être équivalent à celui au dessus d'une surface plane d'épaisseur moyenne. L'isotropie des fluctuations moyennées spatialement sur le substrat est donc un effet non linéaire non trivial.

Discussion

Il est intéressant de comparer les effets de confinement observés dans notre cas à ceux observés dans le travail réalisé par Alvine *et al.* [48]. Dans ce travail expérimental, les fluctuations de surface sont mesurées en utilisant une technique de diffusion de rayon X (X ray photon correlation spectroscopy, XPCS). Cette technique permet de sonder les modes de surface de longueur d'onde inférieure à quelques microns. Le système sur lequel les fluctuations sont mesurées est un film de polymère sur un substrat avec un relief dont la forme est comparable au nôtre, mais dont la période est 278 nm et la hauteur du relief est 129 nm. Dans leur cas, l'anisotropie des fluctuations a été observée pour des longueurs d'onde supérieures à une longueur de coupure, largement supérieure à la période du substrat (figure III.10).



**Figure III.10** – Figure issue de [48]. Temps de relaxation des ondes capillaires en fonction du vecteur d'onde pour différentes températures. Les figures (a) et (b) correspondent respectivement aux mesures effectuées dans les directions parallèle et perpendiculaire au réseau. La longueur de coupure observée  $\xi \approx 1.2 \mu\text{m}$  est largement supérieure à la période du réseau de 278 nm.

D'après les auteurs, ce comportement est dû à l'effet du fort confinement des chaînes de polymères pour les grandes longueurs d'onde. A première vue, nos observations semblent être en contradiction avec ces résultats. En effet, nous observons un comportement anisotrope à petite échelle et un comportement isotrope pour les spectres moyennés spatialement, ce qui peut être associé aux longueurs d'onde plus grandes que la période du réseau. Toutefois, dans les expériences de Alvine [48], la largeur du faisceau est environ 100 fois plus grande que la

largeur du réseau. Par conséquent, le signal mesuré est sensible aux fluctuations sur plusieurs périodes du substrat et l'analogie avec nos résultats suggère qu'aucune anisotropie n'aurait dû être observée, ce qui est le cas (d'après [48]) pour les longueurs d'onde intermédiaires allant de la période du réseau à la longueur de coupure. De plus, la suppression de la dynamique des fluctuations à grandes longueurs d'onde dans la direction perpendiculaire au réseau dans [48], est attribuée à la combinaison de deux effets : la forme de l'interface à l'équilibre due aux forces de Van der Waals et le confinement du polymère au dessus des bosses où l'épaisseur du liquide est de l'ordre de quelques rayons de giration. Puisque ces deux effets sont absents dans notre cas, il est clair que l'anisotropie des fluctuations à grande longueur d'onde ne doit pas être observée. Par conséquent, nos résultats sont en accord avec ceux de [48].

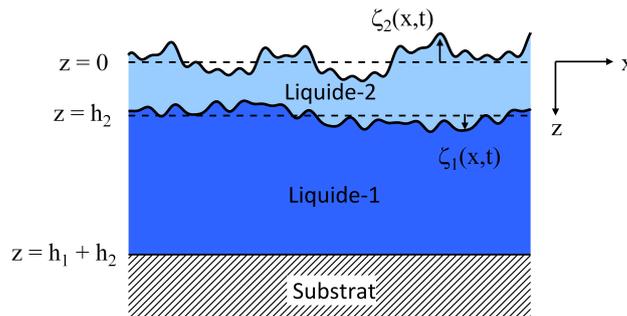
### Conclusion

Lorsque le film liquide se situe sur un substrat avec un relief (périodique), les fluctuations de surface mesurées possèdent des propriétés originales. Tout d'abord, les fluctuations dépendent de la position le long de la période du substrat. On retrouve ainsi la période du substrat à partir des fluctuations à la surface. La mesure des fluctuations pourrait permettre de révéler la forme du substrat sous-jacent. D'autre part, les fluctuations sont localement anisotropes. L'effet du confinement sur les fluctuations diffère en fonction de la direction considérée. De façon surprenante, cette anisotropie disparaît lorsque l'on considère le spectre des fluctuations moyenné spatialement le long d'une période du substrat.

### 2.3 Substrat liquide

Dans ce paragraphe, on s'intéresse aux fluctuations de surface d'un film liquide supporté par un substrat liquide. Cette configuration possède l'avantage de pouvoir former des films minces grâce à l'étalement spontané du polymère sur le substrat liquide. Par ailleurs, cette configuration permet d'obtenir un substrat lisse où les impuretés n'ont pas d'influence sur l'étalement du film. Contrairement à un substrat solide, le film formé ne possède pas de contraintes résiduelles [49]. Ainsi, l'une des motivations était de mesurer les propriétés de films polymère de façon non invasive et à des épaisseurs comparables aux tailles caractéristiques du polymère (comme le rayon de giration  $R_g \leq 10 \text{ nm}$ ). A ces épaisseurs, la température de transition vitreuse est décalée par rapport à celle du polymère en volume. Ainsi, l'ensemble des propriétés des films de polymères sont modifiées lorsqu'ils sont en couche très mince [50, 51]. La mesure des fluctuations de surface doit permettre d'être sensible à ces changements de propriétés et d'améliorer la compréhension de l'effet du confinement. Cependant, nous verrons que l'utilisation d'un substrat liquide n'est pas adaptée pour sonder les propriétés du film à partir de notre mesure des fluctuations.

On considère le cas d'un liquide-2 d'épaisseur  $h_2$  supporté par un liquide-1 d'épaisseur  $h_1$ , tel que  $h_2 \ll h_1$  (figure III.11). Dans cette configuration les deux interfaces air/liquide-2 et liquide-2/liquide-1 peuvent fluctuer pour dissiper l'énergie thermique reçue. Autrement dit, le système possède deux degrés de liberté indépendants. Avec un substrat liquide, les fluctuations de surface ne doivent pas être sensibles à l'effet du confinement de la même façon qu'avec un substrat non fluctuant.



**Figure III.11** – Schéma de deux couches de liquides d'épaisseurs  $h_1$  et  $h_2$  sur un substrat solide ( $h_2 \ll h_1$ ). Les deux interfaces air/liquide-2 et liquide-2/liquide-1 fluctuent.

Pour comprendre l'effet du confinement sur les fluctuations dans cette configuration bi-couche, on souhaite déterminer les relations de dispersion (fréquences propres) du système. Le calcul des relations de dispersion a été réalisé par Henle et Levine [12] et suit la même démarche que pour le cas d'une seule couche. On écrit les équations hydrodynamiques que l'on résout avec les conditions aux limites adéquates. Puis on relie les déformations des inter-

## III.2 Les différents types de confinements

---

faces aux contraintes extérieures imposées pour en déduire la susceptibilité du système. Les relations de dispersion correspondent aux fréquences pour lesquelles il existe une déformation non nulle en l'absence de contrainte imposée. Puisque le système possède deux degrés de liberté indépendants, il existe deux relations de dispersion.

Notons que les fluctuations de hauteur des deux interfaces 1 et 2 sont fortement couplées, les déformations  $\zeta_1$  et  $\zeta_2$  associées à ces interfaces ne correspondent pas aux variables dynamiques orthogonales du problème. Les déformations des modes propres sont désignées par  $\zeta_+$  et  $\zeta_-$  et correspondent chacune à une combinaison linéaire des déformations  $\zeta_1$  et  $\zeta_2$ . Les relations de dispersion associées à ces modes propres sont notées  $\omega_n^\pm(k)$ . Les fréquences  $\omega_n^\pm(k)$ , dont le calcul est effectué par [12], dépendent des viscosités  $\eta_1$ ,  $\eta_2$ , des épaisseurs  $h_1$ ,  $h_2$ , et des tensions de surface  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  associées aux interfaces liquide-2/liquide-1 et air/liquide-2.

Dans notre cas, on s'intéresse à la configuration bicouche où le liquide-2 est confiné ( $kh_2 \ll 1$ ) et où le liquide-1 ne l'est pas ( $kh_1 \ll 1$ ). Dans ce cas, on peut effectuer un développement asymptotique des fréquences propres  $\omega_n^\pm(k)$  déterminées par Henle et Levine [12] :

$$\omega_n^+ = i(\gamma_1 + \gamma_2) \frac{k}{2\eta_1} \quad (\text{III.14})$$

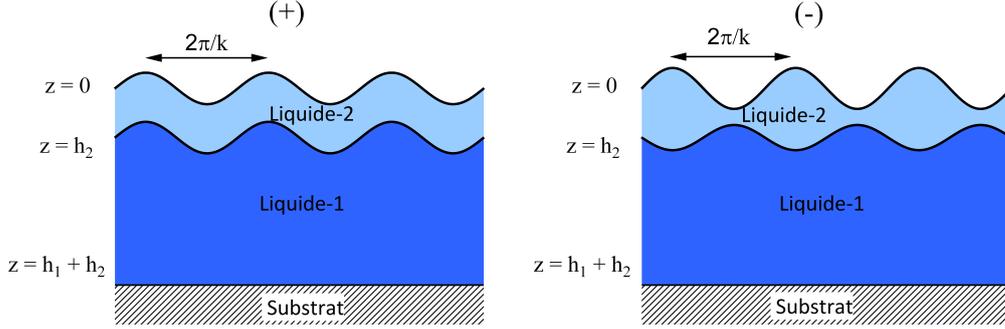
$$\omega_n^- = i \frac{\gamma_1 \gamma_2}{\gamma_1 + \gamma_2} \frac{k^3 h_2^2}{2\eta_1} \quad (\text{III.15})$$

D'après l'expression (III.14), le mode noté + correspond aux fluctuations d'une seule couche, non confinée, dont la viscosité est égale au liquide-1 et dont la tension de surface est égale à la somme des tensions interfaciales  $\gamma_1$  et  $\gamma_2$ . Pour ce mode, les ondulations des deux surfaces sont en phase (figure III.12-a). Lors d'une telle déformation, le liquide dans le film se déplace verticalement mais n'est pas cisailé, on a  $\zeta_1 = \zeta_2$ . La relaxation de ce mode de déformation est donc insensible à l'effet du confinement. Ce mode symétrique domine la relaxation des fluctuations aux hautes fréquences.

A l'inverse, le mode noté - correspond aux ondulations des surfaces en opposition de phase (figure III.12-a). Lors d'une telle déformation, le liquide dans le film est cisailé. Le confinement du liquide-2 amplifie les effets visqueux et explique la dépendance de la fréquence propre associée à ce mode (III.15) avec l'épaisseur  $h_2$  du film. Cette dépendance avec l'épaisseur en  $\omega_n^- \propto h_2^2$  est cependant plus faible que celle obtenue dans le cas d'une seule couche confinée en  $\omega_n^- \propto h^3$ . Ce mode en opposition de phase domine la relaxation des fluctuations aux basses fréquences ( $\omega_n^- \ll \omega_n^+$ ).

**Remarque :**

Notons que dans cette limite ( $kh_2 \ll 1$  et  $kh_1 \gg 1$ ), les fréquences propres  $\omega_n^+$  et  $\omega_n^-$  sont indépendantes de la viscosité du film  $\eta_2$ . On comprend que la mesure des fluctuations ne permet pas de mesurer les propriétés de films minces lorsque ceux-ci sont supportés par un liquide.



**Figure III.12** – Schémas des deux modes propres du système bicouche dans la limite où  $kh_2 \ll 1$  et  $kh_1 \gg 1$ . Pour le mode noté +, les déformations sont en phase, ce mode domine la relaxation à haute fréquence. Pour le mode noté –, les déformations sont en opposition de phase, ce mode domine la relaxation à basse fréquence.

On cherche les fonctions d'auto-corrélations de hauteur des deux interfaces, notées  $G_j(k, t)$  où  $j = 1, 2$  désigne l'interface considérée. Puisque le système possède deux degrés de liberté indépendants, les fonctions s'écrivent sous la forme d'une double décroissance exponentielle. D'après la décomposition en modes propres<sup>1</sup>, on a :

$$G_j(k, t) = k_B T \left( A_j^- e^{i\omega_n^- t} A_j^+ e^{i\omega_n^+ t} \right) \quad (\text{III.16})$$

Dans le cas général, les coefficients  $A_k^-$  et  $A_k^+$  dépendent des viscosités ( $\eta_1, \eta_2$ ), des tensions interfaciales ( $\gamma_1, \gamma_2$ ), des épaisseurs ( $h_1, h_2$ ) et du vecteur d'onde  $k$ . Dans le cas où l'on confine uniquement le liquide-2, c'est-à-dire pour  $kh_2 \ll 1$  et  $kh_1 \gg 1$ , les coefficients s'écrivent :

$$A_1^+ = A_2^+ = \frac{1}{k^2} \frac{1}{\gamma_1 + \gamma_2} \quad (\text{III.17})$$

$$A_1^- = \frac{1}{k^2} \frac{\gamma_2}{\gamma_1 (\gamma_1 + \gamma_2)} \quad (\text{III.18})$$

$$A_2^- = \frac{1}{k^2} \frac{\gamma_1}{\gamma_2 (\gamma_1 + \gamma_2)} \quad (\text{III.19})$$

Les coefficients du mode + sont égaux. Pour ce mode, l'amplitude des fluctuations de hauteur

1. La détermination des fonctions de corrélations  $G_j(k, t)$  utilise le théorème fluctuation-dissipation. Or ce théorème s'applique aux variables dynamiques orthogonales d'un système à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire les variables  $\zeta_+$  et  $\zeta_-$ . La décomposition en modes propres + et - est donc nécessaire pour évaluer les fonctions de corrélation  $G_j(k, t)$ .

## III.2 Les différents types de confinements

des 2 interfaces est identique. Ce résultat est cohérent avec l'expression (III.14) de la fréquence propre associée  $\omega_n^+$ . En effet, puisque la déformation imposée à chacune des deux interfaces est identique, l'interface équivalente (aux deux interfaces) possède une raideur qui correspond à l'association en parallèle des raideurs des deux interfaces. La tension de surface  $\gamma_{eq}$  de l'interface équivalente est donc égale à la somme des tensions de surface :  $\gamma_{eq} = \gamma_1 + \gamma_2$ .

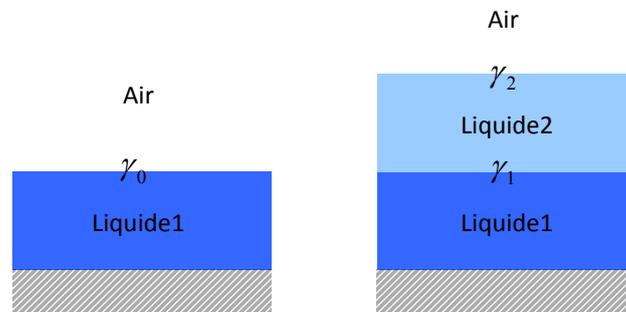
Le rapport des coefficients du mode - s'écrit :  $A_1^-/A_2^- = (\gamma_2/\gamma_1)^2$ . Or le coefficient  $A_j^-$  fixe l'amplitude quadratique moyenne du déplacement de l'interface  $j$  (suivant ce mode propre au vecteur d'onde  $k$ ),  $\langle h_j^-(k)^2 \rangle_t \sim A_k^-$ . Lors d'une déformation suivant le mode en opposition de phase, les contraintes normales exercées sur les 2 interfaces, de la forme  $\gamma_j h_j k^2$ , sont donc égales. L'interface équivalente possède une raideur qui correspond à l'association en série des raideurs des deux interfaces. La tension de surface  $\gamma_{eq}$  de l'interface équivalente est liée à  $\gamma_1, \gamma_2$  telle que :  $\gamma_{eq}^{-1} = \gamma_1^{-1} + \gamma_2^{-1}$ . On retrouve la tension de surface équivalente de l'expression (III.15) :  $\gamma_{eq} = \gamma_1 \gamma_2 / (\gamma_1 + \gamma_2)$ .

### Matériel

On souhaite mesurer les fluctuations de surface dans la configuration bicouche étudiée précédemment, où le liquide-2 est confiné ( $kh_2 \ll 1$ ) et repose sur le liquide-1, dont l'épaisseur peut être considérée infinie ( $kh_1 \gg 1$ ). Pour être sensible à l'effet du confinement, nous avons vu qu'il faut mesurer les fluctuations sur des films dont l'épaisseur est comparable ou inférieure à la largeur  $R$  du faisceau laser. En pratique  $R = 28 \mu\text{m}$ , on doit donc créer des films d'épaisseur micrométrique. Pour cela, on choisit un couple liquide-1/liquide-2 tel que le paramètre d'étalement  $S$  :

$$S = \gamma_0 - (\gamma_1 + \gamma_2) \quad (\text{III.20})$$

soit positif.  $\gamma_0, \gamma_1, \gamma_2$  désignent respectivement les tensions superficielles aux interfaces liquide-1/air, liquide-2/liquide1 et liquide-2/air (figure III.13). Le paramètre d'étalement



**Figure III.13** – Définition des tensions interfaciales  $\gamma_0, \gamma_1$  et  $\gamma_2$  permettant de calculer le paramètre d'étalement  $S$ .

compare l'énergie de l'interface liquide-1/air recouverte ou non par le film liquide-2. Lorsque  $S > 0$ , l'énergie du système diminue en remplaçant l'interface liquide-1/air par les deux interfaces liquide-2/air et liquide-2/liquide-1 : le mouillage est favorisé<sup>2</sup>. Le liquide-1 est un mélange glycérol/eau (97% glycérol) et le liquide-2 est une huile silicone. Les tensions de surface de ces deux liquides sont respectivement  $\gamma_0=64.5$  mN/m et  $\gamma_2=21.1$  mN/m. La tension interfaciale entre le mélange glycérol/eau et l'huile silicone, d'après [52], est  $\gamma_1=28.9$  mN/m. On a donc  $S = 15.5$  mN/m  $> 0$ . Ce couple liquide-1/liquide-2 a l'avantage d'être non miscible. Par ailleurs, les viscosités des deux liquides sont  $\eta_1=0.6$  Pa.s,  $\eta_2=1$  Pa.s, et le liquide-1 est plus dense que le liquide-2. Lorsque l'on dépose une goutte (du liquide-2) sur le substrat (liquide-1), la goutte s'étale pour former un film mince. Lorsque le film se stabilise on mesure le spectre des fluctuations.

#### Mesure de l'épaisseur du film

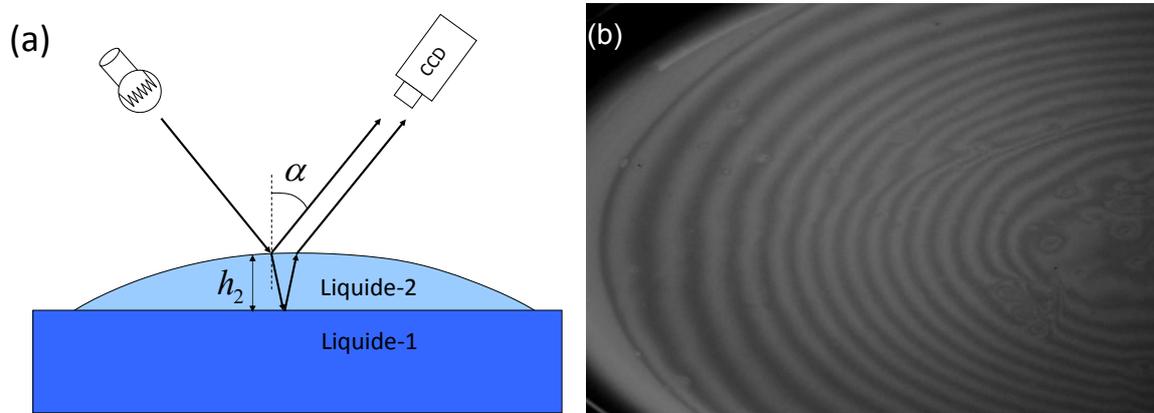
En parallèle à la mesure des fluctuations de surface, on souhaite connaître indépendamment l'épaisseur  $h_2$  du film d'huile. Pour cela, le film est éclairé en lumière blanche et filmé à l'aide d'une caméra inclinée d'un angle  $\alpha$  par rapport à la normale (figure III.14-a). On observe une figure d'interférence due aux réflexions sur les interfaces du film (figure III.14-b). Chaque frange d'une même couleur correspond à une ligne d'égale épaisseur. La variation d'épaisseur entre deux franges est égale à :  $\lambda/2n \cos(\alpha/n)$ . Où  $n$  est l'indice optique du film liquide-2 et  $\lambda$  est la longueur d'onde de la lumière qui éclaire le film. En comptant le nombre de franges à partir du bord du film, on détermine l'épaisseur du film  $h_2$  à l'endroit où l'on mesure les fluctuations de surface.

#### Spectres mesurés

Sur la figure III.15, on représente les spectres des fluctuations mesurées sur le substrat (liquide-1) sans film et lorsqu'il existe un film (liquide-2) dont l'épaisseur  $h_2$  est très grande devant la largeur du faisceau. On vérifie que les deux spectres obtenus coïncident avec les spectres théoriques calculés respectivement pour un milieu semi-infini de tension de surface et de viscosité  $(\gamma_0, \eta_1)$  et avec  $(\gamma_2, \eta_2)$ . Les deux spectres ont une forme lorentzienne. On rappelle qu'il s'agit de la forme caractéristique des fluctuations dans le régime sur-amorti. Aux hautes fréquences, le spectre est de la forme  $S(\omega) \propto 1/\eta R \omega^2$ , la faible différence entre les deux spectres provient de la différence entre les viscosités des deux milieux. Aux basses fréquences, le spectre est de la forme  $S(\omega) \propto \eta R / \gamma^2$ , la différence de hauteur du plateau entre

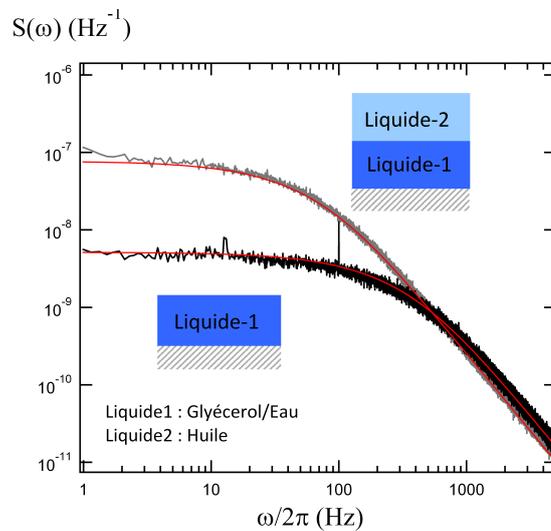
---

2. Nous supposons ici que l'épaisseur du film (liquide-2) est suffisamment grande par rapport à la portée des forces entre molécules pour que l'on puisse négliger l'interaction entre les deux interfaces. Dans notre cas, les épaisseurs des films formés sont supérieures au micromètre, cette condition est donc vérifiée.



**Figure III.14** – (a) : Mesure dynamique de l'épaisseur locale du film  $h_2$ . (b) : Figure d'interférence obtenue pour un film d'huile silicone qui s'étale sur un mélange glycérol/eau. En comptant le nombre de franges entre l'endroit pointé par le faisceau laser et le bord du film, on détermine l'épaisseur du film sur lequel les fluctuations sont mesurées.

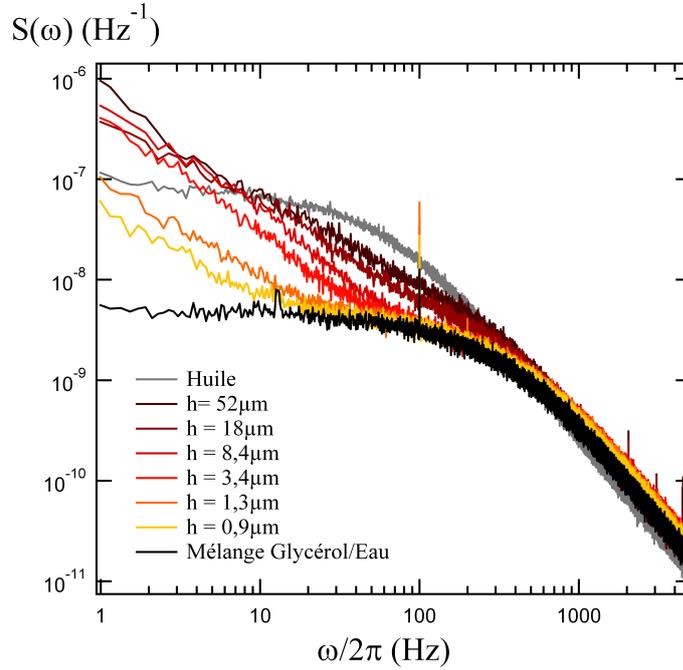
les deux spectres provient de la grande différence entre les tensions interfaciales ( $\gamma_0, \gamma_2$ ) des deux liquides avec l'air.



**Figure III.15** – Spectre de fluctuation mesurés sur le substrat liquide-1 (en noir) et sur le film liquide-2 en couche épaisse  $h_2 \gg R$  (en gris). On affiche également (en trait rouge) les spectres calculés pour une couche d'épaisseur infinie de viscosité et de tension de surface :  $(\eta_1, \gamma_0)$  et  $(\eta_2, \gamma_2)$ .

Lorsque l'épaisseur  $h_2$  du film est comparable ou inférieure à la largeur  $R$  du faisceau, les spectres deviennent sensibles à l'effet du confinement. Les spectres mesurés sont représentés sur la figure III.16. D'après les figures d'interférences filmées, les épaisseurs des films varient entre 0.9 et 52 micromètres. L'effet du confinement est observable essentiellement aux basses fréquences. Ceci est cohérent avec les expressions des fréquences propres calculées (III.14),

(III.15). Aux hautes fréquences, les fluctuations relaxent suivant le mode en phase, or la fréquence associée à ce mode,  $\omega_n^+$ , ne dépend pas de  $h_2$ . Aux basses fréquences, les fluctuations relaxent suivant le mode en opposition de phase, or  $\omega_n^-$  dépend fortement de  $h_2$ . Lorsque l'épaisseur du film diminue, la dynamique du mode asymétrique est décalée de plus en plus vers les basses fréquences. Le spectre semble tendre vers celui mesuré sur le substrat liquide-1 (en noir). En réalité, lorsque  $kh_2 \ll 1$  (d'après les expressions  $A_j^+$  et  $\omega_n^+(k)$ ) le spectre tend vers celui que l'on aurait mesuré pour une milieu d'épaisseur infinie de viscosité  $\eta_1$  et de tension de surface  $\gamma_1 + \gamma_2$ .

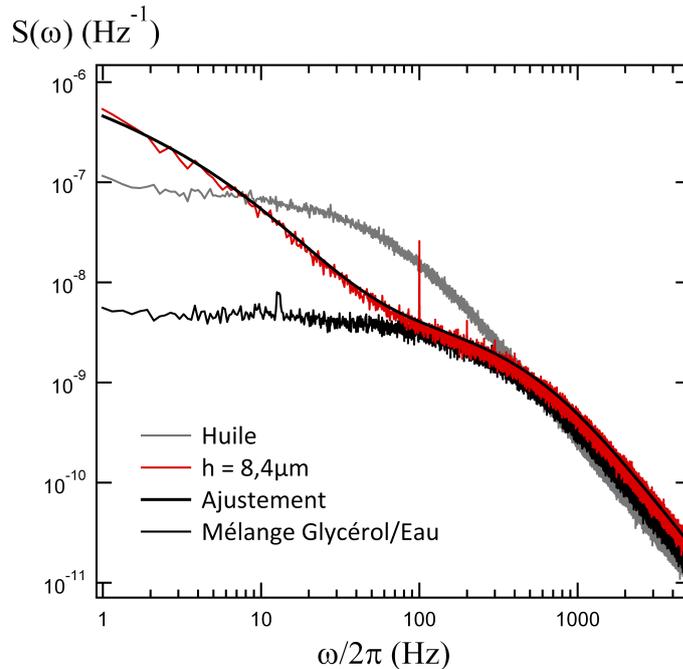


**Figure III.16** – Spectres de fluctuation mesurés sur la configuration bicouche lorsque l'épaisseur  $h_2$  du film est comparable et inférieure à la taille du faisceau,  $R = 28 \mu\text{m}$ . Pour comparaison, on affiche les spectres (de la figure III.15) mesurés sur le substrat glycérol/eau sans film (en noir) et avec un film d'huile dont l'épaisseur  $h_2$  est très grande devant  $R$  (en gris). L'effet du confinement modifie le spectre essentiellement aux basses fréquences et correspond à la diminution de la fréquence caractéristique du mode asymétrique  $\omega_n^-(k = 1/R)$  avec l'épaisseur  $h_2$ .

Pour vérifier plus précisément la théorie donnée précédemment, on souhaite comparer les spectres expérimentaux à une expression théorique. Compte tenu des indices optiques des liquides ( $n_{liq-2} = 1.40$ ,  $n_{liq-1} = 1.47$ ), la réflexion du laser à l'interface 2 est beaucoup plus importante que celle à l'interface 1. Le signal mesuré est donc principalement sensible aux fluctuations de l'interface 2. Ainsi, le spectre mesuré peut être décrit d'après l'expression suivante :

$$S(\omega) = \int_0^\infty P_{22}(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{III.21})$$

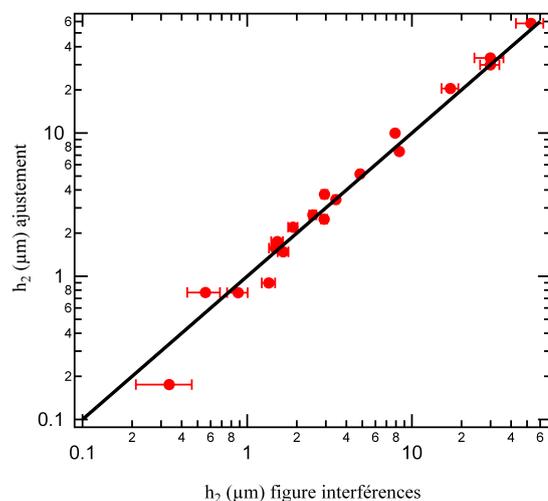
où  $P_{22}(k, \omega)$  est la densité spectrale de hauteur de l'interface 2 (air/film). On obtient  $P_{22}(k, \omega)$  en calculant la transformée de Fourier temporelle de la fonction d'auto-corrélation  $G_2(k, t)$  définie par (III.16). Tous les paramètres de l'expression  $P_{22}(k, \omega)$  sont connus à l'exception de l'épaisseur  $h_2$  du film. On ajuste les spectres expérimentaux en laissant libre uniquement le paramètre  $h_2$ . Sur la figure III.17, on représente le spectre expérimental (en rouge) pour une épaisseur de  $8.4 \mu\text{m}$  et l'ajustement obtenu (en trait noir). Les variations du spectre sont très bien décrites par l'ajustement. Quelle que soit l'épaisseur du film, l'ajustement obtenu se superpose correctement au spectre expérimental. Sur la figure III.18, on compare les épaisseurs de film déduites des ajustements des spectres aux épaisseurs mesurées indépendamment grâce aux figures d'interférences. L'accord entre les deux épaisseurs est convenable et montre que la théorie précédente est valable et décrit bien les fluctuations de surface dans la configuration bicouche.



**Figure III.17** – Ajustement du spectre de fluctuation d'un film liquide sur un substrat liquide. On ajuste le spectre expérimental (rouge) en laissant libre l'épaisseur  $h_2$  et en fixant les autres paramètres aux valeurs suivantes :  $\eta_2 = 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ,  $\eta_1 = 0.6 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ,  $\gamma_1 = 28.9 \text{ mN/m}$ ,  $\gamma_2 = 21.1 \text{ mN/m}$ . Le meilleur ajustement (affiché en trait noir) est obtenu pour  $h_2 = 7.4 \mu\text{m}$ . D'après la figure d'interférence, l'épaisseur du film est  $h_2 = 8.4 \mu\text{m}$ .

### Conclusion

Lorsque le film liquide est supporté par un substrat liquide, nous avons vu qu'il existe deux modes propres de déformation. D'après les fréquences associées à ces modes propres, le



**Figure III.18** – Epaisseurs de film déduites des ajustements des spectres de fluctuations en fonction de l'épaisseur mesurées indépendamment grâce aux figures d'interférences. Les barres d'erreur verticales sont trop petites pour être visibles. La ligne noire continue correspond à  $h_{2 \text{ ajustement}} = h_{2 \text{ figure interférences}}$ .

confinement affecte seulement l'un des deux modes, pour lequel les fluctuations de hauteurs des deux interfaces sont en opposition de phase. Les mesures effectuées confirment cette description : le confinement modifie l'amplitude du spectre uniquement aux basses fréquences. Ainsi, lorsque l'épaisseur du film devient très faible, le spectre de fluctuation (dans la bande de fréquence accessible) n'est plus sensible à l'effet du confinement. De plus les fréquences associées à ces deux modes sont indépendantes de la viscosité du film. Lorsque l'épaisseur du film est très faible, la dynamique des fluctuations de surface est contrôlée par la viscosité du substrat liquide. Ainsi, il n'est pas possible de mesurer les propriétés de films ultraminces de polymère (à partir des fluctuations) lorsque le film flotte sur un substrat liquide.

Dans la suite de cette thèse, on se concentre sur la configuration où le film est déposé sur un substrat solide plan. Comme on le verra dans la partie suivante, lorsque l'épaisseur des films est inférieure au micromètre, il est nécessaire d'adapter le montage.

### 3 Mesure des fluctuations de films minces

Dans cette partie, nous allons voir comment modifier le montage présenté au chapitre I pour mesurer les fluctuations de films à des épaisseurs inférieures au micromètre. L'objectif est de pouvoir mesurer les fluctuations sur des films suffisamment minces pour que les spectres mesurés soient sensibles à un éventuel glissement à l'interface liquide/substrat.

#### 3.1 Modifications du montage expérimental

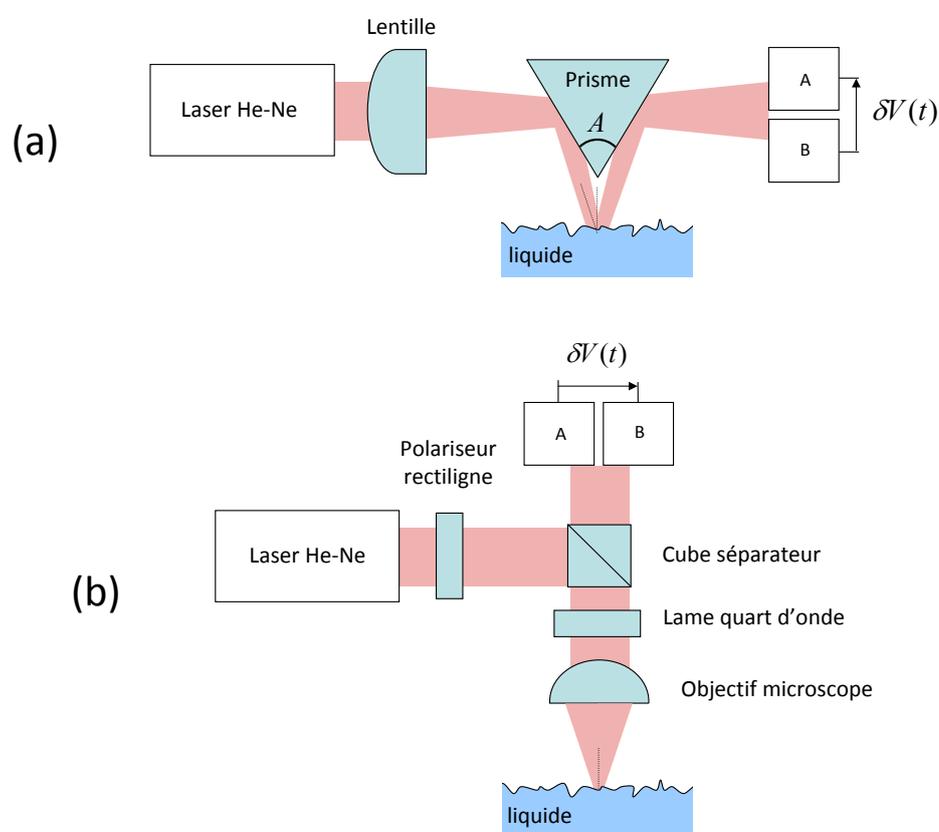
Lorsque l'épaisseur du film sondé devient très faible devant la largeur du faisceau,  $h \ll R$ , le temps de relaxation associé au mode  $k = 1/R$  devient si grand que les fluctuations du signal mesuré, à fréquence fixée, risquent de devenir trop faibles pour être détectées. En effet, lorsque  $h \ll R$ , l'amplitude du spectre mesuré décroît très rapidement avec l'épaisseur :

$$S(\omega) \propto \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{h^3}{\eta \omega^2 R^4} \quad (\text{III.22})$$

Par exemple, au paragraphe 2.1, les fluctuations de surface pour des films d'huile micrométriques déposés sur un wafer de silicium ont pu être mesurées grâce au montage présenté au chapitre I. D'après la figure III.3, on remarque que l'amplitude du spectre pour un film de  $5.3 \mu\text{m}$  d'épaisseur est déjà très faible, le spectre des fluctuations est uniquement accessible à des fréquences inférieures à 500 Hz. Au-delà de cette fréquence, les fluctuations du signal mesuré sont trop faibles pour être détectées. Compte tenu de la dépendance du spectre avec l'épaisseur en  $S(\omega) \sim h^3$ , ce montage ne permet pas de mesurer les fluctuations sur des films dont l'épaisseur est beaucoup plus faible que quelques micromètres.

L'un des enjeux consiste donc à pouvoir mesurer un signal  $\delta V$  dont l'amplitude des fluctuations est suffisamment grande dans le cas de films minces. Pour augmenter l'amplitude du signal mesuré, on peut augmenter l'intensité du faisceau laser utilisé. En effet, le seuil à partir duquel les fluctuations peuvent être détectées est inversement proportionnel à l'intensité reçue par la photodiode. Cependant, il n'est pas possible de trop augmenter l'intensité du laser sans risquer de générer des effets non linéaires par l'interaction entre le faisceau et le film (ou le substrat). En pratique, l'augmentation de l'intensité du laser doit donc rester limitée. Pour éviter de trop affaiblir l'amplitude du signal lorsque l'épaisseur diminue, il est plutôt favorable de diminuer la taille du faisceau laser. De cette manière, le signal mesuré est sensible à des fluctuations de surface dont la longueur d'onde est plus faible, ainsi l'effet du confinement sur les fluctuations mesurées survient à des épaisseurs plus faibles. Pour diminuer la largeur  $R$  du faisceau, il suffit d'augmenter la focalisation du faisceau, en remplaçant la lentille convergente par un objectif de microscope. Ce remplacement induit une diminution importante de la distance de travail et nécessite de renvoyer le faisceau réfléchi

à travers l'objectif. Le faisceau réfléchi emprunte alors le même chemin que le faisceau incident et nécessite d'apporter quelques modifications au montage optique. Afin de détecter la réflexion du faisceau, on remplace le prisme par un cube séparateur. Par ailleurs, on ajoute un polariseur rectiligne et une lame quart d'onde afin d'éviter le retour du faisceau réfléchi dans le laser. En effet, après la deuxième traversée de la lame quart d'onde, la lumière est polarisée rectilignement, à  $90^\circ$  de la direction de polarisation du polariseur, ainsi la lumière ne peut pas être renvoyée dans la cavité laser. Le montage utilisé précédemment et la version adaptée aux films minces sont schématisés sur la figure III.19.



**Figure III.19** – (a) : Schéma du montage optique présenté au chapitre I et utilisé jusqu'à présent, notamment pour mesurer les fluctuations de films minces. Le faisceau laser est focalisé grâce à une lentille. (b) : Schéma du montage optique adapté à la mesure des fluctuations de films minces. Afin de diminuer la largeur du faisceau, on remplace la lentille par un objectif. Ce remplacement nécessite l'utilisation d'un cube séparateur. Afin d'éviter le retour du faisceau réfléchi dans le laser, on joue sur l'état de polarisation de la lumière. Notons que l'utilisation du cube séparateur divise (au minimum) d'un facteur 4 l'intensité reçue par la photodiode.

Contrairement au montage précédent schématisé figure III.19-a, dorénavant le faisceau laser est en incidence normale à la surface libre. On vérifie que l'angle d'incidence du faisceau n'influence pas la sensibilité du montage. En effet, en utilisant une lentille de même focale

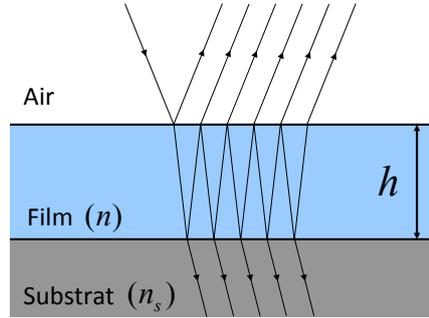
dans les deux montages, les spectres de fluctuations mesurés dans les deux cas sont strictement identiques. Par ailleurs, comme pour le montage précédent, on vérifie que la distance à laquelle on place les quadrants de la photodiode n'influence pas le spectre mesuré. Lorsque l'interface se situe au col du faisceau, le spectre mesuré dépend seulement de la largeur  $R$  du faisceau. Grâce au nouveau montage, on arrive à réduire la taille du faisceau jusqu'à  $R = 1.4 \mu\text{m}$  (en utilisant un objectif x50).

Au paragraphe 2.1, les fluctuations de surface de films d'huile ont été mesurées en utilisant la face non polie d'un wafer de silicium comme substrat. La grande rugosité de la face non polie du wafer de silicium (1 - 2  $\mu\text{m}$ ) permet de diffuser le faisceau incident et évite d'avoir à tenir compte de la réflexion du faisceau laser à l'interface liquide/substrat. Ainsi le signal mesuré dépend uniquement de la réflexion sur la surface libre du film. Le spectre mesuré est donc directement exploitable mais la rugosité du substrat nous impose d'étudier des films dont l'épaisseur est supérieure au micromètre. Par ailleurs, pour comparer les spectres mesurés aux spectres prédits théoriquement, il est nécessaire de connaître l'épaisseur du film sondé. Or, les interférences créées entre les réflexions sur les deux interfaces, air/film et film/substrat, constituent une source d'information utile sur l'épaisseur du film sondé. C'est d'ailleurs grâce aux interférences que les épaisseurs des films (sondés au paragraphe 2.1) ont pu être mesurées avec le profilomètre. Pour mesurer les fluctuations sur des films de plus en plus minces et connaître précisément l'épaisseur des films sondés, il est donc judicieux d'utiliser un substrat lisse et réfléchissant. Dans le paragraphe suivant, nous allons voir comment mettre à profit les interférences.

### 3.2 Mesure de la variation d'épaisseur

Lorsque le substrat du film n'est plus rugueux mais lisse et réfléchissant, le faisceau laser peut être réfléchi aux deux interfaces : air/film et film/substrat (figure III.20). Notons que le faisceau peut être successivement réfléchi par ces deux interfaces en effectuant de multiples aller-retours dans le film (figure III.20). L'intensité du faisceau réfléchi envoyé vers la photodiode, résulte de l'interférence des réflexions multiples. La configuration est semblable à celle d'un interféromètre de Fabry-Pérot [53]. On note  $n$  l'indice du film,  $n_s$  l'indice du substrat,  $h$  l'épaisseur du film,  $\lambda$  la longueur d'onde de la lumière dans le vide et  $\phi$  le déphasage introduit par le film entre deux rayons consécutifs. En incidence normale, le déphasage s'écrit :  $\phi = 4\pi nh/\lambda$ . L'intensité  $I_r$  de l'onde réfléchie s'obtient en sommant les amplitudes lumineuses complexes d'une multitude d'ondes réfléchies dont les phases diffèrent de  $\phi$ . On obtient :

$$I_r = \frac{r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \phi}{1 + r_1^2r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \phi} I_0 \quad (\text{III.23})$$



**Figure III.20** – Réflexions multiples sur un film d'indice  $n$  et d'épaisseur  $h$  déposé sur un substrat solide d'indice optique différent.

où  $I_0$  est l'intensité de l'onde incidente et  $r_1, r_2$ , sont les coefficients de réflexion aux interfaces air/film et film/substrat :

$$r_1 = \frac{1 - n}{1 + n} \quad (\text{III.24})$$

$$r_2 = \frac{n - n_s}{n + n_s} \quad (\text{III.25})$$

Ainsi l'intensité réfléchie n'est pas constante mais dépend de l'épaisseur  $h$  du film. En comparaison, lorsqu'il n'y a pas de réflexion à l'interface liquide/substrat ( $r_2 = 0$ ), l'intensité totale est indépendante de l'épaisseur :  $I_r = r_1^2 I_0$ . En pratique, pour un film d'huile silicone et pour un substrat en verre, on a  $n = 1.40$ ,  $n_s = 1.55$ . Dans ce cas, les coefficients de réflexion  $r_1$  et  $r_2$  sont faibles (devant l'unité). D'après (III.23), l'intensité réfléchie devient :

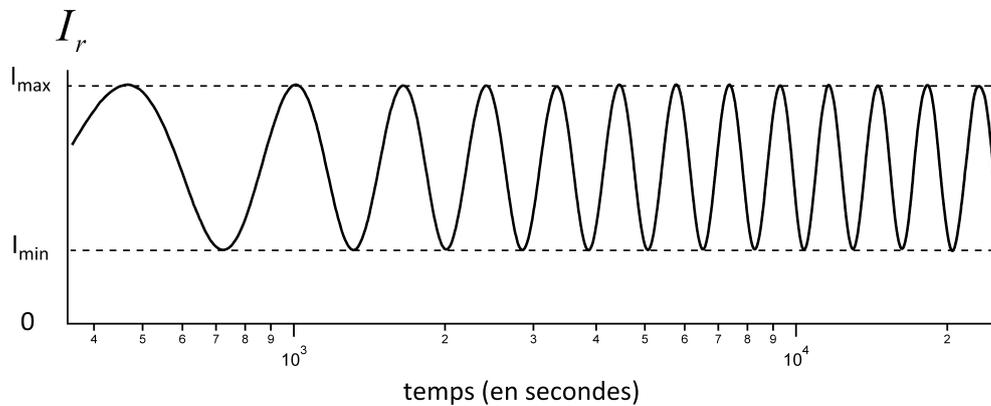
$$I_r \cong (r_1^2 + r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos \phi) I_0 \quad (\text{III.26})$$

Avec cette expression, on prend seulement en compte la réflexion sur la surface libre et la première réflexion sur le substrat, les réflexions multiples sont négligées. Dans ce cas, l'intensité réfléchie est sinusoïdale en fonction de l'épaisseur.

Lorsque l'on pose une goutte d'huile silicone sur un substrat en verre, la goutte s'étale pour former un film de plus en plus mince. En plaçant cet échantillon dans le montage optique présenté précédemment (figure III.19-b) et en mesurant l'intensité totale réfléchie au cours du temps, on obtient typiquement le signal oscillant représenté figure III.21. L'intensité réfléchie est mesurée en enregistrant  $V_A + V_B$ , la somme des tensions délivrées par les quadrants de la photodiode. Les oscillations du signal, dues aux interférences, correspondent à la diminution de l'épaisseur du film au cours du temps. La taille du faisceau laser éclairant le film est  $R = 3.5 \mu\text{m}$ . Or, l'intensité réfléchie est uniquement sensible aux variations d'épaisseurs dans

### III.3 Mesure des fluctuations de films minces

la région éclairée par le faisceau. L'épaisseur du film, vue par le signal, peut donc être considérée uniforme. La variation d'épaisseur entre deux points du signal consécutifs à la même phase  $\phi$  correspond à l'interfrange  $\lambda/2n$ . La longueur d'onde du laser est  $\lambda = 632.8$  nm. Pour l'huile silicone,  $n = 1.40$ , on a donc  $\lambda/2n = 226$  nm. La grande cohérence spatiale du laser permet d'obtenir un facteur de visibilité,  $\nu = (I_{max} - I_{min})/(I_{max} + I_{min})$ , indépendant de l'épaisseur du film. En effet, on vérifie qu'il n'existe aucun battement sur le signal affiché figure III.21. En utilisant l'expression (III.26), on retrouve le facteur de visibilité du signal expérimental, soit  $\nu = 0.54$ . Notons que pour calculer le facteur de visibilité, il est nécessaire de connaître l'indice du substrat  $n_s$ . Pour le verre utilisé,  $n_s = 1.53$ .



**Figure III.21** – Intensité d'un faisceau laser réfléchi par un film d'huile silicone ( $n = 1.40$ ) s'étalant sur un substrat en verre ( $n_s = 1.53$ ). La largeur du faisceau laser éclairant le film est  $R = 3.5 \mu\text{m}$ . L'intensité réfléchie est mesurée en relevant la somme des tensions délivrées par les quadrants de la photodiode (figure III.19-b). D'après le rythme des oscillations du signal, l'épaisseur du film varie de plus en plus lentement. Une échelle logarithmique est utilisée sur l'axe des temps.

On rappelle que les oscillations de l'intensité réfléchie sont dues aux interférences entre les réflexions du faisceau laser aux deux interfaces du film. La différence de chemin optique, à l'origine des interférences, est donc produite à l'intérieur du film liquide. Autrement dit, l'état d'interférence n'est pas sensible à l'indice optique de l'air ou aux vibrations mécaniques d'un des éléments du montage. Le signal mesuré est uniquement sensible à l'épaisseur locale du film et à son indice optique. C'est la raison pour laquelle le signal mesuré est extrêmement peu bruité.

#### Conclusion

Lorsque la surface du substrat est réfléchissante, l'intensité du faisceau réfléchi résulte des interférences des multiples réflexions dans le film. La mesure de l'intensité réfléchie au cours du temps permet donc de suivre facilement l'évolution de l'épaisseur du film. Cette mesure

a l'avantage de nous renseigner sur l'épaisseur du film uniquement dans la région d'intérêt, c'est-à-dire à l'endroit où les fluctuations sont mesurées. On possède donc un moyen de suivre l'évolution de l'épaisseur du film sur lequel les fluctuations sont mesurées. Notons que cette technique ne permet pas de connaître l'épaisseur absolue.

Dans le paragraphe suivant, nous allons voir que le faisceau réfléchi à l'interface film/substrat n'est pas sensible aux fluctuations de surface de la même façon que celui réfléchi à la surface libre. Ainsi le spectre mesuré, en détectant la différence de tension, doit être recalculé en tenant compte des réflexions aux deux interfaces et de leurs interférences.

### 3.3 Sensibilité aux fluctuations avec interférences

A partir d'un raisonnement d'optique géométrique, on peut se convaincre que les sensibilités aux fluctuations de surface des faisceaux réfléchis à la surface libre du film et sur le substrat ne sont pas égales. Sur la figure III.22, on schématise un film d'indice  $n$ , sur un substrat d'indice  $n_s$ , dont la surface libre effectue un angle  $\alpha$  avec l'horizontale. Un rayon lumineux vertical est envoyé sur le film. Le rayon 0, qui est directement réfléchi à la surface libre du film, est dévié d'un angle  $2\alpha$ . Le rayon 1, qui effectue un aller-retour dans le film, est dévié d'un angle  $-2(n-1)\alpha$ . Celui qui effectue  $j$  allers-retours dans le film est dévié d'un angle  $-2(jn-1)\alpha$ . Notons que les rayons qui effectuent des allers-retours dans le film sont déviés dans une direction opposée à celle du rayon directement réfléchi à la surface libre. Et la déviation de ces rayons dépend de l'indice optique du film  $n$ . Autrement dit, dans le cas où il existe une réflexion sur le substrat, le spectre de fluctuations mesuré doit dépendre de l'indice optique  $n$ .

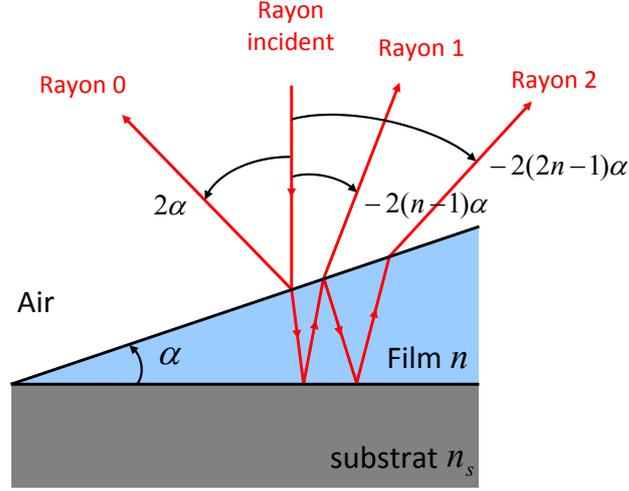
Pour prendre en compte correctement les sensibilités des différents rayons réfléchis, il est nécessaire de reprendre le calcul du spectre, effectué au paragraphe 3.3 au chapitre I. Par ailleurs, nous avons vu que l'intensité totale réfléchie  $I_r$ , grâce aux interférences, n'est plus constante mais dépend de l'épaisseur du film  $h$  :

$$I_r \cong \left( r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \phi \right) I_0 \quad \text{avec} \quad \phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2nh \quad (\text{III.27})$$

Sachant que l'interface possède des fluctuations de hauteur  $\zeta(t)$ . L'épaisseur du film peut s'écrire  $h = h_0 + \zeta(t)$  avec  $h_0$  l'épaisseur moyenne du film. En mesurant les fluctuations de l'intensité réfléchie, il est donc possible d'être sensible aux fluctuations de hauteur :

$$\frac{\partial I_r}{\partial t} \propto \sin \phi \frac{\partial \zeta}{\partial t} \quad (\text{III.28})$$

L'introduction des interférences permet de mesurer les fluctuations d'interface simplement en mesurant la somme des intensités reçues par les quadrants de la photodiode,  $I_A + I_B$ . Dans



**Figure III.22** – Schéma illustrant les réflexions d'un rayon sur un film dont la surface libre forme un angle  $\alpha$  avec l'interface film/substrat.

la suite de ce paragraphe, on effectue le calcul des spectres mesurés en détectant  $I_A - I_B$  et  $I_A + I_B$ .

On considère un faisceau laser incident sur un film d'épaisseur  $h$ . Le champ électrique du faisceau incident est de la forme :

$$E_{inc}(r) = E_0 e^{-\frac{r^2}{2R^2}} \quad (\text{III.29})$$

Lorsque le faisceau incident est uniquement réfléchi à la surface libre du film, le champ électrique du faisceau réfléchi s'écrit :

$$E_{réfl}(r, t) = r_1 E_{inc}(r) e^{i\phi_0(\vec{r}, t)} \quad (\text{III.30})$$

où  $r_1$  est le coefficient de réflexion à l'interface air/film :

$$r_1 = \frac{1 - n}{1 + n} \quad (\text{III.31})$$

$\phi_0$  est le déphasage de l'onde diffusée en un point  $\vec{r}(r, \psi)$  de hauteur  $\zeta(\vec{r}, t)$ , c'est-à-dire à la surface libre du film. Au paragraphe 3.3 du chapitre I,  $\phi_0$  a été calculé :

$$\phi_0(\vec{r}, t) = \frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} + 2\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{III.32})$$

L'intensité dans une direction  $(\theta, \phi)$  est donnée par le carré du module du champ électrique total réfléchi, soit :

$$I(\theta, \phi) = \iint d\vec{r} d\vec{r}' E_{réfl}(r, t) E_{réfl}^*(r', t) \quad (\text{III.33})$$

En effectuant un développement limité sur le terme de phase au premier ordre, on obtient :

$$I(\theta, \phi) = r_1^2 E_0^2 \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \left[ 1 + 2i \frac{2\pi}{\lambda} (\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)) \right] \quad (\text{III.34})$$

On calcule les intensités totales  $I_A$  et  $I_B$ , reçues sur chacun des quadrants de la photodiode, en intégrant  $I(\theta, \phi)$  sur les demi-espaces correspondants. La somme et la différence des intensités reçues par les 2 quadrants s'écrivent respectivement :

$$I_A + I_B = r_1^2 I_0 \quad (\text{III.35})$$

$$I_A - I_B = r_1^2 f(t) \quad (\text{III.36})$$

avec  $I_0 = E_0^2 \int d\vec{q} \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} = \pi R^2 E_0^2 \lambda^2$   
 et  $f(t) = 4i \frac{2\pi}{\lambda} E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)]$

La somme est constante au cours du temps tandis que la différence est sensible aux fluctuations d'angle de l'interface, en  $\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)$ , et fluctue au cours du temps. Dans le cas que nous venons de considérer, le faisceau est uniquement réfléchi à la surface libre, le montage est donc uniquement sensible aux fluctuations d'angle. Par ailleurs, notons que la somme  $I_A + I_B$  et la différence  $I_A - I_B$  sont chacune proportionnelles au carré du coefficient de réflexion  $r_1$ , on a  $I_A - I_B \propto I_A + I_B$ . C'est la raison pour laquelle en pratique, on calcule le spectre à partir de la différence des intensités normalisées :

$$S(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{I_A - I_B}{I_A + I_B} \right) \right|^2 \right\rangle \quad (\text{III.37})$$

De cette manière,  $S(\omega)$  ne dépend ni de la puissance du laser, ni de l'indice optique du film. Avec la définition III.37, et en utilisant (III.35) et (III.36), on a montré en annexe B que le spectre se met sous la forme :

$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{III.38})$$

où la fonction d'appareil  $\Phi$  peut être approximée par :

$$\Phi(k) = \frac{1}{\pi^2 \lambda^2} B k^2 R^2 e^{-\frac{k^2 R^2}{c}} \quad (\text{III.39})$$

Avec  $B = 0.979$  et  $c = 1.658$ .

Dans le cas où le faisceau incident est également réfléchi à l'interface film/substrat, le champ électrique total s'écrit comme la somme des champs électriques des différentes réflexions. En pratique, pour un film d'huile silicone sur un substrat en verre, les réflexions

### III.3 Mesure des fluctuations de films minces

---

aux deux interfaces air/film et film/substrat sont faibles. Ainsi, dans la suite du calcul, on considère uniquement la réflexion à la surface libre du film et la première réflexion sur le substrat, correspondant respectivement au rayon 0 et rayon 1 du schéma de la figure III.22. Les réflexions multiples sont négligées. Dans ce cas, le champ électrique total réfléchi s'écrit <sup>3</sup> :

$$E_{r\acute{e}fl}(r, t) = \left( r_1 e^{i\phi_0(\vec{r}, t)} + r_2 e^{i\phi_1(\vec{r}, t)} \right) E_{inc}(r) \quad (\text{III.40})$$

où  $r_2$  est le coefficient de réflexion de l'interface film/substrat :

$$r_2 = \frac{n - n_s}{n + n_s} \quad (\text{III.41})$$

$\phi_1$  est le déphasage de l'onde qui effectue un aller-retour dans le film, on calcule :

$$\phi_1(\vec{r}, t) = \frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} - 2nh - 2(n-1)\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{III.42})$$

On remarque que les préfacteurs 2 et  $-2(n-1)$ , devant  $\zeta(\vec{r}, t)$  dans les expressions des déphasages  $\phi_0$  et  $\phi_1$ , correspondent aux déviations angulaires obtenues précédemment grâce à un raisonnement d'optique géométrique (figure III.22).

En annexe G, on calcule l'intensité dans la direction  $(\theta, \phi)$  en utilisant l'expression (III.40), puis on calcule la somme et la différence des intensités reçues par les deux quadrants :

$$I_A + I_B = \left( r_1^2 + r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos \phi \right) I_0 + (nr_1 r_2 \sin \phi) g(t) \quad (\text{III.43})$$

$$I_A - I_B = \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1 r_2 \cos \phi \right) f(t) \quad (\text{III.44})$$

---

3. - Le second terme du champ électrique total réfléchi correspond au faisceau réfléchi à l'interface film/substrat et traverse deux fois l'interface air/film. L'amplitude du champ devrait donc s'écrire  $t_1 r_2 t'_1$  (au lieu de  $r_2$ ). Avec  $t_1$  et  $t'_1$  les coefficients de transmission de l'interface air/film. En pratique, les réflexions aux deux interfaces sont faibles, on a donc  $t_1 t'_1 \approx 1$ .

- D'après l'écriture du champ électrique total réfléchi, on suppose que les largeurs des deux faisceaux réfléchis sont identiques et valent  $R$ . En réalité, le faisceau réfléchi à l'interface film/substrat effectue un aller-retour dans le film, le faisceau se propage sur une plus grande distance que celui directement réfléchi à l'interface film/air. Les largeurs des deux faisceaux ne sont donc pas strictement égales. En pratique, puisque  $R = 3.5 \mu\text{m}$ , la distance caractéristique sur laquelle varie le rayon du faisceau est  $z_R \approx 120 \mu\text{m}$ . Or, on s'intéresse à des films dont l'épaisseur est inférieure au micromètre, il est donc raisonnable de supposer égales les largeurs des faisceaux réfléchis.

avec

$$f(t) = 4i \frac{2\pi}{\lambda} E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] \quad (\text{III.45})$$

$$g(t) = -2 \frac{2\pi}{\lambda} E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} [\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)] \quad (\text{III.46})$$

et  $\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2nh$ .

Le premier terme de  $I_A + I_B$  est constant et correspond à l'intensité moyenne réfléchie, on retrouve l'expression III.27 calculée précédemment. Contrairement au cas où le faisceau est uniquement réfléchi à la surface libre, la somme  $I_A + I_B$  possède un second terme qui est fluctuant. Grâce aux interférences, il devient donc possible de mesurer les fluctuations de surface en détectant les variations du signal  $I_A + I_B$  au cours du temps. Notons que ce terme n'est pas sensible aux fluctuations d'angle mais aux fluctuations de hauteur, en  $\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)$ . Et comme vu précédemment (III.28), ce terme est en quadrature de phase par rapport à l'intensité moyenne réfléchie.

La différence d'intensité  $I_A - I_B$  est toujours uniquement sensible aux fluctuations d'angle. Cependant, le préfacteur de  $I_A - I_B$  n'est pas identique à celui du premier terme de  $I_A + I_B$ , la différence d'intensité n'est plus proportionnelle à l'intensité réfléchie moyenne. On ne peut plus normaliser le signal comme précédemment. C'est la raison pour laquelle en pratique, lorsqu'il existe des interférences, on calcule le spectre des fluctuations du signal  $I_A - I_B$ , ou du signal  $I_A + I_B$ , normalisé non plus par l'intensité réfléchie moyenne  $\langle I_A + I_B \rangle$  mais par l'intensité incidente  $I_0$ . Ainsi, on définit les spectres  $S_{A-B}(\omega)$  et  $S_{A+B}(\omega)$  :

$$S_{A-B}(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{I_A - I_B}{I_0} \right) \right|^2 \right\rangle \quad (\text{III.47})$$

$$S_{A+B}(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{I_A + I_B}{I_0} \right) \right|^2 \right\rangle \quad (\text{III.48})$$

D'après l'expression de  $I_A - I_B$  (III.44), on détermine  $S_{A-B}(\omega)$  exactement de la même façon que lorsqu'il n'y avait pas d'interférences, on obtient :

$$S_{A-B}(\omega) = \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1r_2 \cos \phi \right)^2 \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{angle}(k) k dk \quad (\text{III.49})$$

où  $\Phi_{angle}$  correspond à la fonction de pondération  $\Phi$  (III.39). Le spectre est donc égal à celui mesuré sans interférence à un facteur multiplicatif près. Notons que ce facteur dépend de

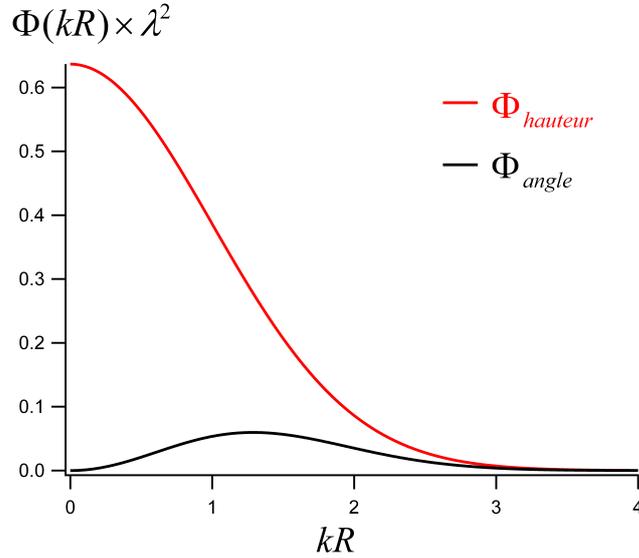
l'état d'interférence, donc de l'épaisseur moyenne  $h$  du film (car  $\phi = 4\pi nh/\lambda$ ).

En revanche, compte tenu de la différence des fonctions  $f(t)$  et  $g(t)$ , le calcul de  $S_{A+B}(\omega)$  n'est pas identique au calcul de  $S_{A-B}(\omega)$ . En annexe H, on montre que le calcul de  $S_{A+B}(\omega)$  introduit une nouvelle fonction de pondération  $\Phi_{hauteur}(k)$  :

$$S_{A+B}(\omega) = (nr_1r_2 \sin \phi)^2 \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{hauteur}(k) k dk \quad (\text{III.50})$$

$$\Phi_{hauteur}(k) = \frac{2}{\pi \lambda^2} e^{-\frac{k^2 R^2}{2}} \quad (\text{III.51})$$

Les deux fonctions de pondération  $\Phi_{hauteur}$  et  $\Phi_{angle}$  sont représentées sur la figure III.23 en fonction du produit  $kR$ . D'après la forme de  $\Phi_{hauteur}$ , le spectre  $S_{A+B}(\omega)$  est sensible aux fluctuations de surface dont la longueur d'onde est comparable ou inférieure à la largeur du faisceau,  $kR \leq 1$ . En effet, le signal  $I_A + I_B$  est sensible aux fluctuations de hauteur de l'interface. En comparaison, d'après la forme de  $\Phi_{angle}$ , le spectre  $S_{A-B}(\omega)$  est uniquement sensible aux fluctuations telles que  $kR \approx 1$ .



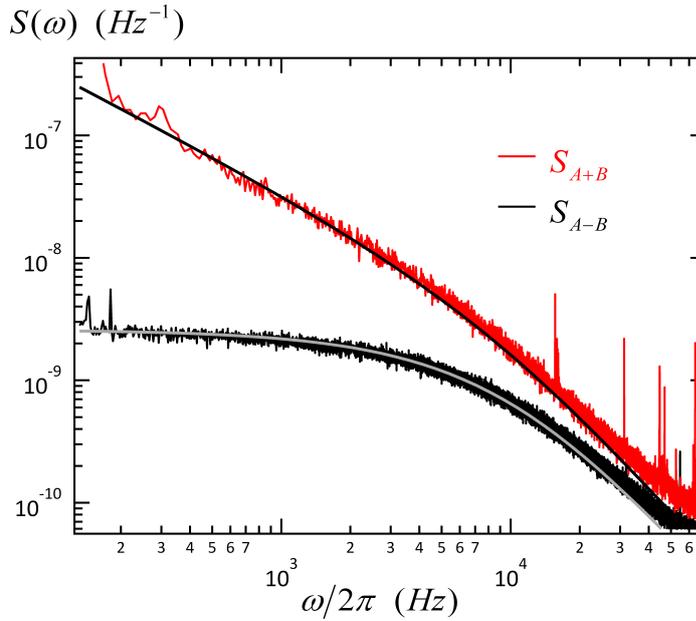
**Figure III.23** – Fonctions de pondération  $\Phi_{angle}$  et  $\Phi_{hauteur}$  en fonction du produit  $kR$  (calculées avec  $\lambda = 632.8$  nm). Tandis que le signal  $I_A - I_B$  est uniquement sensible aux fluctuations dont la longueur d'onde est comparable à la taille du faisceau ( $kR \approx 1$ ), le signal  $I_A + I_B$  est également sensible aux fluctuations de grandes longueurs d'onde,  $kR \leq 1$ .

#### 3.4 Spectres mesurés $S_{A-B}(\omega)$ et $S_{A+B}(\omega)$

Avant de nous intéresser au cas de films minces, on considère des films épais (devant la largeur  $R$ ) pour lesquels on compare les spectres  $S_{A+B}$  et  $S_{A-B}$ . Puisque la longueur de

cohérence du laser est très grande, les interférences existent également sur un milieu épais lorsque le faisceau laser est en incidence normale.

Sur la figure III.24, on représente les spectres  $S_{A-B}(\omega)$ ,  $S_{A+B}(\omega)$  mesurés pour un film d'huile silicone sur un substrat en verre réfléchissant. L'épaisseur du film est grande par rapport à la largeur du faisceau,  $h \gg R = 3.5 \mu\text{m}$ . Les traits continus correspondent aux spectres calculés numériquement d'après (III.49), (III.50) et se superposent très bien aux spectres expérimentaux. La forme du spectre  $S_{A-B}(\omega)$  est identique à celles des spectres vus précédemment sans réflexion du substrat. Il s'agit d'une fonction lorentzienne. En revanche, le spectre  $S_{A+B}(\omega)$  ne possède pas la même forme. En particulier, aux basses fréquences, le spectre ne possède pas un plateau mais varie en  $\omega^{-1}$ . Cette variation correspond aux modes  $kR \leq 1$  auxquels le spectre est sensible.



**Figure III.24** – Spectres de fluctuation  $S_{A-B}(\omega)$  (en noir),  $S_{A+B}(\omega)$  (en rouge) mesurés avec une huile silicone ( $\eta = 0.1 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ,  $\gamma = 20.9 \text{ mN/m}$ ,  $n = 1.40$ ). Le substrat réfléchissant utilisé est en verre,  $n_s = 1.53$  et la largeur du faisceau laser est  $R = 3.5 \mu\text{m}$ . Les spectres ne possèdent pas la même forme. Les signaux  $I_A - I_B$  et  $I_A + I_B$  ne sont pas sensibles aux mêmes modes de fluctuation de surface. Les traits continus correspondent aux spectres calculés numériquement d'après (III.49) et (III.50).

On souhaite connaître les dépendances des spectres  $S_{A-B}(\omega)$ ,  $S_{A+B}(\omega)$  aux différentes grandeurs ( $\eta$ ,  $\gamma$ ,  $R$ ,  $\omega$ ). Pour obtenir ces lois de variations, on peut approximer les fonctions de pondérations  $\Phi_{angle}$ ,  $\Phi_{hauteur}$  et calculer les spectres dans les limites basses fréquences et hautes fréquences. On rappelle que le spectre  $S_{A-B}(\omega)$  est une fonction lorentzienne centrée en  $\tilde{\omega}(k = 1/R)$  car la fonction de pondération  $\Phi_{angle}$  est maximum pour  $kR \approx 1$ , le spectre

### III.3 Mesure des fluctuations de films minces

---

est donc principalement sensible à la densité spectrale de puissance  $P(1/R, \omega)$ . On rappelle l'expression de  $P(k, \omega)$  dans le cas d'un milieu semi-infini où les effets visqueux dominent :

$$P(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi \gamma k^2} \frac{\tilde{\omega}}{\tilde{\omega}^2 + \omega^2} \quad (\text{III.52})$$

avec  $\tilde{\omega} = \gamma k / 2\eta$ . Ainsi, on a pu déduire précédemment les deux limites asymptotiques du spectre  $S_{A-B}(\omega)$  :

$$S_{A-B}(\omega) \sim \frac{\eta R}{\gamma^2}, \quad \text{pour } \omega \ll \frac{\gamma}{2\eta R} \quad (\text{III.53})$$

$$S_{A-B}(\omega) \sim \frac{1}{\eta R \omega^2}, \quad \text{pour } \omega \gg \frac{\gamma}{2\eta R} \quad (\text{III.54})$$

Compte tenu de la forme de la fonction de pondération  $\Phi_{\text{hauteur}}$ , le signal  $I_A + I_B$  est sensible à tous les modes tels que  $kR \leq 1$ . On peut donc approximer le spectre  $S_{A+B}(\omega)$  à une somme des  $P(k, \omega)$  pour  $k$  compris entre 0 et  $1/R$  :

$$S_{A+B}(\omega) \sim \int_0^{1/R} P(k, \omega) k dk \quad (\text{III.55})$$

D'après l'expression de  $P(k, \omega)$  (III.52), on en déduit les deux limites asymptotiques :

$$S_{A+B}(\omega) \sim \frac{1}{\gamma \omega}, \quad \text{pour } \omega \ll \frac{\gamma}{2\eta R} \quad (\text{III.56})$$

$$S_{A+B}(\omega) \sim \frac{1}{\eta R \omega^2}, \quad \text{pour } \omega \gg \frac{\gamma}{2\eta R} \quad (\text{III.57})$$

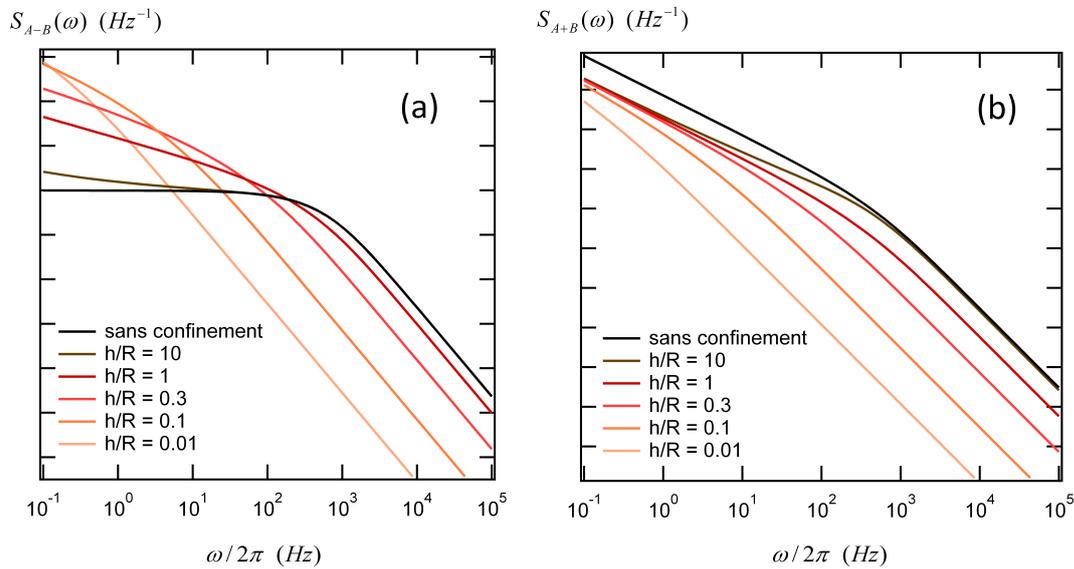
Aux hautes fréquences, le comportement du spectre  $S_{A+B}(\omega)$  est identique à celui du spectre  $S_{A-B}(\omega)$ . Aux basses fréquences, on retrouve la variation  $S_{A+B}(\omega) \sim \omega^{-1}$ , observée sur le spectre de la figure III.24. Dans cette limite, on remarque que le spectre est indépendant de la largeur du faisceau  $R$  et de la viscosité  $\eta$ , mais dépend uniquement de la tension de surface  $\gamma$ . La mesure des fluctuations du signal  $I_A + I_B$  est donc intéressante pour déterminer la tension de surface, car il n'est pas nécessaire de connaître précisément la largeur du faisceau utilisé.

#### 3.5 Effet du confinement sur les spectres $S_{A-B}(\omega)$ et $S_{A+B}(\omega)$

Puisque les signaux  $I_A - I_B$  et  $I_A + I_B$  ne sont pas sensibles aux mêmes modes de fluctuations de surface, nous avons vu sur la figure III.24 que les spectres  $S_{A-B}(\omega)$ ,  $S_{A+B}(\omega)$  n'ont pas la même forme et ne possèdent pas les mêmes sensibilités aux propriétés du milieu. Dans ce paragraphe, nous allons voir que l'effet du confinement sur les fluctuations de surface ne modifie pas non plus les spectres de la même façon.

Le signal  $I_A - I_B$  est principalement sensible aux modes de surface tels que  $k = 1/R$ , le spectre  $S_{A-B}(\omega)$  est donc sensible à l'effet du confinement lorsque l'épaisseur du film est égale ou inférieure à la largeur du faisceau,  $h \leq R$ . En revanche, le signal  $I_A + I_B$  est sensible aux modes de surface tels que  $k \leq 1/R$ , le spectre  $S_{A+B}(\omega)$  est donc sensible à l'effet du confinement même lorsque l'épaisseur est supérieure à la taille du faisceau. Les spectres théoriques  $S_{A-B}(\omega)$ ,  $S_{A+B}(\omega)$  calculés pour différents rapports  $h/R$ , sont affichés sur la figure III.25. On vérifie que les spectres  $S_{A-B}(\omega)$  dévient du spectre d'épaisseur infinie uniquement pour des rapports  $h/R < 1$ . Aux hautes fréquences, les spectres  $S_{A+B}(\omega)$  varient avec l'épaisseur de façon similaire aux spectres  $S_{A-B}(\omega)$ . Aux basses fréquences, les spectres  $S_{A+B}(\omega)$  dévient du spectre d'épaisseur infinie dès le rapport  $h/R = 10$ . Contrairement aux spectres  $S_{A-B}(\omega)$ , les spectres  $S_{A+B}(\omega)$  sont sensibles à l'effet du confinement pour des films dont l'épaisseur est supérieure à la largeur du faisceau. Lorsque l'épaisseur est très faible par rapport à la largeur du faisceau  $h/R \ll 1$ , les deux spectres suivent la même loi de variation :

$$S(\omega) \sim \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{h^3}{\eta \omega^2 R^4} \quad (\text{III.58})$$



**Figure III.25** – Comparaison de l'effet du confinement sur les fluctuations entre les spectres  $S_{A-B}(\omega)$  (a) et les spectres  $S_{A+B}(\omega)$  (b) calculés numériquement pour différents rapports  $h/R$ . Les spectres obtenus pour une épaisseur infinie sont affichés (en noir) et correspondent aux spectres mesurés sur la figure III.24.

Autrement dit, la mesure des fluctuations du signal  $I_A + I_B$  n'offre pas d'intérêt particulier (par rapport à la mesure avec le signal  $I_A - I_B$ ) pour étudier l'effet du confinement de films très minces ( $h \ll R$ ).

### 3.6 Evolution des spectres avec l'épaisseur $h$

Jusqu'ici nous avons étudié les spectres en supposant l'état d'interférence constant. Dans le paragraphe suivant, nous allons étudier l'évolution des spectres en fonction de l'état d'interférence, c'est-à-dire pour des films dont l'épaisseur varie.

Lorsque le substrat est réfléchissant, nous avons déterminé l'expression de l'intensité moyenne réfléchie sur les deux quadrants  $A$  et  $B$  de la photodiode :

$$\langle I_A + I_B \rangle = (r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \phi) I_0 \quad \text{avec} \quad \phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2nh \quad (\text{III.59})$$

En posant une goutte d'huile silicone sur un substrat en verre, la goutte s'étale pour former un film de plus en plus mince. Ainsi, la phase  $\phi$  varie et l'intensité  $\langle I_A + I_B \rangle$  oscille au cours du temps. En parallèle, on enregistre le signal  $I_A - I_B$  pour calculer les spectres de fluctuations  $S_{A-B}(\omega)$  et suivre leur évolution au cours du temps. On rappelle l'expression du spectre déterminée précédemment (III.49).

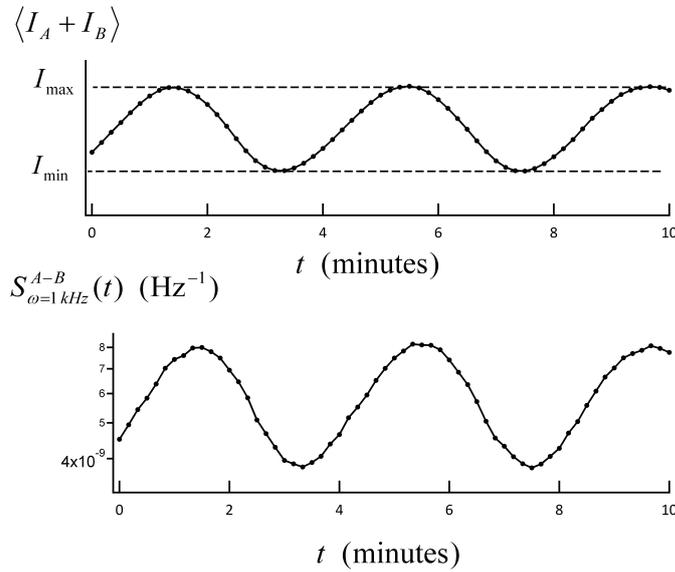
$$S_{A-B}(\omega) = \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1r_2 \cos \phi \right)^2 \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{angle}(k) k dk \quad (\text{III.60})$$

Sur la figure III.26, on affiche la variation au cours du temps de l'intensité moyenne réfléchie  $\langle I_A + I_B \rangle$  et du spectre  $S_{A-B}(\omega)$ , moyenné autour de la fréquence  $f = 1$  kHz. Le signal  $\langle I_A + I_B \rangle$  est périodique et les 2 périodes parcourues correspondent à une variation d'épaisseur du film sondé d'environ 452 nanomètres entre le début et la fin de l'acquisition ( $\lambda/2n = 226$  nm). La durée d'acquisition est d'environ 10 minutes, l'étalement du film est suffisamment lent pour considérer l'épaisseur du film constante pendant l'enregistrement d'un spectre (qui dure 10 secondes). Comme prévu d'après III.60, l'amplitude du spectre passe par un maximum lorsque les interférences sont constructives ( $I = I_{max}$ ), et passe par un minimum lorsque les interférences sont destructives ( $I = I_{min}$ ). Notons que les différents maximums (ou minimums) du spectre sont égaux. Ceci signifie que pour le film sondé, les fluctuations de surface mesurées sont identiques et ne dépendent pas de l'épaisseur, ce qui est attendu pour  $h \gg R$ . Les variations observées du spectre proviennent uniquement de l'état d'interférence. Par ailleurs, on vérifie que le rapport entre l'amplitude maximale et minimale du spectre correspond au rapport prédit par III.60, soit :

$$R = \left( \frac{r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1r_2}{r_1^2 - (n-1)r_2^2 - (2-n)r_1r_2} \right)^2 \quad (\text{III.61})$$

Pour  $n = 1.40$  et  $n_s = 1.53$ , on obtient  $R = 1.90$ .

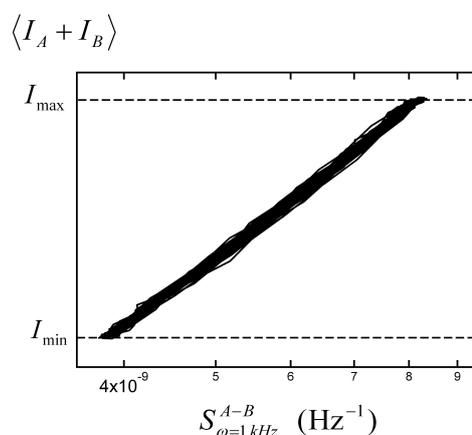
Une autre représentation des données permet de mettre en évidence le fait qu'il n'y a pas



**Figure III.26** – Variation au cours du temps de l’intensité moyenne réfléchie  $\langle I_A + I_B \rangle$  et de l’amplitude du spectre de fluctuations  $S_{A-B}(\omega)$  moyenné autour de la fréquence  $f = 1$  kHz, lorsqu’un film d’huile silicone s’étale sur un substrat en verre. Les variations de l’amplitude du spectre sont seulement dues aux variations de l’état d’interférence. L’épaisseur du film sondé est très supérieure à la largeur du faisceau,  $h \gg R = 3.5 \mu\text{m}$ .

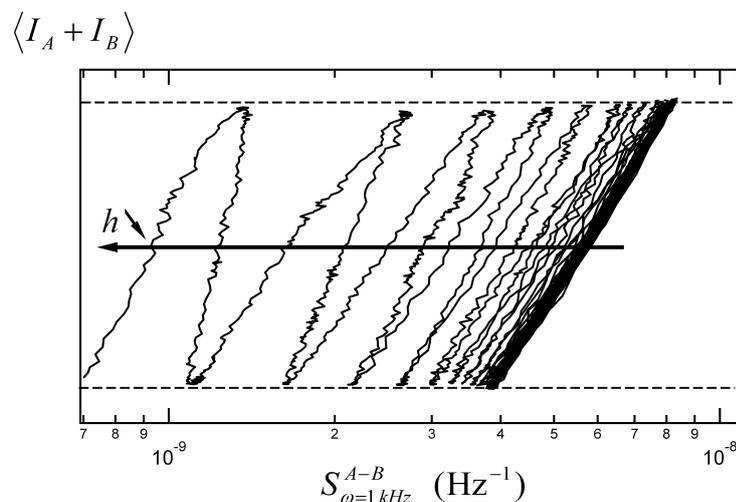
d’effet du confinement dans cette expérience. Sur la figure III.27, on représente l’intensité moyenne réfléchie  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction du spectre  $S_{A-B}$  moyenné autour de  $f = 1$  kHz. Les valeurs affichées sont celles de la figure III.26 et celles obtenues pour les 19 périodes qui ont suivi. L’épaisseur du film varie donc d’environ  $4.7 \mu\text{m}$ . Toutes les valeurs se superposent sur une même courbe. La superposition des valeurs sur plusieurs périodes d’oscillation nous indique que dans cette plage de variation d’épaisseur, les spectres mesurés ne dépendent pas de l’effet du confinement. L’épaisseur du film est donc bien supérieure à la largeur du faisceau,  $R = 3.5 \mu\text{m}$ . Cette représentation permet de s’affranchir de la vitesse à laquelle l’épaisseur du film diminue. En particulier, en superposant les données obtenues pour des films dont l’épaisseur varie à différentes vitesses, on vérifie que les fluctuations mesurées ne dépendent pas de la vitesse d’étalement du film.

Lorsque l’étalement se poursuit, l’épaisseur  $h$  devient comparable puis inférieure à la largeur  $R$  du faisceau. Dans ce cas, les fluctuations mesurées deviennent sensibles à l’effet du confinement, on obtient les points de la figure III.28 dans la représentation intensité totale en fonction de  $S_{f=1\text{kHz}}^{A-B}$ . Les points dévient progressivement à gauche de la courbe de la figure III.28, c’est-à-dire vers des amplitudes de fluctuations plus faibles. Lorsque l’épaisseur devient très faible, l’amplitude du spectre devient suffisamment sensible à l’épaisseur du film pour distinguer les fluctuations entre deux points consécutifs en phase, c’est-à-dire corres-



**Figure III.27** – Variation de l'intensité moyenne réfléchie en fonction de l'amplitude du spectre des fluctuations moyennée autour de  $f = 1$  kHz. Tous les points se superposent sur une même courbe. L'amplitude du spectre est modulée par l'état d'interférence mais n'est pas sensible à l'effet du confinement. Les épaisseurs du film restent supérieures à la largeur du faisceau,  $h \gg R = 3.5 \mu\text{m}$ .

pondant à une variation d'épaisseur de 226 nanomètres.

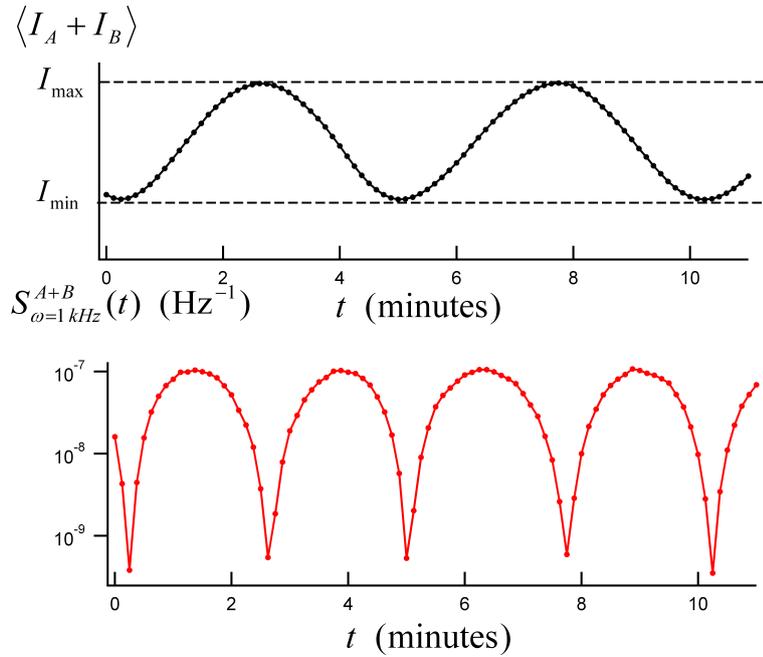


**Figure III.28** – Variation de l'intensité moyenne réfléchie en fonction de l'amplitude du spectre des fluctuations  $S_{A-B}$  lorsque l'épaisseur du film sondé devient comparable, puis inférieure, à la largeur du faisceau,  $h \leq R$ . Les points s'écartent progressivement à gauche de la courbe de la figure III.27.

Nous avons vu précédemment qu'il est également possible de mesurer les fluctuations de surface à partir de  $I_A + I_B$ , la somme des intensités reçues sur les deux quadrants de la photodiode. On rappelle l'expression du spectre des fluctuations de ce signal :

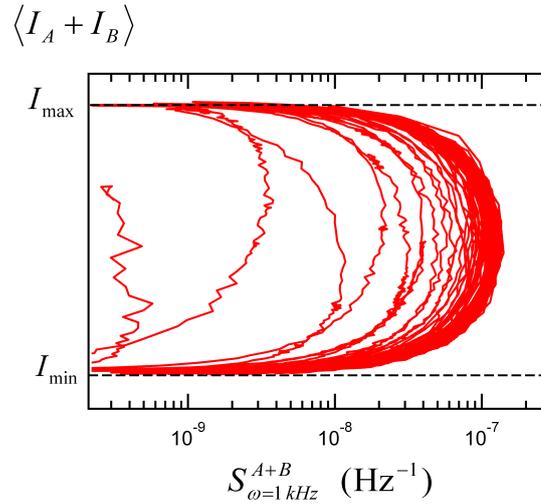
$$S_{A+B}(\omega) = (nr_1 r_2 \sin \phi)^2 \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{angle}(k) k dk \quad (\text{III.62})$$

Comme pour le spectre  $S_{A-B}$ , on peut vérifier cette relation grâce à un film qui s'étale, en suivant au cours du temps les variations de l'intensité moyenne réfléchie  $\langle I_A + I_B \rangle$  parallèlement à celles du spectre  $S_{A+B}$ . Sur la figure III.29, on affiche ces variations mesurées pendant 10 minutes au début de l'étalement, lorsque l'épaisseur du film est supérieure à la largeur du faisceau,  $h \gg R$ . L'amplitude du spectre de fluctuation  $S_{A+B}$  est maximum lorsque l'intensité réfléchie est égale à  $(I_{max} + I_{min})/2$ , correspondant à  $\cos \phi = 0$ . A l'opposé, l'amplitude du spectre devient nulle lorsque l'intensité réfléchie est égale à  $I_{max}$  ou  $I_{min}$ , correspondant à  $\cos \phi \pm 1$ . Les variations observées correspondent bien à celles prévues par l'expression III.62, en  $S_{A+B} \sim \sin^2 \phi$ . Les quatre maximums affichés sont identiques, les fluctuations de surfaces mesurées dépendent très peu de l'épaisseur du film (car  $h \gg R$ ). Les variations observées sont donc uniquement dues aux variations de l'état d'interférences du faisceau.



**Figure III.29** – Variation au cours du temps de l'intensité moyenne réfléchie  $\langle I_A + I_B \rangle$  et de l'amplitude du spectre de fluctuation  $S_{A+B}$  moyennée autour de la fréquence 1 kHz, lorsqu'un film d'huile silicone s'étale sur un substrat en verre. La sensibilité aux fluctuations devient nulle lorsque les interférences sont constructives ( $\cos \phi = 1$ ) ou destructives ( $\cos \phi = -1$ ).

Sur la figure III.30, on représente les variations de l'intensité moyenne réfléchie en fonction de l'amplitude du spectre  $S_{A+B}$ , correspondant à une variation d'épaisseur de  $8.1 \mu\text{m}$ . Lorsque la sensibilité aux fluctuations est maximale, en  $\langle I_A + I_B \rangle = (I_{min} + I_{max})/2$ , l'amplitude du spectre n'est pas toujours la même (comme sur la figure III.29), les fluctuations de surface mesurées deviennent sensibles à l'effet du confinement car l'épaisseur du film devient de plus en plus faible.



**Figure III.30** – Variation de l'intensité moyenne réfléchi en fonction de l'amplitude du spectre  $S_{A+B}$  pour l'étalement d'un film d'huile silicone sur un substrat en verre. Lorsque l'épaisseur devient comparable, puis inférieure, à la largeur du faisceau ( $h \leq R$ ), l'amplitude du spectre  $S_{A+B}$  devient de plus en plus sensible à l'épaisseur du film sondé.

### Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté un montage adapté à la mesure des fluctuations de surface de films minces. Dans ce montage, le faisceau laser est en incidence normale à la surface libre sondée. En utilisant un substrat réfléchissant, l'intensité du faisceau réfléchi résulte des interférences entre les réflexions aux deux interfaces air/film et film/substrat. Grâce aux interférences créées, on peut suivre l'évolution de l'épaisseur du film au cours du temps. Le spectre  $S_{A-B}$ , obtenu en détectant la différence d'intensité sur les deux quadrants  $I_A - I_B$ , s'écrit avec la même fonction d'appareil plus un terme d'amplitude qui dépend de l'épaisseur du film. Par ailleurs, les interférences permettent de mesurer les fluctuations de hauteur en détectant l'intensité totale réfléchi  $I_A + I_B$ . Contrairement à  $I_A - I_B$ , ce signal est également sensible aux longueurs d'onde supérieures à la taille du faisceau, le spectre correspondant  $S_{A+B}$  s'écrit en introduisant une nouvelle fonction d'appareil. Enfin, nous avons vu que lorsque l'épaisseur du film diminue, la représentation  $\langle I_A + I_B \rangle$  vs  $S(\omega)$  permet de mettre en évidence les effets du confinement sur les fluctuations de surface. Dans la suite, cette méthode sera utilisée quantitativement pour étudier les fluctuations de films ultraminces dont on contrôle indépendamment l'épaisseur. Pour effectuer cela, nous utiliserons l'effet thermocapillaire.

## 4 Contrôle du film par effet thermocapillaire

On rappelle que notre objectif est l'étude des films minces. Avec les interférences, nous avons vu précédemment que si l'épaisseur du film varie (comme lorsqu'une goutte s'étale), on est capable de mesurer la variation d'épaisseur relative du film. Cette technique ne permet pas de connaître la valeur absolue de l'épaisseur. Dans cette partie, nous allons présenter une méthode optique pour contrôler l'épaisseur du film jusqu'au démouillage. Cette méthode utilise un effet Marangoni généré par un gradient de température : l'effet thermocapillaire.

### 4.1 Présentation de l'effet thermocapillaire

La tension de surface d'une interface entre deux fluides non miscibles est généralement une fonction monotone décroissante de la température<sup>4</sup>. Pour des variations de température  $\theta$  modérées, la tension de surface  $\gamma$  prend une forme linéaire :

$$\gamma(\theta) = \gamma(\theta_0) + \gamma_\theta (\theta - \theta_0) \quad (\text{III.63})$$

Avec  $\gamma_\theta < 0$ . Ainsi, une variation de la température à l'interface crée un gradient de tension de surface. La résultante de ces forces est orientée vers les zones où la température est la plus faible et induit des contraintes en surface. Pour un gradient de température le long de l'interface  $d\theta/dx$ , la contrainte tangentielle parallèle à la surface est égale à :

$$\frac{d\gamma}{dx} = \gamma_\theta \frac{d\theta}{dx} \quad (\text{III.64})$$

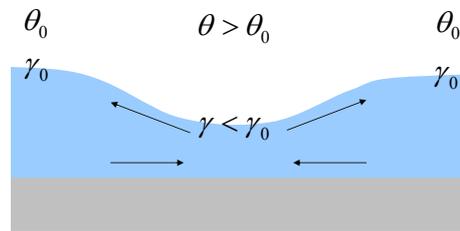
La surface libre ne peut pas supporter de contraintes tangentielles. La contrainte due à la variation spatiale de la tension de surface doit donc être compensée par la contrainte visqueuse  $-\eta(\partial v_x/\partial y)$  à l'interface. On a alors :

$$\gamma_\theta \frac{\partial \theta}{\partial x} - \eta \left( \frac{\partial v_x}{\partial y} \right)_{\text{interface}} = 0 \quad (\text{III.65})$$

Le gradient de température induit un écoulement du fluide en surface orienté des zones chaudes ( $\gamma$  faible) vers les zones froides ( $\gamma$  fort). Il s'agit de l'effet thermocapillaire, c'est un effet Marangoni induit par un gradient de température. L'effet thermocapillaire a fait l'objet de nombreuses études. Il a déjà été étudié dans le cas d'une interface liquide/liquide par l'équipe de J-P. Delville [13, 54]. Il existe également une littérature abondante sur les écoulements thermocapillaires générés par l'évaporation d'une goutte [55].

---

4. En effet, pour un liquide simple, la tension de surface est reliée aux forces de cohésion du liquide, une augmentation de l'agitation thermique réduit donc l'influence de ces interactions et diminue la valeur de la tension de surface.



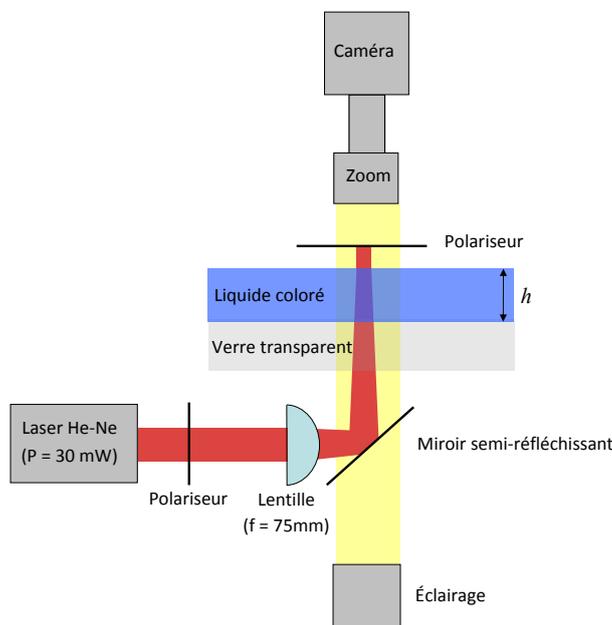
**Figure III.31** – Diminution de l'épaisseur d'un film due à l'application d'un effet thermocapillaire. La déformation de la surface libre provoquée par l'expulsion du liquide à l'extérieur de la zone chauffée induit un écoulement en profondeur opposé à celui proche de la surface libre.

Si l'on chauffe localement la surface libre plane d'un film liquide, l'effet thermocapillaire induit va progressivement expulser le fluide en périphérie de la zone chauffée. Ainsi, dans la région chauffée, l'épaisseur du film diminue. L'utilisation de l'effet thermocapillaire semble être un moyen ingénieux pour diminuer progressivement l'épaisseur locale d'un film liquide. Cependant la diminution de l'épaisseur est limitée. En effet, la variation de l'épaisseur du film étant locale, un gradient d'épaisseur se crée. Or la pente de la surface libre a pour effet d'induire un gradient horizontal de pression hydrostatique qui va générer un contre-écoulement en profondeur. De plus, la courbure de la surface libre induit un gradient horizontal de pression capillaire également favorable au contre-écoulement. Lorsque le contre-écoulement compense l'écoulement de cisaillement près de la surface, on atteint un régime stationnaire et l'épaisseur du film n'évolue plus. Ainsi l'effet thermocapillaire se produit à la surface mais ses effets sont également observables en profondeur. Dans le paragraphe qui suit nous allons voir comment générer un effet thermocapillaire en utilisant un faisceau laser. Nous observerons l'existence d'un écoulement en surface, ainsi qu'un écoulement en profondeur (opposé à celui en surface). Nous observerons également la variation d'épaisseur du liquide sous la zone chauffée par le faisceau laser.

#### 4.1.1 Effet thermocapillaire induit par l'absorption d'un faisceau laser dans un film liquide

Pour générer l'effet thermocapillaire et observer l'écoulement qu'il génère, on focalise un faisceau laser sur un liquide absorbant (à la longueur d'onde du laser). L'absorption du faisceau par le liquide induit une élévation inhomogène de la température à la surface libre du liquide et crée un effet thermocapillaire. Le point-clé pour produire un écoulement thermocapillaire n'est pas l'élévation de la température elle-même mais l'amplitude du gradient de température. Le chauffage induit par un laser est donc adéquat car il est très facile de produire une faible élévation de température avec d'importants gradients.

En pratique, on utilise un faisceau laser rouge ( $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ ). Afin d'obtenir un liquide absorbant, on utilise des huiles silicones contenant des pigments bleus<sup>5</sup>. Pour générer un gradient de température suffisamment important, on focalise le faisceau avec une lentille de focale  $f = 75 \text{ mm}$  (figure III.32). Ainsi le faisceau laser absorbé par le film possède une largeur d'environ  $35 \mu\text{m}$ . Le film coloré est placé sur un substrat en verre transparent et possède une épaisseur d'environ  $1 \text{ mm}$ . Le faisceau laser est envoyé sous le film liquide en traversant d'abord le substrat (en verre transparent). De cette façon, il est possible de placer une caméra au dessus du liquide qui permet de filmer la surface libre. Les pigments ajoutés dans l'huile silicone ne sont pas complètement solubles et peuvent jouer le rôle de traceur. Les pigments possèdent une taille inférieure à environ  $3 \mu\text{m}$ . L'absorption optique dans le liquide coloré est assez faible. La longueur d'absorption du liquide (à la longueur d'onde du laser) est largement supérieure à l'épaisseur du film. L'intensité du faisceau après la traversée du liquide n'est donc pas négligeable. Pour éviter de saturer la caméra avec le faisceau transmis, on place deux polariseurs orientés à  $90^\circ$ . De cette manière, on bloque le faisceau laser transmis. Le zoom de la caméra permet de filmer une zone de  $600 \mu\text{m}$  sur  $600 \mu\text{m}$ . La mise au point est effectuée sur la surface libre du film. Notons que la profondeur de champ est très faible par rapport à l'épaisseur du film, ainsi seuls les pigments proches de la surface sont nets sur les images enregistrées. Lorsque l'on allume le faisceau laser, tous les pigments



**Figure III.32** – Schéma du montage permettant de créer un effet thermocapillaire et de visualiser l'écoulement produit.

s'éloignent de la zone située sous le faisceau laser. Le sens de déplacement du fluide proche de

5. Référence : AB127741. Fabricant : ABCR.

la surface libre est bien celui attendu. En effet, pour l'huile silicone, la variation de la tension de surface avec la température est négative ( $\gamma_\theta < 0$ ). La tension de surface est donc plus faible dans la zone éclairée et le fluide est expulsé vers l'extérieur. Lorsque l'on augmente la puissance du faisceau incident, les pigments accélèrent très rapidement. A l'inverse, lorsque l'on coupe le faisceau les pigments s'immobilisent brutalement. Compte tenu des dimensions micrométriques sur lesquelles s'effectue l'écoulement, les effets inertiels sont négligeables par rapport aux effets visqueux.

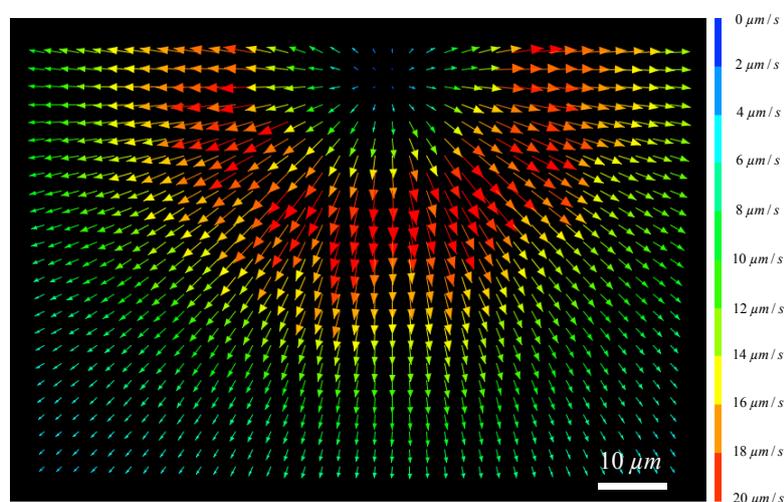
Pour une puissance de faisceau fixée, l'écoulement est stationnaire. On peut déterminer le champ des vitesses du fluide à la surface libre en effectuant la corrélation entre deux images successives<sup>6</sup>. Avant d'effectuer la corrélation, les images brutes sont traitées. Ce traitement permet de filtrer les pigments flous, c'est-à-dire les pigments situés en profondeur du film. Ainsi la corrélation porte uniquement sur les pigments proches de la surface libre. Sur la figure III.33, on représente le champ des vitesses obtenu grâce à la corrélation d'image. On vérifie que les vitesses sont purement radiales et que leurs amplitudes dépendent seulement de l'éloignement du centre du faisceau (où les vitesses sont nulles). L'écoulement possède la symétrie axiale du faisceau laser. Sur la figure III.34, on affiche l'amplitude des vitesses de la figure III.33 en fonction de la distance au centre du faisceau  $r$ . D'après (III.65), ce profil correspond à celui du gradient de température à la surface libre. L'observation du profil des vitesses nous renseigne sur le champ de température à la surface libre. La distance à laquelle la vitesse radiale est maximum,  $r = 25 \mu\text{m}$ , correspond à la largeur caractéristique du profil de température. On remarque que cette valeur est comparable à la largeur du faisceau laser (de  $35 \mu\text{m}$ ). Cependant nous verrons par la suite que la largeur caractéristique du profil de température n'est pas nécessairement fixée par la largeur du faisceau. En effet, cette largeur caractéristique peut dépendre d'autres paramètres comme le coefficient d'absorption et l'épaisseur du milieu absorbant.

En diminuant la distance entre la caméra et la surface libre du film, on effectue la mise au point sur les pigments situés en profondeur du film. On peut ainsi déterminer le champ des vitesses radiales de l'écoulement à différentes profondeurs. En profondeur, on observe le contre-écoulement (qui permet d'atteindre le régime stationnaire). Les vitesses sont nettement plus faibles et sont orientées vers le centre du faisceau.

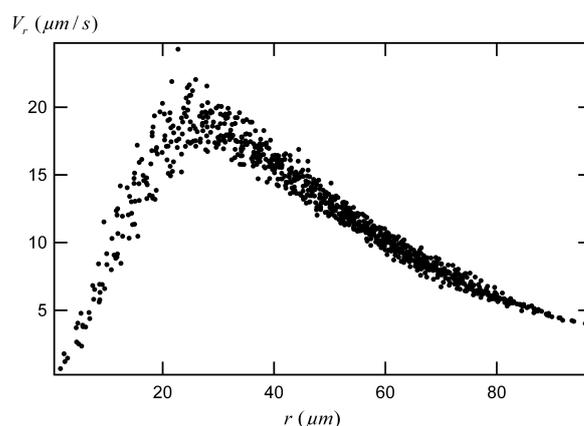
Lorsque l'on diminue suffisamment l'épaisseur du film, la profondeur de champ de la caméra devient comparable à l'épaisseur. Dans ce cas, tous les pigments du film liquide apparaissent nettement sur les images enregistrées. On peut voir les pigments (situés en profondeur) s'approcher lentement du centre du faisceau puis repartir rapidement dans la

---

6. La corrélation des images a été effectuée grâce au logiciel *JPIV* : [www.jpiv.vennemann-online.de](http://www.jpiv.vennemann-online.de)



**Figure III.33** – Champ des vitesses à la surface libre d’un film lorsqu’on impose un effet thermocapillaire. L’effet thermocapillaire est généré par l’absorption d’un faisceau laser dans le film.

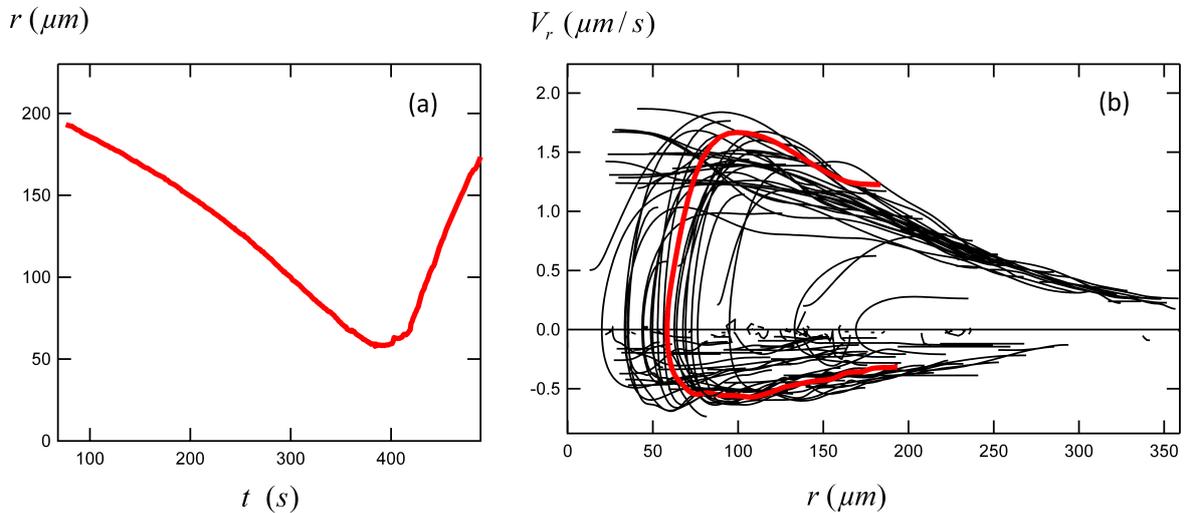


**Figure III.34** – Variation de la vitesse radiale du fluide à la surface libre en fonction de l’éloignement du centre du faisceau laser à l’origine de l’effet thermocapillaire. Les données correspondent à celles de la figure III.33.

direction opposée (proche de la surface libre). Dans ce cas, la corrélation d’image n’est plus une technique adaptée pour étudier l’écoulement. Il est préférable de suivre la position individuelle des traceurs en fonction du temps, il s’agit de la technique de tracking de particule. Sur la figure III.35-a, on représente l’évolution de la position radiale d’un pigment en fonction du temps. Le pigment s’approche lentement jusqu’à  $58 \mu\text{m}$  du centre du faisceau, puis s’en éloigne rapidement. Sur la figure III.35-b, on représente l’évolution des vitesses radiales des particules suivies en fonction de la distance au centre du faisceau. La courbe rouge correspond à la particule suivie figure III.35-a. On distingue deux courbes maîtresses correspondant à l’écoulement en surface et à celui en profondeur. Quel que soit l’éloignement  $r$ , on vérifie que

### III.4 Contrôle du film par effet thermocapillaire

la vitesse est plus faible lorsque les traceurs s'approchent du centre ( $V_r < 0$ ), que lorsqu'ils s'en éloignent ( $V_r > 0$ ). Quel que soit l'éloignement, on remarque que le rapport des vitesses maximales d'approche et d'éloignement vaut environ  $-3$ . Par exemple, en  $r = 100 \mu\text{m}$ , la vitesse d'approche maximale est de  $-0.6 \mu\text{m/s}$  alors que la vitesse d'éloignement maximale est de  $1.8 \mu\text{m/s}$ . Nous verrons par la suite que ce rapport est celui attendu lorsque l'épaisseur du film est très faible devant la dimension latérale de l'écoulement et lorsque l'écoulement atteint un régime stationnaire. Or ces conditions sont respectées dans ce cas, l'épaisseur du film étudié est d'environ  $10 \mu\text{m}$  alors que l'écoulement est créé sur une zone d'une centaine de micromètres.



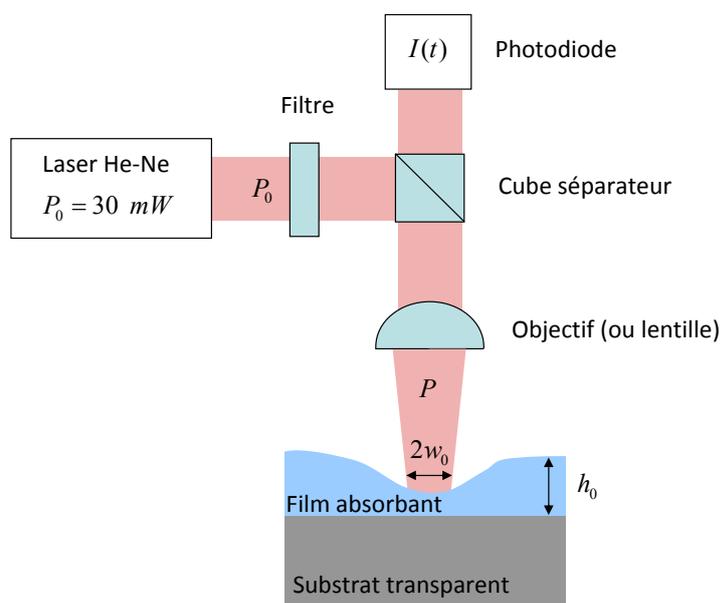
**Figure III.35** – (a) : Variation de la position d'un traceur au cours du temps. Le fluide (proche du substrat) est attiré lentement vers le centre du faisceau puis s'en éloigne rapidement (proche de la surface libre). (b) : Variation des vitesses radiales des traceurs en fonction de l'éloignement au centre du faisceau laser. Chaque courbe correspond au déplacement d'un traceur dans le film liquide. 130 courbes sont représentées. La courbe en rouge correspond au traceur suivi sur la figure (a).

Rappelons que l'effet thermocapillaire a uniquement tendance à éloigner le fluide du centre du faisceau. Le contre-écoulement est un effet secondaire de l'effet thermocapillaire. C'est la déformation de la surface libre qui est responsable du contre-écoulement. Dans la partie suivante, nous allons voir comment mesurer la déformation de la surface libre.

#### 4.1.2 Mesure de la déformation de la surface libre

Nous avons vu précédemment que l'effet thermocapillaire s'accompagne d'une déformation de la surface libre. Dans notre cas, la variation de la tension de surface avec la température est négative ( $\gamma_\theta < 0$ ). Comme nous avons pu le vérifier, l'effet thermocapillaire tend à éjecter du fluide vers l'extérieur. Sous le faisceau, l'épaisseur du film est donc plus faible. En utilisant le

montage schématisé sur la figure figure III.36, on peut mesurer l'intensité du faisceau réfléchi sur les interfaces air/film et film/substrat. Or cette mesure permet de connaître la variation d'épaisseur sous le faisceau. En effet, l'intensité du faisceau réfléchi résulte de l'interférence des réflexions aux deux interfaces. L'évolution de l'intensité du faisceau réfléchi dépend donc de la variation d'épaisseur du film. En pratique, le signal mesuré est périodique. En comptant le nombre de périodes effectuées, on en déduit une variation d'épaisseur. Notons que cette méthode permet de déterminer la variation d'épaisseur mais ne permet pas de distinguer une diminution d'une augmentation d'épaisseur<sup>7</sup>. Quelle que soit l'épaisseur initiale  $h_0$  du film et la puissance du faisceau laser choisie, l'écoulement atteint toujours un état stationnaire et les variations d'épaisseur obtenues sont relativement faibles,  $\Delta h \ll h_0$ . Dans notre cas, l'élévation de température est due à l'absorption (partielle) du faisceau laser dans le film. Ainsi, lorsque l'épaisseur du film diminue, l'effet thermocapillaire faiblit. L'absorption du faisceau par le film facilite la stabilisation de l'effet thermocapillaire, la diminution de l'épaisseur du film est limitée.



**Figure III.36** – Schéma du montage permettant de générer un effet thermocapillaire et de mesurer l'intensité réfléchie pour suivre l'évolution de l'épaisseur sous le faisceau.

7. En effet, l'état d'interférence ne dépend pas du signe de la variation d'épaisseur, il ne semble pas possible de connaître le sens vers lequel se déplace la surface libre. Cependant, compte tenu de l'absorption optique, l'intensité du faisceau qui effectue un aller-retour dans le film dépend de l'épaisseur du film. Or cette dépendance (contrairement à celle due aux interférences) tient compte du signe de la variation d'épaisseur. Par exemple, lorsque l'épaisseur diminue, l'intensité réfléchie augmente car le faisceau est moins absorbé. En pratique, la variation relative d'épaisseur est faible ( $\Delta h \ll h_0$ ), cet effet est donc négligeable et il est difficile de déterminer le sens de déplacement de l'interface.

**Remarque :** Lorsque l'on utilise des huiles silicones sans pigments, aucune variation d'épaisseur n'est observée en utilisant le laser de 30 mW. Ainsi, dans les expériences précédentes de mesure des fluctuations, nous avons la confirmation que l'effet thermocapillaire était totalement négligeable. De plus, la puissance du laser utilisé dans ces expériences était de seulement 2 mW.

Rappelons que l'on souhaite se servir de l'effet thermocapillaire, en parallèle de la mesure des fluctuations, pour diminuer localement l'épaisseur du film, si possible jusqu'au dé-mouillage. Or pour des films très minces, l'absorption du faisceau devient trop faible pour induire un effet thermocapillaire significatif. De plus, nous avons vu que cette diminution d'épaisseur est limitée. La génération d'un gradient de température à la surface libre grâce à l'absorption du faisceau dans le film n'est donc pas la solution adaptée à notre problème. Il est plus intéressant d'absorber le faisceau dans le substrat (solide) du film. La chaleur accumulée dans le substrat diffuse dans le film et augmente la température à la surface libre. Ainsi, lorsque l'épaisseur du film diminue, la surface libre se rapproche de la source de chaleur et sa température augmente. Il n'existe plus d'effet stabilisant comme précédemment, l'effet thermocapillaire est au contraire amplifié au fur et à mesure que le film s'amincit. Notons que cette solution est également plus pratique à mettre en oeuvre car elle ne nécessite plus de colorer le liquide du film. Dans le paragraphe suivant, nous allons étudier plus en détail l'effet thermocapillaire dans cette configuration, c'est-à-dire lorsque le substrat solide d'un film liquide absorbe un faisceau laser.

#### 4.2 Cas du film mince sur un substrat absorbant

Dans cette partie, nous allons étudier plus précisément l'effet thermocapillaire dû à l'absorption d'un faisceau laser dans un substrat solide sur lequel un film liquide non absorbant est déposé.

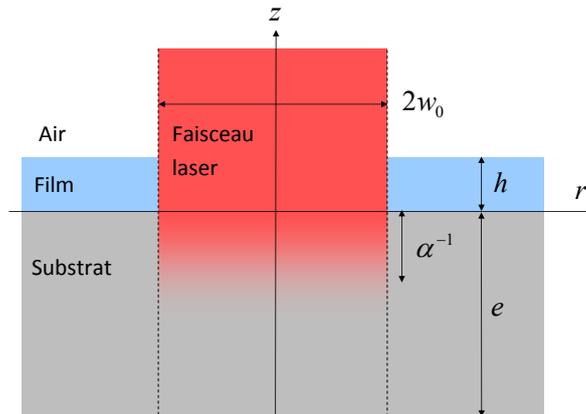
En utilisant la technique de spin-coating, on forme un film d'huile silicone d'épaisseur uniforme  $h_0$  d'environ  $1 \mu\text{m}$  sur un substrat en verre coloré. Un faisceau laser, de longueur d'onde  $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ , est focalisé sur le film et génère un effet thermocapillaire. Grâce à un filtre placé à la sortie du laser, on peut modifier la puissance lumineuse  $P$  du faisceau incident. En changeant la focale utilisée, on peut également modifier le rayon  $w_0$  du faisceau incident. Par ailleurs, l'intensité du faisceau réfléchi résulte de l'interférence des réflexions aux interfaces air/film et film/substrat. Il est donc possible de suivre l'évolution de l'épaisseur du film sous le faisceau en mesurant l'intensité  $I(t)$  du faisceau réfléchi l'aide d'une photodiode. Il s'agit du montage représenté figure III.36 où l'échantillon n'est plus un film absorbant sur un substrat transparent mais un film transparent sur un substrat absorbant.

Pour une puissance  $P$  fixée, on suit l'évolution de l'épaisseur du film sous le faisceau. Contrairement au cas vu précédemment, où le faisceau est absorbé dans le film, l'épaisseur du film sous le faisceau  $h$  ne se stabilise jamais. Quelle que soit la largeur  $w_0$  et la puissance  $P$ , l'épaisseur tend progressivement vers zéro. En effet, le nombre d'oscillations du signal correspond exactement à l'épaisseur initiale du film. Autrement dit, dans cette configuration, l'effet thermocapillaire permet de démouiller totalement le film. Il n'existe pas d'état stationnaire dynamique. Cependant, la vitesse à laquelle l'épaisseur du film diminue dépend fortement des différents paramètres du problème, en particulier de la largeur du faisceau et de l'épaisseur initiale du film.

Afin de comprendre le caractère non-stationnaire de l'effet thermocapillaire et afin de connaître les paramètres qui contrôlent la vitesse à laquelle diminue l'épaisseur, nous allons étudier théoriquement l'effet thermocapillaire dans le cas d'un film mince sur un substrat absorbant. Avant d'analyser l'écoulement dans le film, il est nécessaire de déterminer le profil inhomogène de température à la surface libre du film qui est à l'origine du mécanisme.

#### 4.2.1 Détermination du profil de température à la surface libre

On considère un film non absorbant d'épaisseur  $h$  et de conductivité thermique  $\Lambda_f$  sur un substrat solide absorbant d'épaisseur  $e$ , de conductivité thermique  $\Lambda_s$  et de coefficient d'absorption  $\alpha$  (figure III.37). On assimile le faisceau laser incident à un faisceau gaussien.



**Figure III.37** – Schéma du problème thermique. Un faisceau laser de rayon  $w_0$  est incident sur un film d'épaisseur  $h$  supporté par un substrat solide absorbant, d'épaisseur  $e$  et de coefficient d'absorption  $\alpha$ .

La distribution d'intensité  $I(r, z)$  dans le substrat ( $z < 0$ ), s'écrit :

$$I(r, z) = \frac{2P}{\pi w_0^2} e^{-\frac{2r^2}{w_0^2} + \alpha z} \quad (\text{III.66})$$

### III.4 Contrôle du film par effet thermocapillaire

où  $P$  est la puissance du faisceau laser,  $w_0$  est la largeur du faisceau laser. Dans cette expression, on suppose que la largeur du faisceau est constante et égale à  $w_0$ . Cette hypothèse est correcte car en pratique, la distance typique sur laquelle le faisceau est absorbé ( $\alpha^{-1} \leq 10 \mu\text{m}$ ) est beaucoup plus petite que la distance typique sur laquelle le profil transversal du faisceau varie, soit la longueur de Rayleigh  $z_R$ . On résume les notations du problème dans le tableau III.1. Les valeurs indiquées correspondent aux valeurs des expériences effectuées.

Epaisseur du film	$h \leq 1 \mu\text{m}$
Epaisseur du substrat	$e \approx 3 \text{ mm}$
Conductivité thermique du substrat	$\Lambda_s = 1.2 \text{ W/m/K}$
Conductivité thermique du liquide	$\Lambda_f = 0.14 \text{ W/m/K}$
Rayon du faisceau laser	$1.5 \mu\text{m} \leq w_0 \leq 116 \mu\text{m}$
Viscosité	$\eta = 0.02 \text{ Pa.s}$
Tension de surface	$\gamma = 20 \text{ mN/m}$
Variation de la tension de surface avec la température	$\gamma_\theta = -8.10^{-5} \text{ N/m/K}$
Puissance laser	$0.1 \text{ mW} \leq P \leq 5 \text{ mW}$
Coefficient d'absorption	$\alpha > 10^5 \text{ m}^{-1}$

**Tableau III.1** – Résumé des notations et des ordres de grandeurs du problème thermocapillaire.

Afin d'évaluer l'importance du transport convectif de chaleur dans le film, on calcule le nombre de Péclet thermique :  $Pe = ul_T/\kappa_l$ . Où  $u$  est la vitesse typique du fluide,  $l_T$  est la largeur sur laquelle le profil de température s'établit et  $\kappa_l$  la diffusivité thermique du liquide. On obtient  $Pe \approx 10^{-5}$ , le transfert thermique s'effectue donc uniquement par conduction. Par ailleurs, le temps caractéristique de chauffage  $l_T^2/\kappa_s$ , (où  $\kappa_s$  est la diffusivité thermique du substrat) est de quelques millisecondes. Ce temps est très faible devant la durée typique des démouillages observés dans nos expériences. Par conséquent, les champs de température dans le film et dans le substrat, notés respectivement  $\theta_f$ ,  $\theta_s$  obéissent à l'équation de diffusion de la chaleur dans le régime stationnaire [56] :

$$\nabla^2 \theta_f = 0 \quad \text{pour } 0 < z \leq h \quad (\text{III.67})$$

$$\Lambda_s \nabla^2 \theta_s = -\alpha I(r, z) \quad \text{pour } z \leq 0 \quad (\text{III.68})$$

Où  $\Lambda_s$  est la conductivité thermique du substrat et  $\nabla^2$  désigne l'opérateur laplacien. Le second terme de l'équation (III.68),  $\alpha I(r, z)$ , correspond à l'énergie absorbée dans le substrat par unité de volume et par unité de temps. Notons que dans l'écriture de ces équations, on néglige la variation de la conductivité et de la diffusivité avec la température.

Compte tenu de la symétrie cylindrique du problème, la méthode classique de résolution utilise les transformées de Fourier-Bessel [54]. Cette transformée est l'analogue de la transfor-

mée de Fourier classique, mais elle tient compte de la symétrie cylindrique par l'intermédiaire de la fonction de Bessel d'ordre zéro  $J_0$ . La température est décomposée sur les modes propres  $\tilde{\theta}(k, z)$  définis par :

$$\tilde{\theta}(k, z) = \int_0^\infty \theta(r, z) J_0(kr) r dr \quad (\text{III.69})$$

**Conditions aux limites :**

Puisque la longueur d'absorption  $\alpha^{-1}$  est très faible devant l'épaisseur du substrat  $e$ , il est approprié de considérer le substrat comme un milieu semi-infini. On écrit donc la condition :  $\theta_s(k, z) \rightarrow \theta_0$  lorsque  $z \rightarrow -\infty$ . De plus, on écrit la continuité du flux thermique à l'interface film/substrat :  $\Lambda_s \partial_z \theta_s(r, z) = \Lambda_f \partial_z \theta_f(r, z)$  en  $z = 0$ . Enfin, on suppose qu'il n'y a pas de pertes thermiques à la surface libre du film :  $\partial_z \theta_f(r, z) = 0$  en  $z = h$ .

En calculant la transformée de Fourier-Bessel inverse, on en déduit l'élévation de température  $\Delta\theta$  à la surface libre du film (en  $z = h$ ). On obtient :

$$\Delta\theta(r) = \theta_f(r, z = h) - \theta_0 = \frac{\alpha P}{2\pi} \int_0^\infty e^{-\frac{k^2 w_0^2}{8}} \frac{1}{\alpha + k} \frac{1}{\Lambda_s + \Lambda_f \tanh kh} \frac{1}{\cosh kh} J_0(kr) dk \quad (\text{III.70})$$

Pratiquement, compte tenu de la gaussienne dans l'intégrand, seul les modes tels que  $k \leq 1/w_0$  contribuent à l'élévation de température. Dans la limite  $w_0 \gg \alpha^{-1}$  et  $w_0 \gg h$ , l'intégrale de l'équation (III.70) s'approxime donc à

$$\int_0^\infty e^{-\frac{k^2 w_0^2}{8}} \frac{1}{\alpha \Lambda_s} J_0(kr) dk \quad (\text{III.71})$$

Or cette intégrale est tabulée<sup>8</sup>, l'élévation de température s'écrit donc :

$$\Delta\theta(r) = \frac{P}{\sqrt{2\pi} \Lambda_s w_0} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} I_0 \left( \frac{r^2}{w_0^2} \right) \quad (\text{III.72})$$

où  $I_0$  est la fonction de Bessel modifiée de première espèce et d'ordre zéro.

L'élévation de la température à la surface libre ne dépend ni du coefficient d'absorption, ni de l'épaisseur du film. Par ailleurs, on vérifie que la température en profondeur du film ( $0 < z < h$ ) est identique à celle calculée à la surface libre ( $z = 0$ ). Autrement dit, il n'existe pas de gradient vertical de température dans le film. L'effet thermocapillaire observé est uniquement dû à un gradient de température horizontal. Les conditions dans lesquelles on observe l'effet thermocapillaire sont donc très différentes des conditions rencontrées dans

---

8. On a :  $\int_0^\infty e^{-\frac{k^2 w_0^2}{8}} J_0(kr) dk = \frac{\sqrt{2\pi}}{w_0} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} I_0 \left( \frac{r^2}{w_0^2} \right)$

les expériences visant à étudier l'instabilité de Bénard-Marangoni. En effet, dans ces expériences, le gradient de température imposé à une couche horizontale de fluide est vertical [57].

Dans notre cas, il est important de remarquer qu'il n'existe aucun couplage entre la déformation de la surface libre et l'élévation de la température. La température à la surface libre du film est constante au cours de l'amincissement du film. Notons que la courbure de la surface libre sous le faisceau agit comme une lentille divergente pour le faisceau réfracté par la surface libre et entraîne un éventuel couplage entre la déformation de la surface libre et l'élévation de la température. En effet, cet effet augmente la largeur du faisceau absorbé dont dépend l'élévation de température. Cependant, compte tenu de la très faible propagation du faisceau dans le film et dans le substrat, cet effet est totalement négligeable. Notons que le gradient radial de température entraîne un gradient d'indice optique dans le film et amplifie également la divergence du faisceau réfracté, cet effet est connu sous le nom de lentille thermique. Pour la même raison que celle évoquée précédemment, l'effet de lentille thermique est négligeable dans notre cas.

L'élévation maximale de température (en  $r = 0$ ) s'écrit :

$$\Delta\theta_{max} = \frac{P}{\sqrt{2\pi}\Lambda_s w_0} \quad (\text{III.73})$$

Dans le cas d'un substrat en verre, on a  $\Lambda_s = 1.2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . Pour un faisceau incident tel que  $P = 1 \text{ mW}$  et  $w_0 = 100 \mu\text{m}$ , on obtient  $\Delta\theta_{max} = 3.3^\circ\text{C}$ .

**Remarque :** Dans cette étude, nous avons négligé les pertes thermiques à la surface libre du film. Ainsi, l'élévation maximale de température calculée d'après (III.73) est une majoration de la valeur réelle.

D'après l'expression (III.72), pour  $r < w_0$ , la température décroît suivant une fonction gaussienne,  $\Delta\theta \sim \exp -r^2/w_0^2$ . Pour  $r > w_0$ , la température décroît lentement en  $\Delta\theta \sim 1/r$ . Le profil de la température à l'interface n'est pas identique au profil de l'intensité du faisceau laser, il ne s'agit pas d'une gaussienne. Cependant, la distance caractéristique sur laquelle ce profil varie est bien la taille du faisceau  $w_0$ .

#### 4.2.2 Problème hydrodynamique

Dans la partie qui suit, on cherche à déterminer le profil du film  $h(r, t)$  lorsque l'on impose le champ de température  $\theta(r)$  calculé précédemment à la surface libre du film :

$$\theta(r) - \theta_0 = \theta_{max} e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} I_0 \left( \frac{r^2}{w_0^2} \right) \quad \text{avec} \quad \theta_{max} = \frac{P}{\sqrt{2\pi} \Lambda_s w_0} \quad (\text{III.74})$$

On rappelle que l'on s'intéresse au cas d'un film mince dont l'épaisseur initiale  $h_0$  est très faible devant la largeur du faisceau laser  $w_0$ . Or d'après (III.74), la longueur caractéristique sur laquelle le profil de température varie est égale à  $w_0$ . La longueur transversale caractéristique sur laquelle le liquide est entraîné est donc largement supérieure à l'épaisseur du film, dans ce cas les équations de Navier-Stokes qui gouvernent l'écoulement se simplifient fortement. Il s'agit de l'approximation de lubrification. En coordonnées cylindriques, les équations s'écrivent :

$$-\frac{\partial p}{\partial r} + \eta \frac{\partial^2 V_r}{\partial z^2} = 0 \quad (\text{III.75})$$

$$\frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (\text{III.76})$$

**Remarque :** Nous avons vu que l'élévation maximale de température dans le film est de seulement quelques degrés. On peut supposer que la viscosité et la masse volumique du liquide sont des constantes. Seule la dépendance de la tension de surface avec la température est prise en compte dans le problème.

Si on néglige l'effet de la gravité, la pression dans le film dépend uniquement de  $r$ , la vitesse du fluide est purement radiale. D'après (III.75), le profil des vitesses radiales est parabolique. On détermine ce profil grâce aux conditions aux limites suivantes :

A l'interface film/substrat ( $z = 0$ ), on suppose qu'il n'existe aucun glissement entre le fluide et la paroi :  $V_r = 0$ . A la surface libre ( $z = h$ ) doit être vérifiée la condition à la limite (III.65), la contrainte tangentielle globale doit être nulle. Dans la limite où les pentes sont faibles ( $\partial_r h \ll 1$ ), cette condition s'écrit :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial r} - \eta \frac{\partial V_r}{\partial z} \Big|_{z=h} = 0 \quad (\text{III.77})$$

En utilisant ces conditions aux limites, on calcule le profil de vitesse radiale :

$$V_r(z) = \frac{1}{\eta} \left[ \frac{\partial p}{\partial r} \left( \frac{z^2}{2} - hz \right) + \frac{\partial \gamma}{\partial r} z \right] \quad (\text{III.78})$$

### III.4 Contrôle du film par effet thermocapillaire

**Remarque :** Lorsque l'écoulement dans le film est stationnaire, quel que soit  $r$ , le débit dans le film doit être nul,  $\int_0^h V_r(z) dz = 0$ . Dans ce cas, la vitesse radiale s'écrit :  $V_r = \frac{1}{2\eta} \frac{\partial \gamma}{\partial r} z \left( \frac{3z}{2h} - 1 \right)$ . Les extremums de la vitesse du fluide sont atteints en  $z = h$  (à la surface libre) et en  $z = h/3$ . Le rapport des vitesses extremums est égale à  $-3$ . On retrouve le rapport observé expérimentalement sur la figure III.35.

Pour déterminer la vitesse du fluide, il est nécessaire de connaître le gradient radial de pression. La pression dans le film s'obtient à partir de l'écriture des contraintes normales exercées sur la surface libre :

$$p - p_0 = \gamma \kappa \quad (\text{III.79})$$

où  $p_0$  est la pression atmosphérique. Dans cette expression on a négligé le terme de pression hydrostatique  $\rho gh$  par rapport au terme de pression de Laplace  $\gamma \kappa$ .  $\kappa = \frac{1}{r} \partial_r \frac{r \partial_r h}{\sqrt{1 + (\partial_r h)^2}}$  est le double de la courbure moyenne de l'interface en coordonnées cylindriques. Le gradient radial de pression dans l'expression (III.78) dépend donc du gradient de la courbure de la surface libre. Au premier instant de l'effet thermocapillaire, lorsque la surface libre n'est pas encore déformée ( $z = h$ ), le gradient de pression est nul et le profil des vitesses est linéaire, il s'agit d'un écoulement de cisaillement. Puis, lorsque la surface libre se déforme, il existe un gradient radial de pression, l'écoulement est la superposition d'un écoulement de cisaillement et d'un écoulement de Poiseuille. L'écoulement de Poiseuille induit par la déformation de la surface libre s'oppose à celui généré par l'effet thermocapillaire. Il s'agit du contre-écoulement.

On détermine les variations temporelles de l'épaisseur du film grâce à l'équation de continuité. En coordonnées cylindriques, l'équation de continuité s'écrit :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \langle V_r \rangle_z h) = 0 \quad (\text{III.80})$$

Le gradient de débit volumique doit entraîner une variation d'épaisseur de hauteur du film par conservation et incompressibilité de la matière. D'après (III.78), l'équation de continuité s'écrit :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{\eta} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[ r h^2 \left( \frac{1}{2} \frac{\partial \gamma}{\partial r} - \frac{h}{3} \frac{\partial p}{\partial r} \right) \right] = 0 \quad (\text{III.81})$$

Où  $p$  est définie d'après (III.79) où la tension de surface  $\gamma$  est une fonction de la position  $r$  telle que :

$$\frac{\partial \gamma}{\partial r} = \gamma_\theta \frac{\partial \theta}{\partial r} \quad (\text{III.82})$$

Où  $\gamma_\theta$  désigne la variation de la tension de surface avec la température ( $\gamma_\theta < 0$ ).

Pour discuter de l'importance du contre-écoulement dû à la pression capillaire par rap-

port à l'écoulement généré en surface par l'effet thermocapillaire, on adimensionne l'équation (III.81). Pour cela, on utilise les variables adimensionnées suivantes :

$$R = \frac{r}{w_0}, \quad H = \frac{h}{h_0}, \quad \Theta = \frac{\theta - \theta_0}{\theta_{max}} \quad \text{et} \quad T = \frac{\gamma_0 h_0^3 t}{3\eta w_0^4} \quad (\text{III.83})$$

Et en supposant que  $\partial h / \partial r \ll 1$ , on obtient :

$$\partial_T H + A \frac{1}{R} \partial_R (RH^2 \partial_R \Theta) - \frac{1}{R} \partial_R \left( RH^3 \partial_R \left( \frac{1}{R} \partial_R (R \partial_R H) \right) \right) = 0 \quad (\text{III.84})$$

où

$$A = \frac{3}{2} \frac{\theta_{max}}{\gamma_0} \gamma_\theta \frac{w_0^2}{h_0^2} \quad (\text{III.85})$$

est un nombre sans dimension. Ce nombre dépend de l'élévation de température  $\theta_{max}$ , de la tension de surface  $\gamma_0$ , de la variation de la tension de surface avec la température  $\gamma_\theta$  et du rapport des deux longueurs du problème. En fonction de la valeur de  $A$ , l'effet du contre-écoulement (dû à la pression capillaire) sur l'amincissement du film au cours du temps est plus ou moins important. Le cas le plus simple à décrire correspond à  $|A| \gg 1$ . On peut imaginer atteindre ce cas de deux façons : lorsque pour une largeur de faisceau donnée, l'élévation de température est suffisamment importante, ou lorsque pour une élévation de température donnée, la largeur du faisceau est suffisamment grande. Dans ces deux cas, le contre-écoulement est négligeable, on peut décrire la variation du profil en supprimant le dernier terme de l'équation (III.84). Dans ce cas, la déformation de l'interface n'influence pas la vitesse à laquelle s'amincit le film.

Lorsque  $|A| \gg 1$ , on peut facilement calculer la vitesse à laquelle varie l'épaisseur du film au centre du faisceau ( $R = 0$ ). D'après (III.74), lorsque  $R \ll 1$ , la température varie comme une fonction gaussienne,  $\Theta \approx e^{-R^2}$ . Et en tenant compte de la parité du profil, on obtient d'après (III.84) :

$$\partial_T H - 4AH^2 = 0 \quad (\text{III.86})$$

Soit avec les variables non adimensionnées :

$$\partial_t h = \frac{2\theta_{max}\gamma_\theta}{w_0^2\eta} h^2 \quad (\text{III.87})$$

Puisque  $\gamma_\theta < 0$ , on a bien une diminution de l'épaisseur au cours du temps. L'épaisseur du film décroît de moins en moins vite au cours du temps et tend asymptotiquement vers zéro,  $h(t) \propto 1/t$ .

Dans le cas où  $|A| \leq 1$ , le contre-écoulement induit par les effets capillaires n'est plus

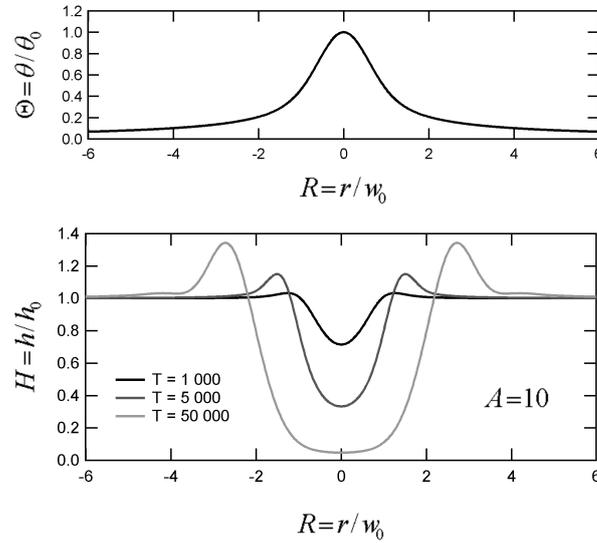
négligeable par rapport à l'effet moteur thermocapillaire. En effet, au premier instant, l'interface est parfaitement horizontale, la vitesse d'amincissement du film est donc identique à celle calculée pour  $|A| \gg 1$ . Mais lorsque l'épaisseur du film diminue localement, le gradient de pression dû à la courbure de l'interface crée un contre-écoulement qui s'oppose à l'effet thermocapillaire. Ce contre-écoulement va sensiblement ralentir la vitesse d'amincissement du film. Puisque la vitesse à laquelle varie l'épaisseur du film dépend de la forme de l'interface, il n'est plus possible de calculer directement la vitesse  $\partial_t h$  comme précédemment. Une question intéressante est de savoir s'il existe un état stationnaire du problème, c'est-à-dire s'il existe un profil pour lequel le contre-écoulement compense exactement l'écoulement en surface. D'après (III.84), ce profil doit vérifier l'équation :

$$A\partial_R\Theta = H\partial_R\left(\frac{1}{R}\partial_R(R\partial_R H)\right) \quad (\text{III.88})$$

Le terme de gauche correspond à l'effet moteur, il est positif quel que soit  $R$ . En effet, la température est une fonction monotone décroissante de  $R$ , l'effet thermocapillaire tend à expulser la matière vers l'extérieur quel que soit  $R$ . Le terme de droite correspond au contre-écoulement. Son signe est identique à celui du gradient de la courbure. Or il n'existe pas de profil tel que le gradient de sa courbure soit de même signe quel que soit  $R$ . Autrement dit, la pression capillaire ne pourra jamais compenser l'écoulement induit par l'effet thermocapillaire. Il n'existe pas d'état stationnaire possible. Ainsi, même si l'on applique un faible gradient de température à la surface libre ( $|A| \ll 1$ ), l'épaisseur du film va toujours décroître et tendre vers zéro.

Pour connaître les profils de déformation de la surface libre induit par l'effet thermocapillaire, on résout numériquement l'équation différentielle (III.84). On calcule pas à pas le profil en utilisant la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4. Dans un premier temps, nous allons étudier le cas simple où  $|A| \gg 1$ . Puis nous étudierons le cas plus complexe où  $|A| < 1$ .

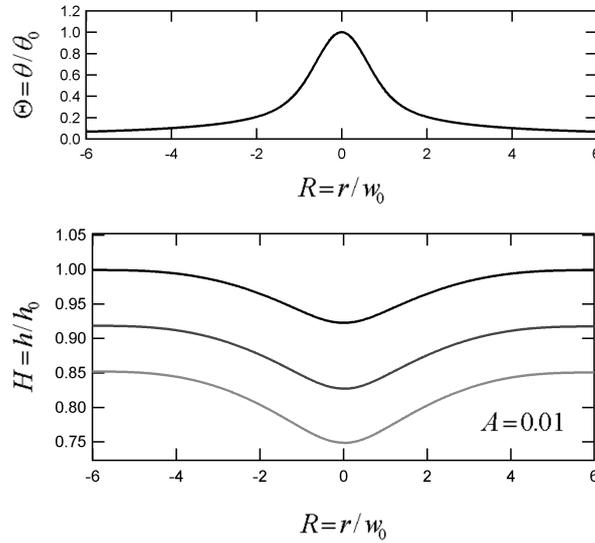
Sur la figure III.38, on représente les profils  $H(R)$  obtenus pour  $A = 10$  à trois différents instants. Le profil de la température  $\Theta$  utilisé pour calculer ces profils est également représenté sur la figure. Il s'agit du profil de température défini d'après l'équation (III.74). Dans un premier temps, un creux se forme uniquement sous le faisceau,  $|r| \leq 0$ . La matière prélevée au centre s'accumule en périphérie sous la forme d'un bourrelet. Puis lorsque l'épaisseur du film devient très faible, la largeur du creux s'agrandit. Il existe toujours un bourrelet en périphérie. Grâce à la simulation, on peut suivre l'évolution au cours du temps de l'épaisseur du film en  $R = 0$ . On vérifie la relation (III.86) calculée précédemment. On vérifie également la relation linéaire entre la vitesse d'amincissement et l'élévation de la température.



**Figure III.38** – Profils  $H(R)$  obtenus en calculant numériquement l'équation différentielle (III.84) pour  $A = 10$ . On représente le profil de température  $\Theta(R)$  défini d'après l'équation (III.74), utilisé pour calculer ces profils.

Sur la figure III.39, on représente les profils  $H(R)$  obtenus pour  $A = 0.01$  à trois différents instants. Dans ce cas, dès le début de la déformation de la surface libre, le creux formé ne se limite pas à la zone  $|r| < w_0$ . La matière prélevée au centre est redistribuée sur l'ensemble du film, il n'existe pas de bourrelet. La capillarité limite la courbure de la surface libre et ralentit fortement la vitesse à laquelle diminue l'épaisseur. En  $R = 0$ , la courbure n'évolue pas entre les différents profils. On peut suivre l'évolution de l'épaisseur du film en  $R = 0$  au cours du temps. Contrairement au cas  $A = 10$ , il n'existe pas de loi d'échelle de la forme  $\partial_T H \propto H^\alpha$ .

Cette analyse a montré que la forme de la surface libre et la vitesse à laquelle diminue l'épaisseur du film dépendent de la valeur d'un paramètre sans dimension  $A$ . Ce nombre sans dimension peut être vu comme le rapport entre l'écoulement en surface dû à l'effet thermocapillaire et l'écoulement en profondeur dû au gradient de la courbure de l'interface. Dans le cas où  $A \gg 1$ , le contre-écoulement est négligeable, il existe une loi d'échelle entre la vitesse d'amincissement et l'épaisseur du film ( $\dot{h} \propto h^2$ ). Dans le cas où  $A \ll 1$ , le contre-écoulement ralentit violemment le démouillage, la vitesse à laquelle s'amincit le film dépend de la forme de la surface libre. Quelle que soit la valeur de  $A$ , il n'existe pas d'état stationnaire, l'épaisseur du film tend toujours vers zéro. Dans le paragraphe suivant on présente les résultats des expériences effectuées avec un film mince dont on mesure l'épaisseur  $h(t)$  au cours du démouillage.



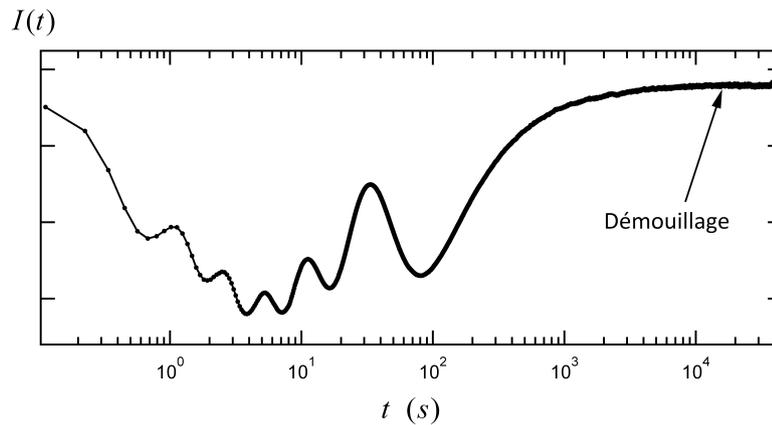
**Figure III.39** – Profils  $H(R)$  obtenus en calculant numériquement l'équation différentielle (III.84) pour  $A = 0.01$ . On représente le profil de température  $\Theta(R)$  défini d'après l'équation (III.74), utilisé pour calculer ces profils.

### 4.2.3 Résultats expérimentaux

Dans cette partie nous présentons les résultats expérimentaux obtenus avec le montage de la figure III.36. On focalise un faisceau laser sur un film mince déposé sur un substrat absorbant. La mesure de l'intensité du faisceau réfléchi permet de suivre l'évolution de l'épaisseur du film au cours du temps. Tous les résultats présentés sont obtenus pour le même couple liquide/substrat. Le liquide est une huile silicone de viscosité  $\eta = 20$  mPa.s, de tension de surface à  $20^\circ\text{C}$ ,  $\gamma = 20.6$  mN/m et dont la variation avec la température est  $\gamma_\theta = -8.10^{-5}$  N/m/K. Le substrat utilisé est en verre. La conductivité thermique du substrat est  $\Lambda_s \approx 1.2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ . On effectue des mesures pour des largeurs de faisceau laser  $w_0$  comprises entre  $1.5 \mu\text{m}$  et  $116 \mu\text{m}$  et pour des puissances optiques  $P$  comprises entre  $0.13$  et  $5$  mW.

La figure III.40 représente l'évolution de l'intensité  $I$  mesurée au cours du temps pour  $w_0 = 40 \mu\text{m}$  et  $P = 1$  mW. L'épaisseur initiale du film est  $h_0 \approx 1.35 \mu\text{m}$ . L'intensité oscille de plus en plus lentement jusqu'à tendre vers une valeur maximale. Les oscillations correspondent aux interférences entre les réflexions aux interfaces air/film et film/substrat. La variation d'épaisseur nécessaire pour effectuer une période d'oscillation est  $\lambda/2n$ , où  $n$  est l'indice optique du film. Dans notre cas  $n_{\text{huile}} = 1.40$ , donc  $\lambda/2n = 226 \text{ nm}$ . Aux temps longs, l'intensité n'oscille plus et tend vers une valeur maximale car lorsque l'épaisseur du film tend vers zéro les interférences deviennent constructives. En comptant le nombre d'oscillations depuis la fin du signal, on peut connaître l'épaisseur absolue en chaque instant. Notons que le contraste du signal n'est pas constant. Le contraste diminue jusqu'à environ

$t \approx 5 \text{ s}$ , puis augmente jusqu'à la fin. Cette variation résulte de la variation de la courbure de la surface libre sous le faisceau. La courbure de la surface libre fait converger le faisceau réfléchi à l'interface air/film et à l'inverse, joue le rôle de lentille divergente pour le faisceau réfléchi à l'interface film/substrat. Or le contraste de l'intensité réfléchie  $I$  est sensible au rapport des largeurs des deux faisceaux réfléchis. Ainsi, au temps  $t \approx 5 \text{ s}$ , le contraste est minimum car la courbure passe par un maximum. Les variations du contraste observées sont cohérentes avec les profils calculés sur la figure III.38 correspondant au cas  $A = 10$ . En effet, dans ce cas, le film est creusé sur la largeur  $w_0$ , la courbure vue par le faisceau laser est donc importante. D'après les profils de la figure III.38, la courbure passe par un maximum lorsque  $h_{r=0} = h_0/2$ , comme sur la figure III.40. En effet, d'après l'équation (III.84), pour  $A \gg 1$ , on peut facilement montrer que la courbure est maximum lorsque  $h_{r=0} = h_0/2$ . Notons que cette propriété est indépendante du profil de température choisi.



**Figure III.40** – Variation de l'intensité au cours du temps de la réflexion du faisceau laser à l'origine de l'effet thermocapillaire. La largeur et la puissance du faisceau incident sont respectivement  $w_0 = 40 \mu\text{m}$ ,  $P = 1 \text{ mW}$ . Les oscillations résultent de la diminution de l'épaisseur du film sous le faisceau. La variation du contraste de l'intensité est due à la variation de la courbure de la surface libre également observée sur les profils numériques de la figure III.38.

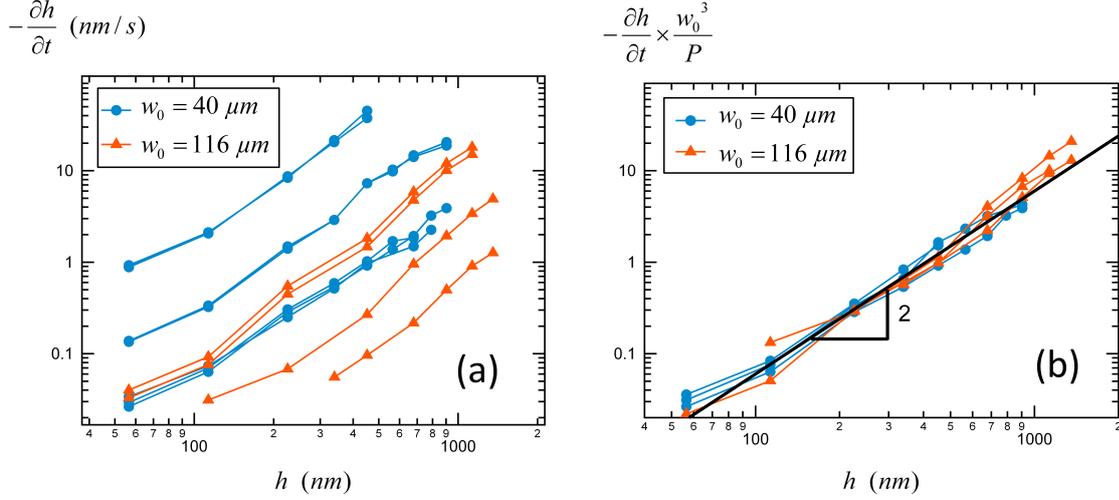
Sur la figure III.41-a, on représente la vitesse à laquelle le film s'amincit en fonction de son épaisseur dans des expériences faites dans différentes conditions. Les courbes sont obtenues avec les largeurs de faisceaux  $w_0 = 40 \mu\text{m}$  (disques) et  $w_0 = 116 \mu\text{m}$  (triangles). Pour une largeur de faisceau donnée, les courbes correspondent à différentes puissances incidentes  $P$ . L'épaisseur initiale  $h_0$  des films testés varie entre 500 et 1400 nanomètres. A largeur égale, la diminution de l'épaisseur du film est plus rapide pour la puissance la plus grande. Sur la figure III.41-b, on affiche les courbes de la figure III.41-b normalisées par  $P/w_0^3$ . Toutes les courbes se superposent sur une courbe maîtresse de pente 2. Cette normalisation est en

### III.4 Contrôle du film par effet thermocapillaire

accord avec l'équation (III.87), que l'on rappelle ci-dessous :

$$\partial_t h = \frac{2\theta_{max}\gamma\theta}{w_0^2\eta} h^2 \quad (\text{III.89})$$

où  $\theta_0$ , l'élévation maximale de la température à la surface libre, et s'écrit d'après (III.74)



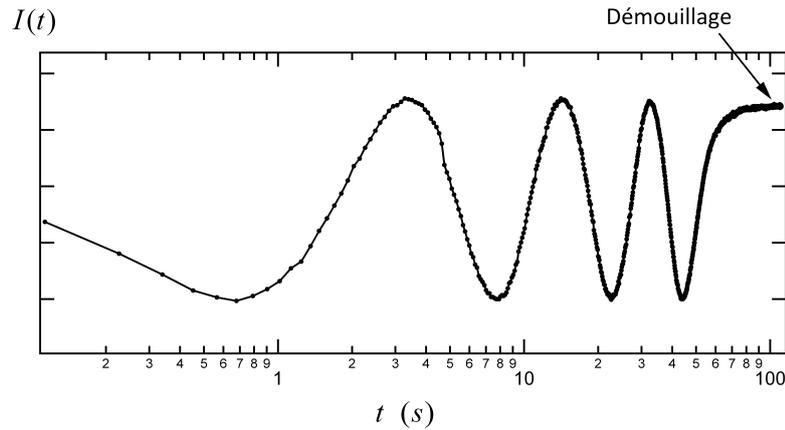
**Figure III.41** – (a) : Vitesse d'amincissement du film en fonction de son épaisseur. L'effet thermocapillaire produit et la mesure de l'épaisseur locale du film sont obtenus avec un faisceau laser de largeur  $w_0 = 40 \mu\text{m}$  (disques) et  $w_0 = 116 \mu\text{m}$  (triangles). Pour une largeur de faisceau donnée, les différentes courbes correspondent à différentes puissances incidentes  $P$ . (b) : Vitesse d'amincissement du film normalisée par  $P/w_0^3$  en fonction de son épaisseur. La superposition des courbes sur une courbe maîtresse est en accord avec les relations déduites du calcul thermique et du calcul hydrodynamique lorsque  $A \gg 1$ .

$\theta_{max} = P/\sqrt{2\pi}\Lambda_s w_0$ . On a donc bien la relation  $\partial_t h w_0^3 / P \propto h^2$ .

La normalisation des courbes vérifie les hypothèses avec lesquelles a été effectué le calcul thermique, soit :  $\alpha^{-1} \ll w_0$ . On rappelle que  $\alpha^{-1}$  désigne la longueur d'absorption thermique. La largeur du faisceau  $w_0$  fixe la taille caractéristique de décroissance de la température à la surface libre. On rappelle que la relation (III.89) est valable uniquement pour  $A \gg 1$ , c'est-à-dire lorsque la capillarité ne permet pas de ralentir de façon significative la diminution de l'épaisseur du film induite par l'effet thermocapillaire. D'après les propriétés de l'huile silicone et les conditions dans lesquelles sont effectuées les mesures ( $P \leq 0.13 \text{ mW}$ ,  $w_0 \geq 40 \mu\text{m}$ ,  $h_0 \leq 1.4 \mu\text{m}$ ), on vérifie que le nombre sans dimension  $A$  associé à chaque mesure est supérieur à 2,4. Il est donc cohérent d'observer la relation (III.89) sur ces mesures.

Lorsque l'on réduit suffisamment la largeur du faisceau ( $w_0 \leq 3.5 \mu\text{m}$ ), les résultats obtenus sont complètement différents. La figure III.42 représente la variation de l'intensité au cours du temps mesurée avec un faisceau de largeur  $w_0 = 1.5 \mu\text{m}$ . Contrairement à la fi-

gure III.40, le contraste est maximum quelle que soit l'épaisseur du film. Ceci nous indique que la courbure de la surface libre est relativement faible. Le film se creuse donc sur une largeur supérieure à la taille du faisceau  $w_0$ . Ces observations sont en accord avec les profils affichés sur la figure III.39 correspondant au cas  $A = 0.01$ . En effet, dans ce cas, le fluide est déplacé sur une largeur supérieure à  $w_0$ . La courbure vue par le faisceau est donc très faible et ne permet pas de diminuer le contraste du signal.

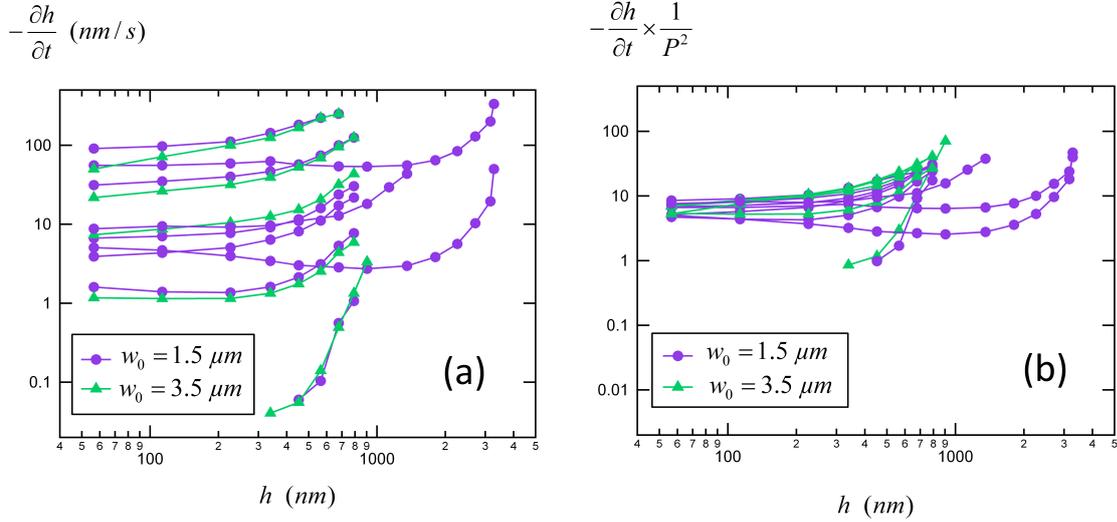


**Figure III.42** – Variation de l'intensité au cours du temps de la réflexion du faisceau laser à l'origine de l'effet thermocapillaire. La largeur et la puissance du faisceau incident sont respectivement  $w_0 = 1.4 \mu\text{m}$ ,  $P = 1 \text{ mW}$ . L'épaisseur initiale  $h_0$  du film est de  $850 \text{ nm}$ . L'épaisseur du film diminue progressivement jusqu'à tendre vers zéro. Contrairement au cas précédent (figure III.40), le contraste du signal est constant.

Comme précédemment, on peut tracer la vitesse d'amincissement du film en fonction de l'épaisseur du film (figure III.43). On effectue les mesures avec un faisceau laser de largeur  $w_0 = 1.5 \mu\text{m}$  (disques) et  $w_0 = 3.5 \mu\text{m}$  (triangles). Pour une largeur de faisceau donnée, les courbes correspondent à différentes puissances incidentes  $P$ . La vitesse d'amincissement du film ne suit plus la même loi précédente  $\partial_t h \propto h^2$ . A puissance  $P$  fixée, la vitesse d'amincissement ne dépend plus de la largeur  $w_0$  du faisceau. Par ailleurs, d'après la figure III.43-b, la vitesse d'amincissement ne dépend plus linéairement de la puissance incidente mais varie en  $\partial_t h \propto P^2$ . Ces observations sont cohérentes avec les simulations numériques obtenues dans le cas  $A \ll 1$ . L'évolution de la vitesse d'amincissement en fonction de l'épaisseur, obtenue grâce à la résolution numérique de l'équation III.84, est comparable à celle observée expérimentalement dans la figure III.43.

### Conclusion

Dans cette partie, nous avons mis en évidence un effet Marangoni induit par un gradient de température. Dans le cas d'un chauffage de la surface libre par le substrat, cet effet thermocapillaire amincit progressivement le film jusqu'au démouillage. En résolvant les équations



**Figure III.43** – (a) : Vitesse d'amincissement du film en fonction de son épaisseur avec  $w_0 = 1.5 \mu\text{m}$  (disques) et  $w_0 = 3.5 \mu\text{m}$  (triangles). Pour une largeur de faisceau donnée, les différentes courbes correspondent à différentes puissances incidentes  $P$ . (b) Vitesse d'amincissement du film normalisée par  $P^2$ .

thermiques et hydrodynamiques, nous avons mis en évidence deux régimes de démouillage. Les expériences effectuées sont en accord avec les prédictions.

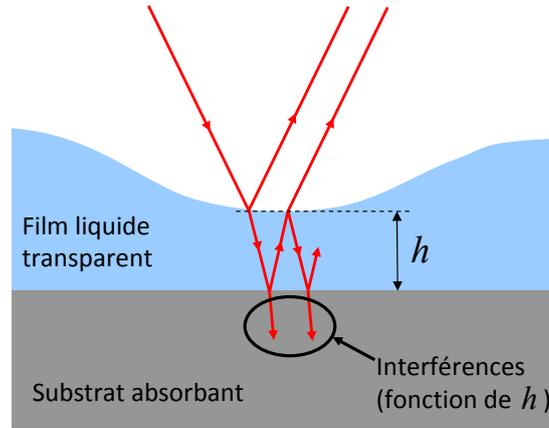
**Remarque :**

Nous allons voir qu'un couplage entre l'élévation de température et la déformation de la surface existe lorsque le substrat est très réfléchissant.

Tous les résultats présentés précédemment ont été obtenus avec le même substrat. Il s'agit d'un substrat en verre, dont l'indice optique est environ  $n_s \approx 1.53$ . On rappelle l'indice optique du film (une huile silicone),  $n = 1.40$ . Ainsi, les réflexions du faisceau laser aux interfaces air/film et film/substrat sont relativement faibles. La puissance du faisceau laser dans le substrat est donc très proche de celle du faisceau incident dans l'air, et cette puissance est indépendante de l'épaisseur du film. Il n'existe aucun couplage entre l'épaisseur du film et l'élévation de température. Lorsqu'au contraire l'indice optique du substrat est très supérieur à celui de l'huile, la puissance transmise est sensiblement inférieure à la puissance incidente et surtout elle dépend de l'épaisseur du film. Cette dépendance provient des interférences résultant des réflexions multiples dans le film (figure III.44).

Si l'on considère uniquement les deux premiers rayons (comme sur le schéma de la figure III.44), la puissance transmise au substrat est de la forme :

$$P_{\text{substrat}} = P_0 t_1^2 t_2^2 (1 - r_1 r_2 \cos \phi) \quad (\text{III.90})$$

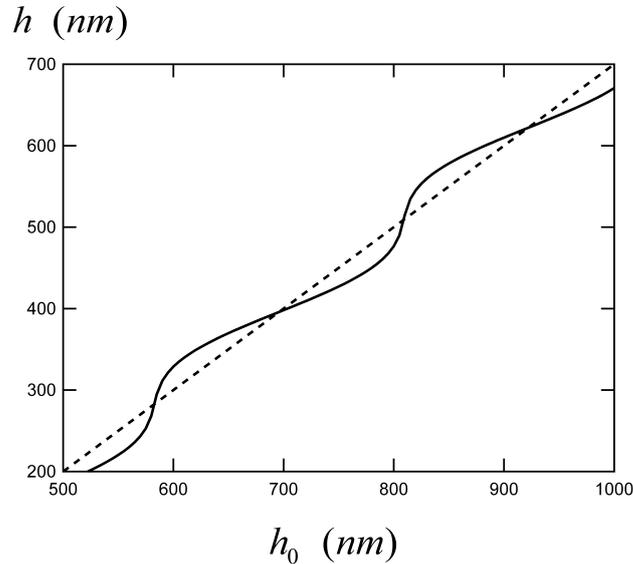


**Figure III.44** – Lorsque la réflexion du faisceau sur le substrat devient importante, la puissance lumineuse absorbée dans le substrat résulte des interférences des réflexions multiples. Puisque l'état d'interférence dépend de l'épaisseur du film  $h$ , il existe un couplage entre l'élévation de température et l'épaisseur du film.

où  $P_0$  est la puissance du faisceau incident dans l'air,  $t_1, t_2$  sont les facteurs de transmission et  $r_1, r_2$  les facteurs de réflexion aux interfaces air/film et film/substrat.  $\phi$  est le déphasage introduit par le film d'épaisseur  $h$ ,  $\phi = 4\pi n h / \lambda$ . L'élévation de température, proportionnelle à la puissance absorbée dans le substrat, est donc une fonction périodique de l'épaisseur du film. Or l'élévation de température modifie l'épaisseur du film grâce à l'effet thermocapillaire. Les interférences introduisent donc un couplage. En notant  $\Delta h$ , la variation locale d'épaisseur produite par l'effet thermocapillaire lorsque  $P_{substrat}$  est maximum, l'épaisseur totale du film peut s'écrire comme la somme :

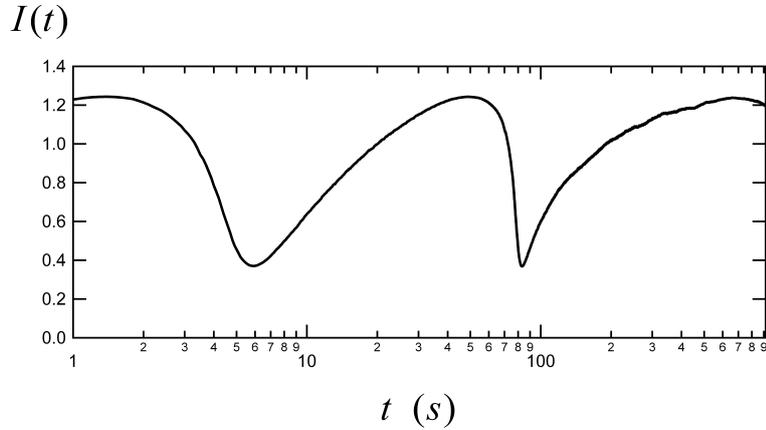
$$h = h_0 - \Delta h \left( 1 - r_1 r_2 \cos \left( 2h \frac{2\pi n}{\lambda} \right) \right) \quad (\text{III.91})$$

Avec  $h_0$ , l'épaisseur du film sans effet thermocapillaire et où l'on a tenu compte du fait que  $r_1 r_2 \ll 1$ . L'équation III.91 est une équation transcendante. L'épaisseur  $h$  ne peut pas être déterminée analytiquement. Sur la figure III.45, on trace en trait continu la valeur de  $h$ , calculée numériquement d'après (III.91), en fonction de l'épaisseur  $h_0$  pour  $\Delta h = 300 \text{ nm}$ ,  $\lambda = 633 \text{ nm}$ ,  $n = 1.4$  et  $r_1 r_2 = 0.1$ . L'épaisseur du film sous le faisceau ne varie pas linéairement avec l'épaisseur  $h_0$ . Lorsque la modification d'épaisseur a tendance à augmenter l'intensité absorbée (interférences constructives), l'effet thermocapillaire est renforcé : la vitesse à laquelle varie l'épaisseur augmente. À l'inverse, lorsque la modification d'épaisseur réduit l'intensité absorbée, la vitesse à laquelle varie l'épaisseur diminue. La courbe en pointillés, d'équation  $h = h_0 - \Delta h$ , correspond au cas où l'effet des interférences sur l'absorption du faisceau dans le substrat est nul, soit  $r_1 r_2 = 0$ . Lorsque l'on utilise la surface polie d'un wafer de silicium ( $n_s = 3.87$ ) comme substrat, la réflexion à l'interface film/substrat est très



**Figure III.45** – Variation de l'épaisseur locale  $h$  du film sous le faisceau laser en fonction de l'épaisseur initiale  $h_0$  dans le cas où l'effet thermocapillaire est modulé par les interférences dans le film. La droite en traits pointillés, d'équation  $h = h_0 - \Delta h$ , correspond au cas où les interférences ne modulent pas l'effet thermocapillaire.

importante. Dans ce cas, l'effet des interférences sur la puissance absorbée dans le substrat n'est pas négligeable. Il est possible d'observer le couplage expliqué précédemment. Sur la figure III.46, on représente l'intensité du faisceau laser réfléchi sur un film d'huile silicone qui s'étale sur un substrat en silicium. Comme précédemment, les oscillations observées correspondent à la variation d'épaisseur sous le faisceau. Cependant dans ce cas, le signal n'est pas symétrique. L'intensité varie lentement lorsqu'elle augmente et rapidement lorsqu'elle diminue, le signal possède une forme triangulaire. Ceci est dû au couplage expliqué précédemment entre les interférences et l'effet thermocapillaire. Lorsque le film s'étale, l'épaisseur  $h_0$  diminue. Or d'après la figure III.45, lorsque  $h_0$  diminue, l'épaisseur  $h$  sous le faisceau ne diminue pas régulièrement. C'est cette irrégularité qui rend le signal triangulaire. De plus, la triangularité du signal de la figure III.46 est en accord avec le sens vers lequel l'effet thermocapillaire déplace la surface libre. En effet, si l'on suppose que l'effet thermocapillaire augmente l'épaisseur du film au lieu de la diminuer, soit  $\Delta h < 0$ , l'intensité mesurée devrait augmenter plus rapidement qu'elle ne diminue. L'asymétrie du signal nous renseigne sur le sens vers lequel le fluide est déplacé avec l'effet thermocapillaire.



**Figure III.46** – Variation de l’intensité au cours du temps de la réflexion d’un faisceau laser sur un film d’huile qui s’étale sur la surface polie d’un wafer de silicium. Les interférences modulent la puissance absorbée dans le substrat et modifie le rythme auquel varie l’épaisseur du film sous le faisceau. Cette modulation explique la forme triangulaire du signal.

## 5 Résultats sur films minces

### 5.1 Condition limite hydrodynamique

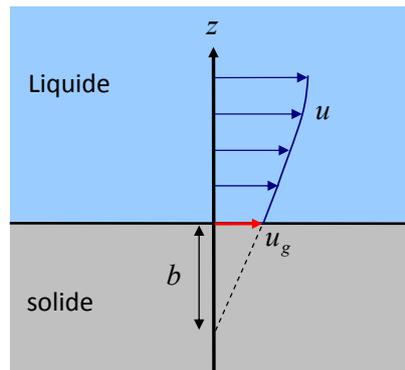
Pendant plusieurs siècles, l’étude de la mécanique des fluides s’est appuyée sur l’hypothèse selon laquelle lorsqu’un liquide coule sur une surface solide, les molécules liquides adjacentes au solide possèdent une vitesse relative nulle. Cette condition de non-glissement a été appliquée avec succès pour modéliser de nombreuses expériences macroscopiques mais ne possède pas de justification microscopique. Par conséquent, le succès de ce postulat de l’hydrodynamique ne reflète peut être pas toujours sa validité mais plutôt l’insensibilité des expériences. Au cours de ces dernières années, il y a eu un intérêt accru dans la détermination de la condition limite exacte.

Au-delà de l’aspect purement fondamental de l’étude de la condition limite, la compréhension et la maîtrise des phénomènes de glissement constituent un enjeu majeur dans les nouveaux domaines de la micro et nanofluidique [58]. En effet, un des points clefs de la microfluidique est l’importance accrue du rôle des surfaces par rapport à la situation non miniaturisée. Le transport et le mélange des liquides lorsque la taille du canal diminue représentent de véritables problèmes [59]. Ainsi, on conçoit que le glissement hydrodynamique entre un liquide et une surface solide puisse jouer un rôle important lors du passage à des échelles micrométriques.

Pour prendre en compte la possibilité d’un glissement liquide sur la surface, on introduit une condition limite, dit de glissement partiel, qui relie la vitesse du glissement au taux de cisaillement à la paroi :

$$u_g = b \frac{\partial u}{\partial z} \quad (\text{III.92})$$

où  $u_g$  est la vitesse de glissement à la paroi,  $\partial u/\partial z$ , le taux de cisaillement local et  $b$  est une longueur appelée longueur de glissement. Cette dernière représente la distance dans le solide à laquelle l'extrapolation linéaire du profil de vitesse s'annule (figure III.47). La condition standard de non-glissement correspond à  $b = 0$ . Plus généralement, la condition aux limites (III.92) traduit l'égalité entre la contrainte de cisaillement  $\eta\partial u/\partial z$  (où  $\eta$  est la viscosité du liquide) exercée par le liquide sur la paroi et la contrainte de frottement exercée par la paroi sur le liquide  $\kappa_f u_s$ , où  $\kappa_f$  est un coefficient de frottement interfacial. La longueur de glissement correspond alors au rapport entre le coefficient de frottement et la viscosité du liquide,  $b = \eta/\kappa_f$ . D'après cette interprétation, la condition aux limites (III.92) suppose donc que la force tangentielle par unité de surface exercée sur le solide est proportionnelle à la vitesse de glissement. Conventionnellement, une longueur de glissement positive est associée à une vitesse de glissement positive. Cette longueur peut éventuellement être négative et indiquerait un changement de signe de la vitesse du liquide  $u$  proche de la paroi.



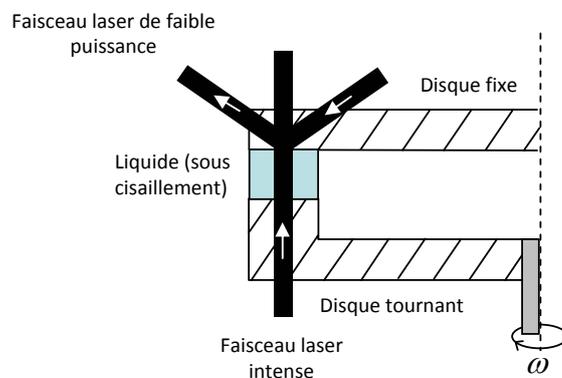
**Figure III.47** – Représentation schématique de la définition de la longueur de glissement  $b$ .

Sachant que nous souhaitons détecter un éventuel glissement à partir de la mesure des fluctuations de la surface libre d'un film mince, nous nous sommes intéressés aux études dans lesquelles un glissement a déjà été observé dans des conditions de mouillage total. Conformément aux études théoriques, la majorité des études expérimentales [60, 61] montre que les propriétés de mouillage du liquide sur le solide influence le glissement et que celui-ci devient nul lorsque le mouillage devient total. Dans cette partie, nous allons présenter une méthode expérimentale particulière de détection du glissement. Cette technique de FRAP<sup>9</sup> développée par Pit, Hervet et Léger [62–64] a permis d'observer un glissement sur une surface totalement mouillante (et non rugueuse).

Cette technique, dite de vélocimétrie en champ proche, permet de déterminer la vitesse

9. FRAP : Fluorescence Recovery After Photobleaching.

du liquide au voisinage d'une paroi en suivant la fluorescence de sondes moléculaires fluorescentes. Pour cela, le liquide est cisailé entre deux disques parallèles sur une couronne de 32 mm de rayon et 5 mm de large. L'épaisseur du fluide est d'environ  $190 \mu\text{m}$ . Cette géométrie permet d'imposer un taux de cisaillement uniforme dans l'échantillon et peut être ajusté entre  $10^2$  et  $10^4 \text{ s}^{-1}$  en tournant un disque par rapport à l'autre, immobile. Des sondes fluorescentes de taille comparable à celle des molécules du fluide simple sont utilisées comme traceurs de l'écoulement. L'impulsion d'une centaine de millisecondes d'un faisceau laser intense permet de photoblanchir une partie des sondes situées à l'intérieur d'un cylindre de  $60 \mu\text{m}$  de diamètre. Un second faisceau laser arrive alors sur la surface en réflexion totale. L'onde évanescente associée au second faisceau sonde la fluorescence uniquement au voisinage de la surface solide sur une profondeur de pénétration d'environ  $50 \text{ nm}$ . C'est le suivi en temps réel de l'augmentation du signal de fluorescence sur la profondeur de pénétration de l'onde incidente qui permet de déterminer s'il existe ou non un glissement à la paroi. En effet, sous l'effet combiné de la diffusion et de la convection, les sondes non photoblanchies pénètrent dans le volume éclairé, ce qui permet au signal de fluorescence de remonter à sa valeur initiale avant photoblanchiment. Ainsi, la cinétique de récupération de la fluorescence reflète la vitesse du fluide au voisinage de la paroi.

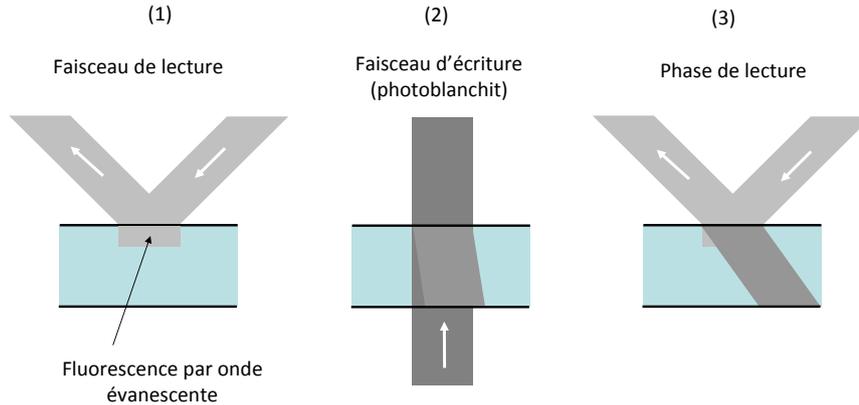


**Figure III.48** – Schéma de principe du dispositif utilisé pour les expériences de vélocimétrie en champ proche (VLCP).

L'expérience se décompose en trois étapes. Au début de l'expérience, la rotation du disque est lancée.

- Etape 1 : l'onde évanescente, associée au laser de faible puissance en réflexion totale, excite les sondes fluorescentes sur une épaisseur de  $50 \text{ nm}$  pour donner une valeur de référence.
- Etape 2 : le laser de grande puissance photoblanchit les sondes pendant une centaine de millisecondes.

- Etape 3 : l'onde évanescente, associée au laser de faible puissance en réflexion totale, excite les sondes fluorescentes non photoblanchies. Au fur et à mesure que l'écoulement évacue les sondes photoblanchies, l'intensité augmente jusqu'à retrouver sa valeur de référence.



**Figure III.49** – Etapes du processus de recouvrement de fluorescence après photoblanchiment lors de l'expérience de VLCP.

Cette méthode de Vélocimétrie Laser en Champ Proche a été utilisée pour étudier le glissement entre l'hexadécane sur une surface de saphir très lisse (rugosité de 0,4 nm rms). La surface a été traitée chimiquement afin de présenter différentes caractéristiques de mouillabilité. De plus, la réalisation de différents greffages permet de faire varier la rugosité à la surface. Ces études montrent que le glissement dépend à la fois des propriétés de mouillage du liquide sur le solide et de la rugosité à la surface : ainsi la rugosité réduit le glissement et une interaction non-mouillante favorise le glissement. Des longueurs de glissement comprises entre 115 et 175 nm ont été mesurées sur la surface de saphir nue, totalement mouillante pour l'hexadécane.

Dans la suite, nous allons sonder les fluctuations de la surface libre d'un film mince d'hexadécane et voir si les effets du glissement observés avec cette technique de vélocimétrie peuvent être retrouvés. Avant cela, on décrit l'effet du glissement sur les fluctuations de surface ainsi que l'effet attendu sur les spectres mesurés  $S(\omega)$ .

## 5.2 Effet du glissement sur les fluctuations de surface

Dans ce paragraphe, nous allons déterminer l'influence du glissement sur les fluctuations de surface. En particulier, nous allons donner la fréquence de relaxation  $\tilde{\omega}$  associée au mode  $k$  de déformation de la surface libre d'un film mince lorsqu'il existe du glissement avec le substrat. Ce calcul a été effectué par Henle et Levine [12]. En fonction de l'expression de la fréquence de relaxation obtenue, nous pourrions savoir dans quelles conditions nous placer

pour mesurer des spectres de fluctuations (avec notre technique) sensibles à un éventuel glissement.

Le raisonnement qui permet de déterminer l'expression de la fréquence de relaxation  $\tilde{\omega}$  est identique à celui effectué au paragraphe 2.1 pour un film mince sans glissement. On rappelle que ce raisonnement consiste à relier la déformation de la surface libre à la contrainte normale. La fréquence de relaxation  $\tilde{\omega}$  du système correspond alors à la fréquence pour laquelle la déformation diverge (pour une contrainte normale finie). Ainsi, on reprend le calcul du paragraphe 2.1 en remplaçant la condition de non glissement,  $v_x|_{z=h} = 0$ , par la condition de glissement partiel  $v_x|_{z=h} = b \partial_z v_x|_{z=h}$  où  $b$  est la longueur de glissement. Notons que la condition à écrire sur la composante de vitesse normale à la paroi reste identique, soit  $v_z|_{z=h} = 0$ . En utilisant ces conditions, on obtient :

$$\omega_n(k) = i\tilde{\omega} = i \frac{\gamma k^2}{\eta B(k)} \quad (\text{III.93})$$

Avec

$$B(k) = 4k \frac{\cosh^2(kh) + k^2 h^2 + kb(2kh + \sinh(2kh))}{\sinh(2kh) - 2kh + 4kb \sinh^2(kh)} \quad (\text{III.94})$$

La fréquence de relaxation  $\tilde{\omega}$  est une fonction du mode de déformation  $k$ , de la tension de surface  $\gamma$ , de la viscosité  $\eta$ , de l'épaisseur  $h$  du film et de la longueur de glissement  $b$ .

A partir de l'expression (III.93), il est difficile de savoir dans quels cas la relaxation des fluctuations est sensible à l'effet du glissement. Pour connaître ces conditions, on calcule les développements asymptotiques de l'expression (III.93). Notons que le problème comporte désormais trois longueurs ( $1/k$ ,  $h$ ,  $b$ ), il existe donc plus de deux cas limites.

### Sans confinement

Dans la limite où l'épaisseur du film est très grande devant la longueur d'onde de fluctuation ( $kh \gg 1$ ), on obtient  $\tilde{\omega} = \gamma k / 2\eta$ . Lorsque le liquide n'est pas confiné, les fluctuations de surface ne sont pas sensibles à l'effet du glissement sur le substrat solide.

### Avec confinement

Dans la limite où l'épaisseur du film est très faible devant la longueur de fluctuation ( $kh \ll 1$ ) et pour une longueur de glissement inférieure à  $1/k^2 h$ , on obtient :

$$\tilde{\omega}(k) = \frac{\gamma k^4 h^3}{\eta} \left( \frac{1}{3} + \frac{b}{h} \right) \quad (\text{III.95})$$

On distingue alors deux cas. Lorsque l'épaisseur est largement supérieure à la longueur de

glissement ( $h \gg b$ ),  $\tilde{\omega} = \gamma k^4 h^3 / \eta$ . Les fluctuations sont sensibles au confinement mais ne dépendent pas de la longueur de glissement, on retrouve l'expression (III.8). En revanche, lorsque l'épaisseur devient très inférieure à la longueur de glissement ( $h \ll b$ ),  $\tilde{\omega} = \gamma k^4 h^2 b / \eta$ . Dans ce cas, les fluctuations de surface dépendent de la longueur de glissement et sont moins sensibles à l'épaisseur du film,  $\tilde{\omega} \sim h^2$  au lieu de  $\tilde{\omega} \sim h^3$ . Dans la limite où  $kh \ll 1$  et  $b \gg 1/(k^2 h)$  on obtient  $\tilde{\omega} = \gamma k^2 h / 4\eta$ . Ce cas correspond au celui d'un glissement total, c'est-à-dire lorsque la longueur de glissement devient infinie, traduisant un cisaillement nul à la paroi. Les fluctuations sont alors beaucoup moins sensibles à l'effet du confinement,  $\tilde{\omega} \sim h$  au lieu de  $\tilde{\omega} \sim h^3$ .

Quel que soit le cas considéré, le glissement a pour effet de limiter la diminution de la fréquence de relaxation. En effet, le cisaillement du fluide est plus faible lorsqu'il existe du glissement. Par conséquent, le ralentissement de la dynamique, due au confinement du liquide, est plus faible en présence de glissement. Le temps de relaxation s'en trouve donc diminué. En résumé, le glissement a pour effet d'amoindrir l'effet du confinement sur les fluctuations de surface.

### 5.3 Sensibilité du spectre mesuré au glissement

Nous venons de déterminer l'expression de la fréquence de relaxation associée au mode  $k$  dans les différents cas limites. Il est intéressant de savoir dans quel cas on se situe en pratique lorsque l'on souhaite étudier le glissement intrinsèque avec notre technique. Il est également utile de donner l'expression du spectre mesuré  $S_{A-B}(\omega)$  dans cette limite afin de connaître la sensibilité sur la longueur de glissement.

Les longueurs de glissement intrinsèques  $b$  mesurées habituellement sont inférieures à la centaine de nanomètres. Pour que les fluctuations de surfaces soient sensibles à l'effet du glissement, il est donc nécessaire que l'épaisseur du film  $h$  soit comparable ou inférieure à la centaine de nanomètres. Par ailleurs, le rayon  $R$  du faisceau laser utilisé dans notre technique, qui fixe la longueur d'onde ( $1/k$ ) des fluctuations auxquelles le spectre est sensible, est supérieur au micromètre. On se situe donc dans la limite où  $h \ll R$  et  $b \ll R^2/h$ , l'expression de la fréquence de relaxation appropriée est (III.95) et s'écrit pour  $k = 1/R$  :

$$\tilde{\omega}(k) = \frac{\gamma h^3}{\eta R^4} \left( \frac{1}{3} + \frac{b}{h} \right) \quad (\text{III.96})$$

On rappelle que le spectre  $S_{A-B}(\omega)$ , obtenu avec notre technique en mesurant la différence

des intensités reçues par chaque quadrant, se met sous la forme :

$$S_{A-B}(\omega) \propto \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{angle}(k) k dk \quad (\text{III.97})$$

où  $P(k, \omega) = \frac{k_B T}{\pi \gamma k^2} \frac{\tilde{\omega}}{\tilde{\omega}^2 + \omega^2}$  est la densité spectrale des fluctuations de hauteur de l'interface. D'après la forme de la fonction de pondération  $\Phi_{angle}$ , le spectre  $S_{A-B}(\omega)$  est principalement sensible aux modes de fluctuations de surface tels que  $k \approx 1/R$  :

$$S_{A-B}(\omega) \propto \frac{P(1/R, \omega)}{\lambda^2 R^2} \quad (\text{III.98})$$

Puisqu'on se situe dans la limite  $h \ll R$ , d'après (III.96), la fréquence de relaxation associée au mode  $1/R$  est largement inférieure aux fréquences auxquelles les fluctuations du signal sont mesurées ( $\tilde{\omega}_{k=1/R} \ll \omega$ ). Le spectre mesuré correspond donc à la partie décroissante de la lorentzienne de  $P(1/R, \omega)$  :

$$S_{A-B}(\omega) \propto \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{\tilde{\omega}_{k=1/R}}{\gamma \omega^2} \quad (\text{III.99})$$

Le spectre  $S_{A-B}(\omega)$  est proportionnel à la fréquence de relaxation associée au mode  $1/R$ . D'après l'expression (III.96), on a :

$$S_{A-B}(\omega) \propto \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{h^3}{\eta \omega^2 R^4} \left( \frac{1}{3} + \frac{b}{h} \right) \quad (\text{III.100})$$

D'après (III.100), le rapport entre l'amplitude du spectre mesuré sur un film glissant sur son substrat et l'amplitude du spectre que l'on aurait mesuré sur ce même film s'il n'existait pas de glissement s'écrit :

$$\frac{S_{A-B}}{S_{A-B}^{b=0}} = 1 + \frac{3b}{h} \quad (\text{III.101})$$

Pour mesurer précisément la longueur de glissement entre un liquide et son substrat à partir de la mesure des fluctuations de surface grâce à notre technique, il est nécessaire que l'épaisseur du film soit comparable ou inférieure à la longueur de glissement attendue. Sachant que les longueurs de glissement intrinsèque sont inférieures à la centaine de nanomètres, il faut pouvoir mesurer les fluctuations de surface de films dont l'épaisseur est de l'ordre (ou inférieure) à cette valeur. Nous avons vu au paragraphe 4 que l'on pouvait diminuer l'épaisseur du film de façon contrôlée jusqu'au démouillage total. Dans la suite, nous allons utiliser cet effet pour mesurer les fluctuations de surface de film d'épaisseur inférieure à une centaine de nanomètres.

## 5.4 Films d'huiles silicones

Avant d'étudier le cas de l'hexadécane, pour lequel un glissement a déjà été observé en mouillage total [64], nous allons mesurer les fluctuations à la surface de films minces d'huile silicone supportés par un substrat en verre. Pour le couple huile silicone/verre, aucun glissement n'est attendu. Par ailleurs, les propriétés physiques de ces huiles sont très bien connues. L'huile silicone est donc utilisée comme un liquide de référence et nous permet d'examiner l'accord entre les spectres expérimentaux et les spectres théoriques sans l'influence du glissement. Cette comparaison permettra de valider pour la première fois l'expression du spectre calculé dans le cas où il existe des interférences entre les réflexions du faisceau laser aux interfaces air/film et film/substrat. En effet, au paragraphe 3, des spectres de fluctuations de films minces ont déjà été mesurés lorsqu'il existait des interférences mais n'ont pas pu être comparés aux spectres théoriques car il manquait une mesure indépendante de l'épaisseur du film sondé. On rappelle que l'intensité réfléchie moyenne permettait uniquement de connaître la variation d'épaisseur du film (et non l'épaisseur absolue). Dorénavant, grâce à l'utilisation de l'effet thermocapillaire, nous avons vu au paragraphe 4 qu'il est aisé de diminuer progressivement l'épaisseur du film jusqu'au démouillage. Or le démouillage du film donne une référence au signal de l'intensité réfléchie moyenne et permet de connaître les épaisseurs des films sur lesquels les fluctuations ont été mesurées. Dans les expériences présentées par la suite, l'effet thermocapillaire est induit par l'absorption d'un second laser, distinct de celui utilisé pour mesurer les fluctuations.

Dans le premier paragraphe, on mesure les fluctuations sur un film d'huile silicone qui s'étale très lentement sous l'effet de la capillarité et de la gravité. L'effet thermocapillaire est utilisé uniquement à la fin de l'expérience afin de démouiller le film.

Dans le deuxième paragraphe, on mesure les fluctuations sur un film d'huile silicone sur lequel on applique un effet thermocapillaire dès le début de l'expérience. L'écoulement produit par l'effet thermocapillaire accélère la diminution de l'épaisseur du film et réduit considérablement le temps nécessaire pour pouvoir mesurer les fluctuations sur un film très mince.

### 5.4.1 A l'équilibre

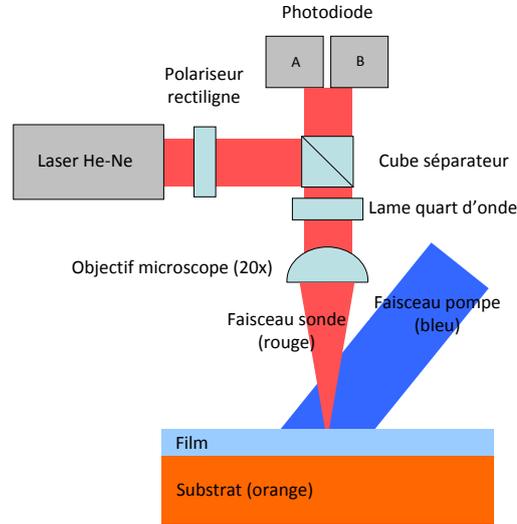
Lorsque l'on dépose une goutte d'huile silicone sur un substrat en verre, le mouillage est total. La goutte s'étale jusqu'à former un film d'épaisseur microscopique. Ainsi, pour mesurer les fluctuations sur un film mince d'huile silicone, il suffit de déposer une goutte sur le substrat en verre puis d'attendre que le film s'amincisse suffisamment. Au fur et à mesure que le film s'amincit, la dissipation hydrodynamique augmente et l'étalement ralentit. Notons que dans nos expériences, la vitesse à laquelle le film s'amincit doit être suffisamment lente pour que la variation d'épaisseur relative pendant la durée d'acquisition d'un spectre reste faible.

Nous verrons dans la suite que la vitesse à laquelle l'épaisseur varie est toujours très faible devant la durée d'acquisition des spectres.

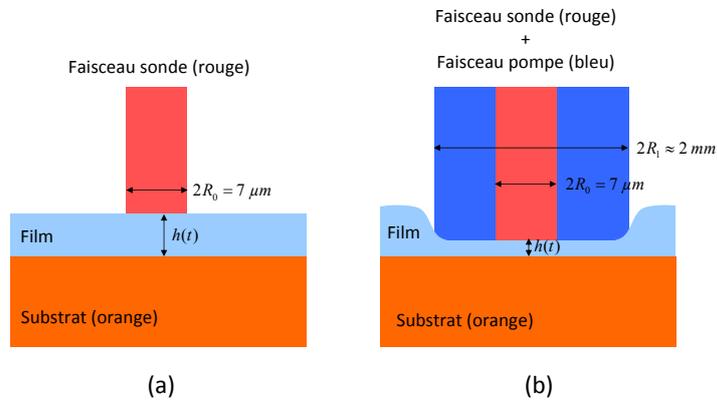
Lorsque la vitesse d'amincissement devient très lente, on souhaite faire démouiller le film dans la région où les fluctuations ont été mesurées. On rappelle que le démouillage permet de fixer l'origine des épaisseurs, et ainsi de déterminer l'épaisseur du film à n'importe quel instant de l'expérience. Pour effectuer ce démouillage, on utilise l'effet thermocapillaire induit par l'absorption (dans le substrat) d'un second faisceau laser, différent de celui utilisé pour mesurer les fluctuations. Afin que le second faisceau soit le seul faisceau qui puisse contrôler l'effet thermocapillaire, on choisit un substrat en verre coloré qui absorbe uniquement le second faisceau. Le faisceau qui permet de mesurer les fluctuations, appelé faisceau sonde, est généré comme précédemment par un laser hélium néon de longueur d'onde 632.8 nm. Le faisceau qui permet de contrôler l'effet thermocapillaire, appelé faisceau pompe, est généré par une diode laser de longueur d'onde 450 nm. Le substrat en verre est un filtre passe haut de longueur d'onde de coupure 550 nm et dont l'indice optique est égale à 1.526. Le substrat possède donc une couleur orange. On vérifie que le faisceau sonde n'induit aucun effet thermocapillaire significatif, son absorption dans le substrat est négligeable. L'utilisation de deux faisceaux laser de longueurs d'onde différentes permet de gérer indépendamment la mesure des fluctuations et le contrôle de l'effet thermocapillaire. Le schéma du montage obtenu est représenté sur la figure III.50. Alors que le faisceau sonde est en incidence normale, le faisceau pompe possède un angle d'incidence non nul. Ainsi la réflexion du faisceau pompe sur le film n'est pas dirigée vers les deux quadrants de la photodiode. La photodiode détecte uniquement la réflexion du faisceau sonde sur le film. Par ailleurs, les deux faisceaux sont centrés mais ne possèdent pas la même largeur. Le faisceau sonde est focalisé grâce à un objectif de microscope, son rayon  $R_0$  dans le plan de la surface libre est de  $3.5 \mu\text{m}$ . Le faisceau pompe est faiblement focalisé, son rayon  $R_1$  est d'environ 1 mm.

L'expérience de mesure des fluctuations se décompose en deux étapes. Pendant la première étape, seul le faisceau sonde éclaire le film (figure III.51-a). L'épaisseur du film sous le faisceau, notée  $h$  diminue lentement. Cette diminution est uniquement due à l'étalement du film et sa vitesse ralentit au cours du temps. Lorsque cette vitesse devient trop petite, on allume le faisceau pompe, qui grâce à l'effet thermocapillaire, accélère l'amincissement du film (figure III.51-b). Compte tenu du grand rapport  $R_1/R_0$ , la déformation de la surface libre due à l'effet thermocapillaire s'effectue sur une zone supérieure de presque trois ordres de grandeurs à la zone éclairée par le faisceau sonde. Ainsi, à l'échelle du faisceau sonde, la surface libre reste relativement plane au cours de l'expérience.

Sur la figure III.52, on représente l'évolution de l'épaisseur du film  $h$  au cours du temps en



**Figure III.50** – Schéma du montage permettant de mesurer les fluctuations de films minces et de démoiller localement le film. L'utilisation de deux faisceaux laser à des longueurs d'onde différentes permet de découpler la mesure des fluctuations et le contrôle de l'effet thermocapillaire.

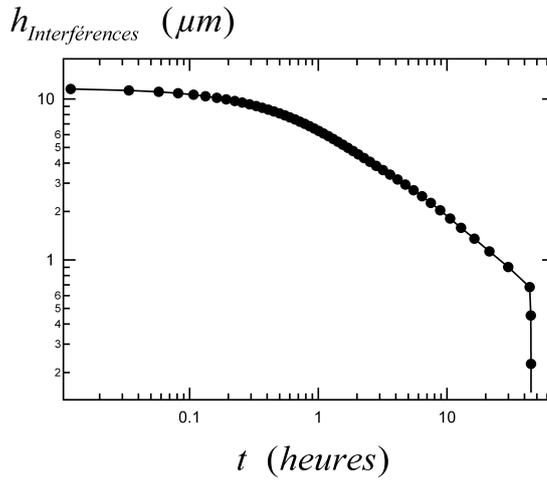


**Figure III.51** – (a) : Schéma correspondant à l'étape 1 où seul le faisceau sonde est allumé. L'épaisseur du film est uniforme et diminue lentement. Le faisceau sonde permet uniquement de mesurer les fluctuations et ne déforme pas le film. (b) : Schéma correspondant à l'étape 2 où les deux faisceaux sont allumés. L'absorption du faisceau pompe dans le substrat génère un effet thermocapillaire qui diminue localement l'épaisseur du film. La différence entre les largeurs des deux faisceaux ( $R_1 \gg R_0$ ) permet de mesurer les fluctuations dans une région où l'épaisseur du film est relativement plane.

suivant les deux étapes décrites précédemment. L'épaisseur  $h$  est déduite des oscillations de l'intensité réfléchie moyenne  $\langle I_A + I_B \rangle$  du faisceau sonde. On rappelle que l'intensité réfléchie moyenne résulte des interférences des réflexions aux interfaces air/film et film/substrat et dépend donc de  $h$  :

$$\langle I_A + I_B \rangle = (r_1^2 + r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos \phi) I_0 \quad (\text{III.102})$$

où  $r_1, r_2$ , sont les coefficients de réflexion associés aux interfaces air/film et film/substrat.  $\phi = 4\pi n h / \lambda$  avec  $n = 1.40$  (l'indice du film) et  $\lambda = 632.8 \text{ nm}$  (la longueur d'onde du faisceau sonde).  $I_0$  est l'intensité incidente du faisceau sonde. Chaque point de la courbe de la



**Figure III.52** – Evolution de l'épaisseur d'un film d'huile silicone sur un substrat en verre pendant l'expérience de mesure des fluctuations. Pendant la première étape, le faisceau pompe est éteint, le film s'étale librement et met 43 heures à atteindre une épaisseur d'environ 600 nm. Puis, le faisceau pompe est allumé, l'effet thermocapillaire diminue l'épaisseur du film jusqu'à zéro en quelques minutes.

figure III.52 correspond à un maximum de l'intensité réfléchie moyenne, c'est-à-dire lorsque les interférences sont constructives ( $\cos \phi = 1$ ), donc pour une épaisseur de film multiple de l'interfrange  $\lambda/2n = 226 \text{ nm}$ . Ainsi, on a  $h_{interférences} = j \times 226 \text{ nm}$  avec  $j \in \{1, 2, \dots, 48\}$ . L'épaisseur initiale de film est de  $11 \mu\text{m}$ . Lors de la première étape, lorsque le faisceau pompe est éteint, l'épaisseur diminue progressivement jusqu'à environ 600 nm, durant un temps d'environ 43 heures. Puis, on allume le faisceau pompe, il s'agit de la deuxième étape. L'épaisseur diminue alors jusqu'à devenir nulle en seulement quelques minutes.

Pendant toute la durée de l'expérience, les spectres de fluctuations  $S_{A-B}$  sont enregistrés. Les spectres  $S_{A-B}$  sont obtenus en mesurant la différence des intensités  $I_A$  et  $I_B$ . On rappelle l'expression de  $S_{A-B}$  :

$$S_{A-B}(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{I_A - I_B}{I_0} \right) \right|^2 \right\rangle_n \quad (\text{III.103})$$

où TF désigne la transformée de Fourier,  $T$  correspond à la durée d'acquisition du signal et dépend de la fréquence minimum  $f_{min}$  à laquelle on souhaite connaître les fluctuations. On rappelle que chaque spectre  $S_{A-B}$  correspond à la moyenne de  $n$  spectres. Dans notre cas, on a  $f_{min} = 12.2 \text{ Hz}$  et  $n=50$ , l'acquisition d'un spectre dure donc 4.1 secondes. Durant l'expérience décrite ici 38 000 spectres ont été enregistrés.

Au paragraphe 3, l'expression du spectre a été calculée dans le cas où le faisceau est réfléchi aux deux interfaces air/film et film/substrat, lorsque la réflexion à l'interface film/substrat est relativement faible<sup>10</sup> :

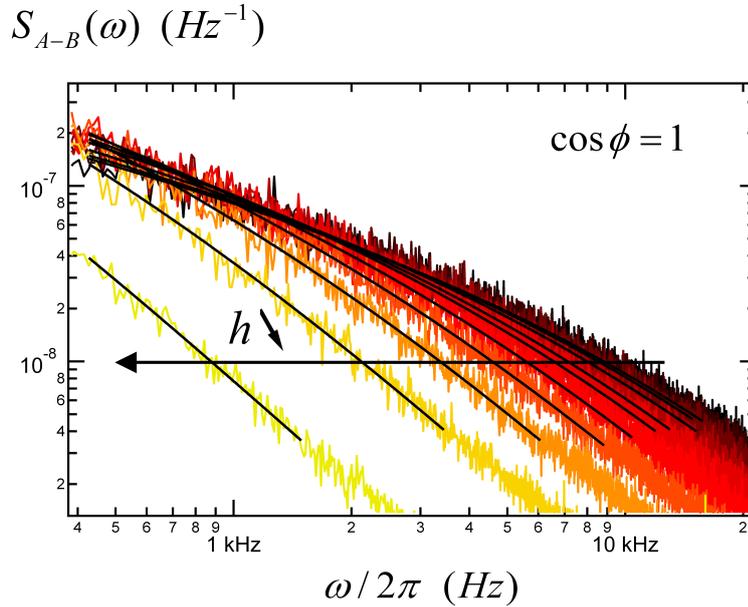
$$S_{A-B}(\omega) = \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1r_2 \cos \phi \right)^2 \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{angle}(k) k dk \quad (\text{III.104})$$

Les spectres  $S_{A-B}$  dépendent des fluctuations de surface, caractérisées par la densité spectrale  $P(k, \omega)$ , mais également de l'état d'interférence dans le film. En effet, nous avons vu que la sensibilité du signal  $I_A - I_B$  à la pente de la surface libre dépend du déphasage entre les deux réflexions. Cette sensibilité correspond au préfacteur dans l'équation (III.104). Les spectres  $S_{A-B}$  dépendent donc de l'épaisseur  $h$  de deux façons : d'une part, les fluctuations mesurées dépendent de l'épaisseur grâce à l'effet du confinement (lorsque  $h \leq R$ ) et d'autre part la sensibilité de la technique dépend de l'état d'interférence.

Dans un premier temps, on s'intéresse uniquement aux spectres  $S_{A-B}$  pour lesquels les interférences sont constructives, correspondant à  $\cos \phi = 1$  (figure III.53). Pour ces spectres, la sensibilité aux fluctuations est constante ce qui facilite leur analyse. Dans notre cas, l'indice du substrat ( $n_s = 1.526$ ) est supérieur à celui du film ( $n = 1.40$ ), on a donc  $r_1 r_2 > 0$ . La sensibilité aux fluctuations est donc maximum lorsque les interférences sont constructives. Les spectres obtenus pour  $\cos \phi = 1$  sont représentés sur la figure III.53. Les différentes épaisseurs du film lorsque ces spectres ont été enregistrés sont donc des multiples de l'interfrange (de 226 nm) et correspondent aux points affichés sur la courbe de la figure III.52. Lorsque l'épaisseur  $h$  devient comparable à la largeur du faisceau sonde ( $R_0 = 3.5 \mu\text{m}$ ), les fluctuations deviennent sensibles à l'effet du confinement. Ceci se traduit par un décalage des spectres vers les basses fréquences. Le spectre le plus décalé vers les basses fréquences (en jaune) correspond au dernier point de la figure III.53 ( $h=226$  nm), le second spectre le plus décalé correspond à l'avant dernier point ( $h=452$  nm), etc. Dans un souci de visibilité, on affiche seulement les spectres correspondant aux 10 derniers points.

En utilisant l'expression (III.104) du spectre  $S_{A-B}$ , on ajuste tous les spectres obtenus pour  $\cos \phi = 1$  en fixant tous les paramètres à l'exception de l'épaisseur  $h$ . Dans l'expression (III.104), la densité spectrale  $P(k, \omega)$  dépend de l'épaisseur  $h$  par l'intermédiaire de la fréquence de relaxation  $\tilde{\omega}_k$  définie dans le cas général par l'expression (III.93). Puisqu'aucun glissement n'est attendu pour l'huile silicone, on fixe  $b = 0$  dans l'expression (III.93).

10. Dans le calcul du spectre  $S_{A-B}$  effectué au paragraphe 3, on considère uniquement la réflexion à la surface libre et la première réflexion sur le substrat. Les réflexions multiples dans le film sont négligées. Le préfacteur du spectre, qui correspond à la sensibilité du signal  $I_A - I_B$  à la pente de la surface libre, s'écrit donc comme la somme de 3 termes. Les deux premiers termes ( $r_1^2, -(n-1)r_2^2$ ) correspondent aux deux réflexions et le dernier terme ( $(2-n)r_1r_2 \cos \phi$ ) correspond à l'interférence de ces deux réflexions.

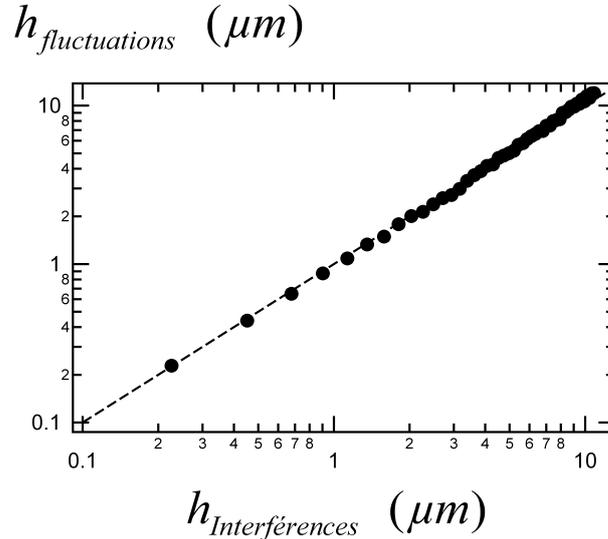


**Figure III.53** – Spectres de fluctuation  $S_{A-B}$  mesurés à la surface libre d’un film d’huile silicone s’étalant sur un substrat en verre lorsque les interférences sont constructives ( $\cos \phi = 1$ ). En balayant les spectres de gauche à droite, l’épaisseur du film est : 226 nm,  $2 \times 226$  nm,  $3 \times 226$  nm, etc. Le décalage des spectres vers les basses fréquences est dû à l’effet du confinement sur les fluctuations de surface. Les ajustements obtenus en utilisant l’expression (III.104) sont représentés en traits noirs.

La viscosité, la tension de surface et le rayon du faisceau sont fixés aux valeurs suivantes :  $\eta = 0.019$  Pa.s,  $\gamma = 20.6$  mN/m,  $R_0 = 3.5 \mu\text{m}$ . Les ajustements obtenus sont représentés en traits noirs sur la figure III.53 et se superposent très bien aux spectres expérimentaux avec l’épaisseur comme seul paramètre ajustable.

Sur la figure III.54, les épaisseurs déduites des ajustements, notées  $h_{\text{fluctuations}}$ , sont représentées en fonction des épaisseurs déduites de la mesure de l’intensité réfléchie, notées  $h_{\text{interférences}}$ . On a  $h_{\text{interférences}} = j \times 226$  nm avec  $j \in \{1, 2, \dots, 48\}$ . Les points se superposent très bien sur la droite  $h_{\text{fluctuations}} = h_{\text{interférences}}$  représentée en pointillés. Par conséquent, pour des épaisseurs comprises entre 226 nm et  $10.8 \mu\text{m}$ , les fluctuations de surface dépendent de l’épaisseur exactement comme le prévoit le calcul. D’après la courbe III.52, les fluctuations des deux films les plus minces (226 nm et 452 nm) ont été mesurées lors de la seconde étape, lorsque le faisceau pompe était allumé. Pour ces deux points, on mesure les fluctuations de surface d’un film qui s’amincit sous l’effet thermocapillaire. Notons que l’on n’observe aucune déviation (par rapport à la droite  $h_{\text{fluctuations}} = h_{\text{interférences}}$ ) pour ces deux points. L’effet thermocapillaire imposé n’a pas d’effet mesurable sur les fluctuations de surface. Par ailleurs, rappelons que les ajustements ont été effectués avec l’hypothèse d’une longueur de glissement nulle ( $b = 0$ ). Par conséquent, l’excellente superposition des points

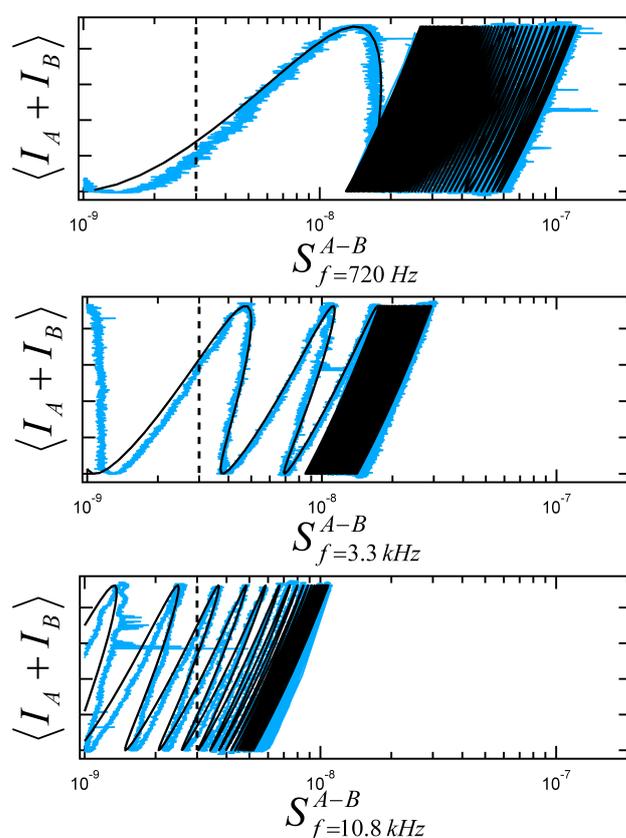
sur la droite  $h_{\text{fluctuations}} = h_{\text{interférences}}$  valide cette hypothèse pour les films sondés ( $226 \text{ nm} \leq h \leq 10.8 \mu\text{m}$ ).



**Figure III.54** – Épaisseurs du film obtenues d’après l’ajustement des spectres  $S_{A-B}$  lorsque les interférences sont constructives en fonction des épaisseurs satisfaisant la condition des interférences constructives ( $\cos \phi = 1$ ). La droite en pointillés est la droite d’équation  $h_{\text{fluctuations}} = h_{\text{interférences}}$ .

Jusqu’ici, nous nous sommes limités à l’étude des spectres pour lesquels les interférences sont constructives. Comme nous avons pu le voir, cette restriction facilite l’analyse des spectres (car la sensibilité de la technique est constante) mais permet uniquement d’étudier des films d’épaisseur supérieure à  $226 \text{ nm}$ . Afin d’analyser les fluctuations à des épaisseurs inférieures à  $226 \text{ nm}$ , nous allons afficher les spectres mesurés suivant la représentation utilisée au paragraphe 3.4. On rappelle qu’elle consiste à tracer l’intensité réfléchie moyenne  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de l’amplitude des spectres  $S_{A-B_s}$  pour une fréquence donnée. Sur la figure III.55, on représente les données de l’expérience aux trois fréquences suivantes :  $720 \text{ Hz}$ ,  $3.3 \text{ kHz}$  et  $10.8 \text{ kHz}$ . Cette représentation fournit un moyen de reporter lisiblement les données des  $38\,000$  spectres mesurés lors de l’expérience. Les  $48$  spectres étudiés précédemment pour des interférences constructives, correspondent aux points pour lesquels  $\langle I_A + I_B \rangle$  est maximum. La ligne en pointillés, d’équation  $S_{A-B} = 3 \cdot 10^{-9} \text{ Hz}^{-1}$ , est la limite en dessous de laquelle l’amplitude des fluctuations du signal  $I_A - I_B$  est trop faible pour être correctement mesurée. Ainsi, on étudie uniquement les points situés à droite de la ligne en pointillé. Pour la fréquence de  $10.8 \text{ kHz}$ , ceci revient à étudier les films dont l’épaisseur est supérieure à  $1.1 \mu\text{m}$ . Pour la fréquence de  $720 \text{ Hz}$ , ceci revient à étudier les films dont l’épaisseur est supérieure à  $150 \text{ nm}$ . L’amplitude du spectre aux basses fréquences est plus grande qu’aux hautes fréquences ( $S_{A-B} \sim \omega^{-2}$ ) et permet d’étudier des films plus minces. Pour chaque fréquence, on

affiche en trait noir  $\langle I_A + I_B \rangle$ , calculé d'après (III.102), en fonction de  $S_{A-B}$ , calculé d'après (III.104). Ces courbes théoriques se superposent très bien aux points expérimentaux. Pour la fréquence de 3.3 kHz, on vérifie facilement que les points expérimentaux sont en accord avec la courbe théorique sur une période d'oscillation du signal  $\langle I_A + I_B \rangle$ . Ceci nous confirme que les fluctuations sont bien décrites par la théorie et nous indique que le préfacteur du spectre  $S_{A-B}$  équation (III.104), est correct quel que soit le déphasage  $\phi$ . La sensibilité de notre technique aux fluctuations de surface lorsque le substrat est réfléchissant est correctement calculée.



**Figure III.55** – Variations de  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de  $S_{A-B}$  mesurées lors de l'étalement d'un film d'huile silicone sur un substrat en verre pour les trois fréquences suivantes : 720 Hz, 3.3 kHz et 10.8 kHz. La ligne en pointillés, d'équation  $S_{A-B} = 3 \cdot 10^{-9} \text{ Hz}^{-1}$ , est la limite en dessous de laquelle les fluctuations sont trop faibles pour être correctement mesurées. Les courbes noires correspondent aux valeurs calculées d'après les expressions théoriques (III.102) et (III.104).

### Conclusion

En introduisant un second faisceau laser, nous avons créé un nouveau montage qui permet de gérer indépendamment la mesure des fluctuations de surface et l'effet thermocapillaire. Ce

montage permet de mesurer les spectres de fluctuation  $S_{A-B}$  à la surface d'un film d'huile silicone sur un substrat en verre pour des épaisseurs allant de  $10.8 \mu\text{m}$  à  $150 \text{ nm}$ . L'excellent accord entre ces spectres et ceux calculés théoriquement valide la sensibilité de la technique lorsqu'il existe des interférences. On rappelle que les spectres théoriques ont été calculés en supposant nulle la longueur de glissement. L'accord entre les spectres expérimentaux et théoriques valide donc l'hypothèse de non glissement entre l'huile silicone et le verre pour des épaisseurs supérieures à  $150 \text{ nm}$ . Dans la suite, nous allons effectuer des mesures à des épaisseurs de film plus faibles. Enfin, notons qu'aucune déviation des résultats n'a été observée lors de l'utilisation du faisceau pompe aux épaisseurs inférieures à  $600 \text{ nm}$ . L'effet thermocapillaire n'affecte pas les fluctuations de surface de façon significative. Il est donc possible de mesurer les fluctuations en parallèle de l'utilisation de l'effet thermocapillaire. Dans le paragraphe suivant on mesure les fluctuations en utilisant l'effet thermocapillaire dès le début de l'expérience et on montre que l'amplitude des fluctuations reste identique à celle mesurée dans ce paragraphe.

#### 5.4.2 En écoulement

Au paragraphe précédent, nous avons pu voir que l'effet thermocapillaire utilisé en fin d'expérience n'affecte pas la mesure des fluctuations de surface. C'est pourquoi dans ce paragraphe on répète l'expérience en utilisant l'effet thermocapillaire dès le début de l'expérience. On se situe toujours dans la configuration (b) de la figure III.51 où les deux faisceaux éclairent le film. L'objectif est de réduire considérablement le temps à attendre pour pouvoir mesurer les fluctuations sur des films minces.

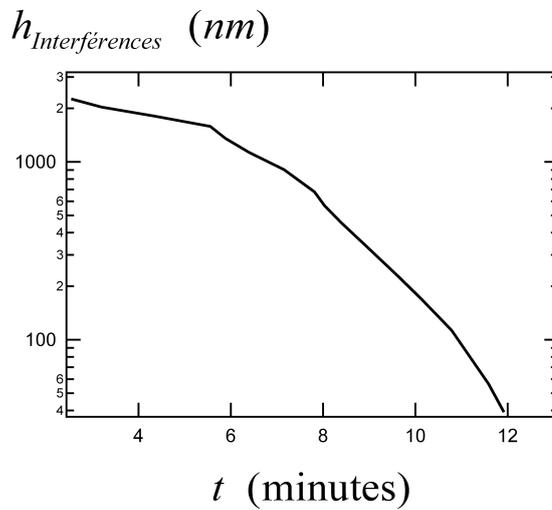
Le montage utilisé est identique à celui schématisé figure III.50 à l'exception de l'objectif qui focalise le faisceau sonde. On remplace l'objectif x20 par un objectif x50, diminuant ainsi le rayon  $R_0$  du faisceau sonde de  $3.5 \mu\text{m}$  à  $1.5 \mu\text{m}$ . On rappelle que la largeur du faisceau sonde fixe la longueur d'onde des fluctuations détectées par la technique. La réduction de cette largeur diminue l'effet du confinement sur le spectre mesuré  $S_{A-B}$ . Dans le cas où  $h \ll R_0$  et où le glissement est nul ( $b = 0$ ), on rappelle l'expression du spectre :

$$S_{A-B}(\omega) \propto \frac{k_B T}{\lambda^2} \frac{h^3}{R_0^4 \eta \omega^2} \quad (\text{III.105})$$

Avec l'objectif précédent (x20), les fluctuations ont pu être mesurées jusqu'à une épaisseur de  $150 \text{ nm}$ . D'après (III.105), en diminuant le rayon du faisceau sonde de  $3.5 \mu\text{m}$  à  $1.5 \mu\text{m}$ , il doit être possible de mesurer les fluctuations jusqu'à une épaisseur de  $48 \text{ nm}$ .

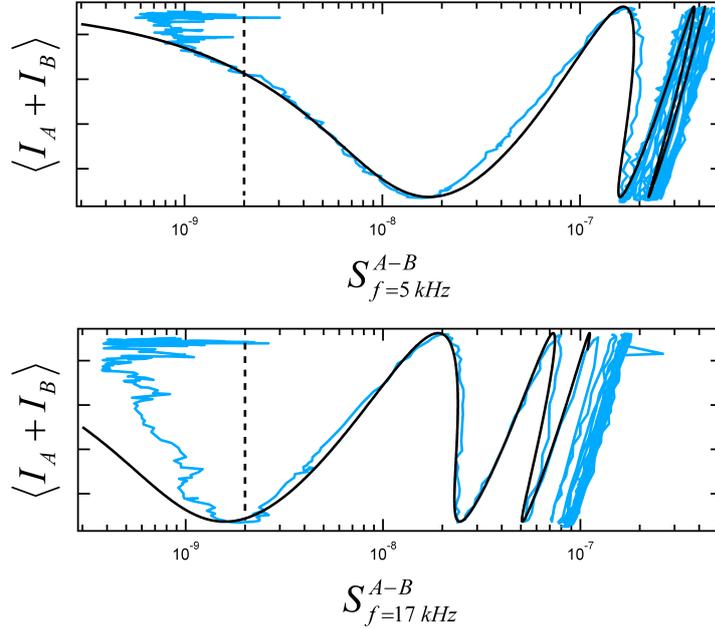
Sur la figure III.56, on représente l'évolution de l'épaisseur du film au cours de l'expé-

rience. On remarque que l'épaisseur initiale du film est de seulement  $2.5 \mu\text{m}$ , au lieu de  $10.8 \mu\text{m}$  précédemment. Sachant que l'on s'intéresse uniquement aux fluctuations lorsque l'épaisseur du film est inférieure à  $R_0 = 1.5 \mu\text{m}$ , on a réduit au préalable l'épaisseur initiale du film en utilisant la technique de spin-coating. Grâce à l'utilisation de l'effet thermocapillaire, l'épaisseur chute à zéro en seulement une dizaine de minutes. La puissance du faisceau pompe, à l'origine de l'effet thermocapillaire, n'est pas constante au cours de l'amincissement du film. Les petites accélérations, notamment à 5.5 et 7.8 minutes, correspondent à une augmentation de la puissance du faisceau sonde.



**Figure III.56** – Evolution de l'épaisseur du film d'huile silicone sur un substrat en verre pendant l'expérience de mesure des fluctuations. Le faisceau pompe est allumé pendant toute la durée de l'expérience et permet de démoillier le film en quelques minutes.

Sur la figure III.57, on représente l'évolution de l'intensité moyenne réfléchie  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de l'amplitude du spectre  $S_{A-B}$  lors de l'amincissement du film contrôlé par l'effet thermocapillaire. On affiche cette représentation pour deux fréquences : 5 kHz et 17 kHz. La ligne en pointillés, d'équation  $S_{A-B} = 2 \cdot 10^{-9} Hz^{-1}$ , est la limite en dessous de laquelle l'amplitude des fluctuations du signal  $I_A - I_B$  est trop faible pour être correctement mesurée. Pour la fréquence de 17 kHz, ceci revient à étudier des films dont l'épaisseur est supérieure à 113 nm. Pour la fréquence de 5 kHz, ceci revient à étudier des films dont l'épaisseur est supérieure à 50 nm. Les courbes noires correspondent aux valeurs théoriques calculées en utilisant les expressions (III.102) et (III.104) pour des épaisseurs comprises entre 0 et 680 nm. Le calcul du spectre  $S_{A-B}$  est réalisé en supposant nul le glissement ( $b = 0$ ). L'accord avec les points expérimentaux est satisfaisant et valide l'hypothèse de non glissement pour les épaisseurs mesurées.

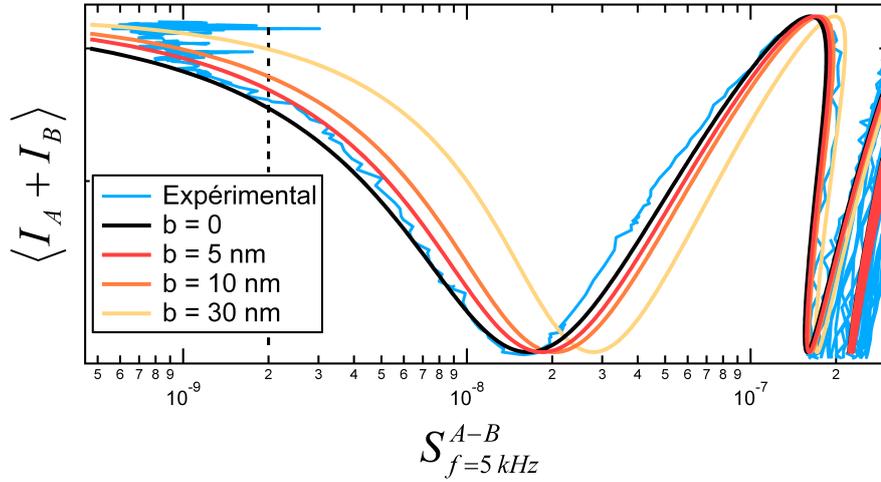


**Figure III.57** – Variations de  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de  $S_{A-B}$  mesurées lors de l'amincissement d'un film d'huile silicone sur un substrat en verre dû à l'effet thermocapillaire pour les deux fréquences suivantes : 5 kHz et 17 kHz. La ligne en pointillés, d'équation  $S_{A-B} = 2.10^{-9} \text{ Hz}^{-1}$ , est la limite en dessous de laquelle les fluctuations sont trop faibles pour être correctement mesurées. Les courbes noires correspondent aux valeurs calculées d'après les expressions théoriques (III.102) et (III.104) pour  $b = 0$ .

Afin d'évaluer la sensibilité des résultats à la longueur de glissement, sur la figure III.58 on représente les courbes théoriques  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de  $S_{A-B}$ , calculées pour différentes longueurs de glissement (0 nm, 5 nm, 10 nm et 30 nm) à 5 kHz. On vérifie que le glissement a pour effet d'augmenter l'amplitude du spectre  $S_{A-B}$  à une épaisseur donnée. Pour l'épaisseur de 113 nm, correspondant au premier minimum de  $\langle I_A + I_B \rangle$  (interférences destructives), l'amplitude du spectre avec  $b = 30$  nm est environ 70% plus importante que l'amplitude du spectre sans glissement ( $b = 0$ ). Cette augmentation est cohérente avec le rapport (III.101), valable pour  $h \ll R_0$ , rappelé ci-dessous :

$$\frac{S_{A-B}}{S_{A-B}^{b=0}} = 1 + \frac{3b}{h} \quad (\text{III.106})$$

D'après la position des points expérimentaux dans le faisceau de courbes théoriques (figure III.58), la longueur de glissement  $b$  permettant de décrire le plus justement les résultats semble comprise entre 0 et 5 nm. Afin de connaître la valeur de  $b$  plus précisément, on ajuste la courbe expérimentale  $\langle I_A + I_B \rangle$  vs  $S_{A-B}$  pour des épaisseurs comprises entre 50 nm et 339 nm en utilisant les expressions (III.102) et (III.104) avec  $b$  comme seul paramètre ajustable.



**Figure III.58** – Variations de  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de  $S_{A-B}$  à 5 kHz, expérimentale et calculée d’après les expressions (III.102) et (III.104) pour les longueurs de glissement suivantes :  $b = 0$ ,  $b = 5 \text{ nm}$ ,  $b = 10 \text{ nm}$  et  $b = 30 \text{ nm}$ . Les points expérimentaux sont en accord avec une longueur de glissement inférieure à 5 nm.

On obtient  $b = 2.1 \text{ nm}$ . Sachant que l’ajustement est effectué pour des épaisseurs de film supérieures à 50 nm, d’après (III.106), la valeur obtenue de  $b$  se situe dans la marge d’erreur. Afin d’obtenir plus de précision et de savoir si cette valeur est pertinente, il est nécessaire de pouvoir mesurer correctement les fluctuations à des épaisseurs de film inférieures à 50 nm.

Notons que les résultats présentés, utilisant l’effet thermocapillaire, sont très reproductibles. On peut répéter l’expérience pour différentes vitesses d’amincissement en modifiant la puissance du faisceau pompe, les courbes obtenues,  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de  $S_{A-B}$ , se superposent parfaitement. Comme nous l’avons remarqué au paragraphe précédent, l’utilisation de l’effet thermocapillaire ne modifie absolument pas l’amplitude des fluctuations mesurées. Il est donc possible d’utiliser l’effet thermocapillaire en parallèle de la mesure des fluctuations. Ceci permet d’accélérer l’amincissement du film et de réduire considérablement la durée de l’expérience.

Il peut paraître surprenant que l’absorption du faisceau pompe dans le substrat et l’effet thermocapillaire induit n’affectent pas notre mesure des fluctuations de surface. En effet, l’élévation de température et l’écoulement du film sont susceptibles de modifier les fluctuations de surface, qui résultent de l’agitation thermique du milieu. Dans ce paragraphe, nous allons tenter d’expliquer pourquoi nos spectres  $S_{A-B}$  sont insensibles à l’élévation de température et insensibles à l’écoulement produit.

Premièrement, d’après la vitesse à laquelle le film s’amincit lors de nos expériences, l’augmentation de la température due à l’absorption du faisceau pompe est relativement faible.

On calcule  $\theta_{max} < 1^\circ\text{C}$ . Il est donc raisonnable de négliger la variation de la viscosité du film due à l'élévation de la température. De plus, on rappelle que la largeur du faisceau pompe qui correspond à la distance typique sur laquelle la température varie est environ trois ordres de grandeur supérieure à la largeur du faisceau sonde. Ainsi, sous le faisceau sonde, où les fluctuations de surface sont mesurées, les gradients de viscosité et de tension de surface ne modifient pas les fluctuations de surface de façon significative. Par ailleurs, l'élévation de température induit une augmentation de l'énergie thermique  $k_B T$  inférieure à 0.4%, celle-ci peut donc être considérée comme constante.

Au paragraphe 4, nous avons vu que l'effet thermocapillaire induit un écoulement dans le film. Dans notre cas, où la largeur du profil de température ( $R_1 \approx 1\text{ mm}$ ) est largement supérieure à l'épaisseur du film ( $h < 1\ \mu\text{m}$ ), on se situe dans le régime où  $A \gg 1$ , il s'agit d'un écoulement de cisaillement. Les fluctuations ne sont donc pas mesurées sur un film à l'équilibre mais sur un film cisailé. Or, il est légitime d'imaginer que le cisaillement puisse modifier les fluctuations à l'interface. Notons que dans ce cas, le système est hors équilibre puisque de l'énergie y est continûment injectée. Il ne devrait plus être possible d'appliquer les méthodes habituelles de la physique statistique (telles que les théorèmes d'équipartition ou des fluctuations-dissipation). La description des fluctuations thermiques d'une interface sous l'effet d'un écoulement de cisaillement a été effectuée dans la thèse de Marine Thiébaud [65]. Ce travail montre que la modification des fluctuations est gouvernée par le nombre sans dimension :

$$\alpha = \frac{\xi_T}{l_c} \times \dot{\epsilon}\tau \quad (\text{III.107})$$

Le nombre  $\alpha$  est le produit de deux nombres sans dimension. Le premier  $\xi_T/l_c$  est le rapport entre les deux longueurs caractéristiques de l'interface : celle typique de la rugosité  $\xi_T$  et celle typique des corrélations spatiales des ondes capillaires  $l_c$ . Le second,  $\dot{\epsilon}\tau$ , est le rapport entre les deux temps caractéristiques, celui de l'interface  $\tau$  et celui de l'écoulement  $1/\dot{\epsilon}$ . Pour  $\alpha \ll 1$ , l'effet du cisaillement sur les fluctuations est négligeable. Autrement, pour  $\alpha \geq 1$ , les fluctuations sont lissées par l'écoulement, comme cela a été observé expérimentalement [66]. Afin de savoir si le cisaillement induit par l'effet thermocapillaire devrait modifier les spectres de fluctuations  $S_{A-B}$ , nous allons évaluer les différents paramètres qui définissent le nombre  $\alpha$ .

#### Evaluation de $\dot{\epsilon}\tau$

Dans notre cas, on mesure le spectre  $S_{A-B}$  à des fréquences supérieures à 1 kHz. Le temps caractéristique maximal des fluctuations mesurées est donc  $\tau \approx 1\text{ ms}$ . On cherche ensuite à évaluer le taux de cisaillement  $\dot{\epsilon}$  dans le film dû à l'effet thermocapillaire. D'après le profil de vitesse dans le film (III.78), le taux de cisaillement s'écrit  $\dot{\epsilon} = 1/\eta \partial_r \gamma$ . Le taux de cisaillement

n'est donc pas constant mais dépend de l'éloignement  $r$  du centre du faisceau pompe.  $\dot{\gamma}$  est nul au centre et maximum pour  $r \approx R_1$ . En supposant les deux faisceaux centrés, le taux de cisaillement sous le faisceau sonde est maximum pour  $r = R_0$  et peut s'écrire  $\dot{\epsilon}_{r=R_0} = \dot{h}R_0/h^2$ . D'après la vitesse d'amincissement  $\dot{h}$  du film observée sur les courbes des figures III.52-III.56, le taux de cisaillement sous le faisceau sonde est toujours inférieur à  $10 \text{ s}^{-1}$ . Le nombre  $\dot{\epsilon}\tau$  est donc inférieur à 0.01.

#### Evaluation de $\xi_T/l_c$

L'expression exacte de la rugosité de l'interface a été déterminée au paragraphe 2.2 du chapitre I,  $\xi_T \approx \sqrt{\frac{k_B T}{2\pi\gamma} \ln q_{max} l_c}$ . Dans notre cas,  $\gamma = 2.10^{-2} \text{ N/m}$ , on obtient  $\xi_T \approx 10^{-10} \text{ m}$  et  $l_c \approx 10^{-3} \text{ m}$ . Le rapport  $\xi_T/l_c$  est égal à  $10^{-7}$ .

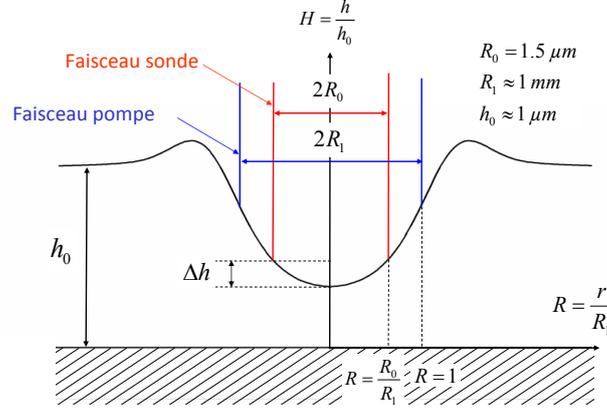
D'après les évaluations des nombres  $\dot{\epsilon}\tau$  et  $\xi_T/l_c$ , on obtient  $\alpha \approx 10^{-8}$ . L'effet du cisaillement sur les fluctuations de surface mesurées dans nos spectres est complètement négligeable. Dans l'expérience de Derks *et al.*, il s'agit d'une interface obtenue après démixion d'un mélange colloïdes/polymères, la tension de surface est extrêmement faible ( $\gamma = 10^{-9} \text{ N/m}$ ) et la longueur capillaire est très élevée ( $l_c = 10^{-6} \text{ m}$ ). Dans leur cas, le rapport  $\dot{\gamma}\tau$  est proche de l'unité. Ainsi, malgré un taux de cisaillement appliqué relativement faible ( $\dot{\epsilon} \leq 1 \text{ s}^{-1}$ ), dans leur expérience l'effet de l'écoulement sur les fluctuations de surface est visible.

En conclusion, l'élévation de température et l'écoulement du film, dus à l'absorption du faisceau pompe, sont trop faibles pour modifier significativement les fluctuations de surface sous le faisceau sonde. Il est donc cohérent que les spectres de fluctuations  $S_{A-B}$  mesurés avec ou sans l'utilisation du faisceau pompe soient identiques.

#### Remarque sur l'épaisseur du film sondé

L'utilisation de l'effet thermocapillaire implique l'existence d'un gradient d'épaisseur sous le faisceau sonde. La mesure des fluctuations ne s'effectue donc pas sur un film d'épaisseur uniforme mais sur un film dont l'épaisseur varie dans l'espace. Afin d'estimer la variation d'épaisseur sous le faisceau sonde, on peut utiliser l'équation différentielle (III.84) qui décrit la variation du profil normalisé  $H(R)$  au cours du temps. Dans la suite, on se place dans le cas où  $A \gg 1$ , on rappelle que dans cette limite, l'effet de la pression capillaire sur l'écoulement est négligeable. Notons qu'il s'agit du cas le plus défavorable pour la variation d'épaisseur. En effet, pour  $A \leq 1$ , la pression capillaire réduit la courbure de la surface libre, les variations d'épaisseur sont donc plus faibles. Sur la figure III.59, on représente la déformation de la surface libre pour un profil de température de largeur  $R_1$ , calculé d'après l'équation différentielle (III.84) pour  $A = 10$ . Malgré le centrage du faisceau sonde sur le faisceau pompe, il existe

une variation d'épaisseur  $\Delta h$  sous le faisceau sonde. Notons cependant que le schéma n'est pas du tout à l'échelle. Ci-dessous, on rappelle l'équation différentielle (III.84) dans le cas où



**Figure III.59** – Schéma illustrant la variation d'épaisseur  $\Delta h$  sous le faisceau sonde (où les fluctuations de surface sont mesurées pendant l'expérience). Notons que le schéma n'est pas du tout à l'échelle.

$A \gg 1$  :

$$\partial_T H + A \frac{1}{R} \partial_R (R H^2 \partial_R \Theta) = 0 \quad (\text{III.108})$$

où  $h = \frac{h}{h_0}$ ,  $R = \frac{r}{R_1}$ ,  $\Theta = \frac{\theta}{\theta_{max}}$ ,  $A = \frac{3}{2} \frac{\theta_{max}}{\gamma_0} \gamma_0 \frac{R_1^2}{h_0^2}$  et  $T = \frac{\gamma_0 h_0^3 t}{3\eta R_1^4}$ .

On cherche à calculer la variation d'épaisseur relative maximale sous le faisceau sonde au cours de la déformation, soit  $\epsilon(t) = (h(R_0, t) - h(0, t)) / h(R_0, t)$

Sachant que l'on s'intéresse au profil sous le faisceau sonde (pour  $r \leq R_0$ ) et que  $R_0 \ll R_1$ , on a  $R \ll 1$ . Dans ce cas, l'équation différentielle (III.108) se simplifie et s'intègre directement :

$$H(R, T) = (1 + f(R)T)^{-1} \quad (\text{III.109})$$

Avec  $f(R) = A(R\partial_R^2 \Theta + \partial_R \Theta) / R$ . Par ailleurs, on s'intéresse en particulier aux fluctuations de surface lorsque l'épaisseur du film est faible par rapport à l'épaisseur initiale, soit lorsque  $f(R)T \gg 1$ . Dans cette limite, la variation d'épaisseur relative maximale sous le faisceau sonde s'écrit :

$$\epsilon = 1 - \frac{f(R_0/R_1)}{f(0)} \quad (\text{III.110})$$

Notons que ce rapport est constant au cours du temps. La variation d'épaisseur relative ne dépend pas de l'épaisseur du film (pour  $h \ll h_0/2$ ). En supposant le profil de température sous le faisceau sonde gaussien ( $\Theta = \exp(-R^2)$ ), la variation d'épaisseur relative s'écrit simplement  $\epsilon = (R_0/R_1)^2$ . En pratique pour  $R_0 = 1.5 \mu\text{m}$  et  $R_1 \approx 1 \text{ mm}$ , on obtient  $\epsilon = 2.10^{-4}$ . La variation d'épaisseur relative est extrêmement faible. L'utilisation d'un faisceau pompe dont

la largeur  $R_1$  est beaucoup plus grande que celle du faisceau sonde  $R_0$  garantit la mesure des fluctuations sur un film dont l'épaisseur est uniforme.

#### 5.5 Films d'hexadécane

On s'intéresse au cas de l'hexadécane sur un substrat en verre en mouillage total. On utilise le même substrat que celui utilisé précédemment pour l'huile silicone. Comme effectué avec l'huile silicone, on souhaite mesurer les fluctuations à la surface libre d'un film d'hexadécane afin de sonder la condition hydrodynamique à l'interface hexadécane/verre. On rappelle qu'un glissement significatif ( $b = 115 \text{ nm}$ ) a déjà été observé entre l'hexadécane et une surface de saphir en mouillage total [67]. La mesure des fluctuations sur un film dont l'épaisseur est d'une centaine de nanomètres doit donc permettre d'être sensible à l'effet du glissement.

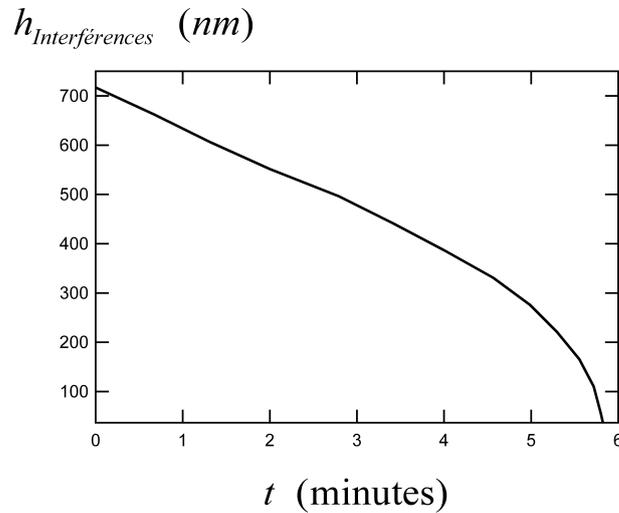
L'hexadécane (Aldrich 99%) est un alcane linéaire dont le squelette possède 16 carbones. Les principales propriétés physiques de l'hexadécane à 25°C et à pression atmosphérique sont les listées dans le tableau III.2.

Viscosité	Densité	Tension de surface	Indice Optique	Variation tension de surface
3.0 mPa.s	0.733	27.5 mN/m	1.434	$-8.5 \cdot 10^{-5} \text{ N/m/K}$

**Tableau III.2** – Propriétés de l'hexadécane pour 25°C.

La tension de surface de l'hexadécane (27.5 mN/m) est plus élevée que celle de l'huile silicone utilisée précédemment (20.6 mN/m). Mais d'après (III.105), l'amplitude du spectre  $S(\omega)_{A-B}$  aux fréquences sondées est indépendante de la tension de surface. En revanche, la viscosité de l'hexadécane (3.00 mPa.s) est plus faible que celle de l'huile silicone utilisée (19 mPa.s). Or, d'après (III.105), l'amplitude du spectre  $S_{A-B}$  est inversement proportionnelle à la viscosité du film. Ainsi, pour une même amplitude minimum de  $S_{A-B}$ , on peut mesurer les fluctuations sur un film plus mince avec l'hexadécane qu'avec l'huile silicone.

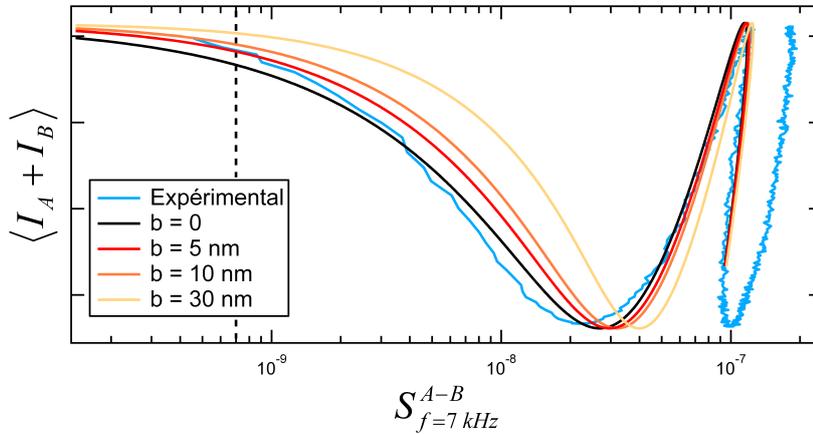
L'expérience se déroule de la même façon que pour le film d'huile silicone au paragraphe 5.4.2. On dépose une goutte d'hexadécane sur le substrat en verre. Afin d'amincir au préalable le film, on utilise la technique de spin-coating. Cette étape permet d'obtenir un film dont l'épaisseur est de 720 nm. Les fluctuations sont mesurées grâce à l'utilisation d'un faisceau sonde focalisé sur le film. Le faisceau pompe est allumé dès le début de l'expérience, l'amincissement du film au cours du temps, représenté figure III.60, est uniquement dû à l'effet thermocapillaire. L'épaisseur du film chute vers zéro en moins de 6 minutes.



**Figure III.60** – Evolution de l'épaisseur du film d'hexadécane sur un substrat en verre pendant l'expérience de mesure des fluctuations. Le faisceau pompe est allumé pendant toute la durée de l'expérience. Le temps nécessaire pour démouiller le film est inférieur à 6 minutes.

Sur la figure III.61, on représente l'intensité réfléchie moyenne  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de l'amplitude du spectre de fluctuation  $S_{A-B}$  mesuré pour le film d'hexadécane à 7 kHz. On représente également les variations calculées d'après les expressions (III.102) et (III.104) pour des épaisseurs comprises entre 0 et 300 nm et pour différentes longueurs de glissement ( $b = 0$ ,  $b = 5$  nm,  $b = 10$  nm et  $b = 30$  nm). L'amplitude du spectre minimale jusqu'à laquelle on mesure correctement les fluctuations est  $S_{A-B} = 7.10^{-10} \text{ Hz}^{-1}$ . Pour la fréquence de 7 kHz, ceci revient à étudier des films dont l'épaisseur est supérieure à 21 nm. D'après la position de la courbe expérimentale parmi le faisceau de courbes théoriques, la longueur de glissement doit être inférieure à 5 nm. Afin de déterminer  $b$  plus précisément, on ajuste la courbe expérimentale pour les épaisseurs comprises entre 21 et 220 nm en utilisant les expressions (III.102) et (III.104) avec  $b$  comme seul paramètre ajustable. On obtient  $b = -0.56$  nm. D'après les spectres de fluctuation, il n'existe pas de glissement entre l'hexadécane et le substrat en verre. Des discussions avec L. Léger sont en cours pour comprendre la différence observée.

En utilisant une huile silicone, nous avons vérifié que le spectre  $S(\omega)_{A-B}$ , calculé au paragraphe 3.3, décrit correctement la sensibilité de la technique lorsqu'il existe des interférences. Par ailleurs, nous avons montré qu'il est possible d'utiliser l'effet thermocapillaire en parallèle de la mesure des fluctuations. Cet effet n'affecte pas les fluctuations sondées et permet de réduire considérablement la durée de l'expérience. L'amplitude des spectres mesurés sur un film d'huile silicone sur un substrat en verre non rugueux confirme la condition attendue de non glissement. Les résultats obtenus pour un film d'hexadécane sur un substrat non rugueux en verre nous indiquent également qu'il n'existe aucun glissement à l'interface liquide/solide.



**Figure III.61** – Variation de  $\langle I_A + I_B \rangle$  en fonction de  $S_{A-B}$  à 5 kHz, expérimentale et calculée d’après les expressions (III.102) et (III.104) pour les longueurs de glissement suivantes :  $b = 0$ ,  $b = 5\text{ nm}$ ,  $b = 10\text{ nm}$  et  $b = 30\text{ nm}$ .

## 6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés aux fluctuations de surface d’un film liquide purement visqueux dont l’épaisseur devient comparable à la longueur d’onde des fluctuations sondées. Dans ce cas, les fluctuations sondées deviennent sensibles à la condition hydrodynamique à l’interface avec le substrat. Dans un premier temps, nous avons étudié cet effet du confinement pour différents types de substrat avec le même montage que celui présenté au chapitre I. Quel que soit le substrat utilisé, le confinement du liquide a tendance à ralentir la dynamique des fluctuations de surface. Lorsque le substrat est plan et solide, la relation entre le temps de relaxation des fluctuations et l’épaisseur du film annoncée par le modèle des ondes capillaires est vérifiée de façon remarquable. Lorsque le substrat possède un relief, les fluctuations de surface dépendent de la position relative au substrat et deviennent anisotropes. La description quantitative des effets observés nécessite un nouveau modèle. Lorsque le substrat est liquide, conformément au modèle de [12], les fluctuations de surface sont gouvernées par deux temps de relaxation. Dans ce cas, l’effet du confinement est uniquement observable aux basses fréquences. De plus, les fluctuations sont indépendantes des propriétés mécaniques du film.

Nous avons accentué nos efforts sur le cas d’un film liquide supporté par un substrat plan solide. Afin de pouvoir être sensible à un éventuel glissement, le montage du chapitre I a été modifié afin de pouvoir mesurer les fluctuations sur des films inférieurs au micromètre. Ce montage tire profit des interférences entre les réflexions du faisceau laser aux interfaces air/film et film/substrat et permet de suivre l’évolution de l’épaisseur du film pendant la mesure des fluctuations. Afin de diminuer l’épaisseur du film jusqu’au démoillage, on utilise l’effet thermocapillaire induit par l’absorption d’un second faisceau laser dans le substrat

du film étudié. Le montage obtenu permet de mesurer les fluctuations de surface de films dont l'épaisseur est d'environ 30 nanomètres. On vérifie que la dynamique des fluctuations mesurées à la surface d'un film d'huile silicone supporté par un substrat en verre est en accord avec la condition attendue de non-glissement. On s'intéresse ensuite au cas de l'hexadécane pour lequel un glissement a déjà observé. Comme pour l'huile silicone, la dynamique des fluctuations mesurées est en accord avec la condition de non-glissement. Les fluctuations ont également été mesurées lorsque le film est cisailé et aucune différence n'a été observée avec les fluctuations mesurées sur le film à l'équilibre.



---

## Conclusion et perspectives

Nous avons développé une technique optique de mesure des fluctuations thermiques de surfaces libres. La motivation de ce travail est d'utiliser les fluctuations de surface afin d'auto-révéler les propriétés d'un milieu, mais également ses propriétés d'écoulement sur un substrat, en mettant à profit l'action de la seule énergie thermique. Le principe optique repose sur la mesure des déviations d'un faisceau laser focalisé sur la surface, déviations induites par les variations de la pente locale de la surface libre du milieu. L'intérêt de cette technique par rapport à celles basées sur la diffusion de la lumière est de prendre en compte les contributions de différents modes spatiaux de la surface, au lieu d'en sélectionner un seul en se plaçant à un angle de diffusion donné. On perd ainsi une information spatiale mais le signal obtenu est beaucoup plus intense et offre la possibilité de mesurer des effets très faibles sur une très large gamme de fréquences. La taille caractéristique de la mesure est fixée par la taille du faisceau, qui détermine la longueur d'onde du mode spatial ayant la plus forte contribution au signal. Les spectres de fluctuations mesurés dépendent donc à la fois des propriétés des milieux considérés, mais également de la taille du faisceau, que l'on peut varier de quelques microns à la centaine de microns en changeant l'optique de focalisation. Nous avons déterminé l'expression théorique des spectres mesurés en fonction des propriétés du milieu et des caractéristiques du faisceau laser focalisé. Les mesures effectuées sur des liquides newtoniens permettent d'observer un excellent accord entre expérience et théorie : les spectres expérimentaux sont décrits sans aucun paramètre ajustable en utilisant d'une part les valeurs de la tension de surface, la viscosité et éventuellement de la masse volumique de ces liquides, et d'autre part la longueur d'onde et la taille du faisceau laser focalisé.

Le montage présenté est suffisamment sensible pour détecter les fluctuations de surface d'un élastomère dont le module élastique atteint  $10^6$  Pa. Dans ce cas, on montre que les fluctuations détectées sont contrôlées par le module viscoélastique du matériau. En utilisant implicitement les relations de Kramers-Kronig, nous avons mis au point une procédure d'ajustement permettant d'extraire les variations du module élastique et du module de perte en fonction de la fréquence à partir du spectre mesuré. Le bon accord entre les valeurs déduites et

les valeurs obtenues en sollicitant l'élastomère avec un rhéomètre mécanique, démontre qu'il est possible de caractériser la viscoélasticité linéaire de solides mous sans aucune sollicitation extérieure. Nous avons montré que la mesure était également bien adaptée aux fluides complexes formés par exemple par des solutions de polymères supramoléculaires. A condition que la tension de surface de ces liquides soit connue, la mesure des fluctuations permet ainsi de caractériser les propriétés de viscoélasticité linéaire sur plus de 6 décades et à des fréquences inaccessibles avec un rhéomètre conventionnel (allant jusqu'à plusieurs dizaines de kHz). Le fait que le milieu n'ait pas à être sollicité est particulièrement intéressant pour ces systèmes dans lesquels les écoulements peuvent entraîner des phénomènes complexes comme des hétérogénéités de cisaillement ou des glissements à la paroi. La technique sondant les propriétés du milieu sur des distances verticales mésoscopiques (de l'ordre de la taille du faisceau), ce sont des propriétés volumiques qui sont mesurées pour des milieux homogènes à ces échelles. En résumé, nous avons développé une technique de mesure des propriétés de viscoélasticité linéaire dans une large gamme de fréquences, non invasive, ne nécessitant qu'un faible volume de matériau (du l'ordre de  $1\mu\text{l}$ ) et pour des matériaux allant des liquides aux solides mous.

Un deuxième développement a concerné les fluctuations de surface d'un film liquide visqueux dont l'épaisseur est comparable ou inférieure à la longueur d'onde des modes de surface sondés. Dans ce cas, la dynamique des fluctuations est affectée par la condition hydrodynamique à l'interface avec le substrat solide sur lequel le film est déposé. Dans un premier temps, nous avons étudié l'effet du confinement pour différents types de substrat avec le même montage que celui utilisé pour sonder les milieux épais. Qualitativement, le confinement du liquide a pour effet de ralentir la dynamique des fluctuations de surface. Lorsque le substrat est plan et solide, on vérifie de façon remarquable les prédictions du modèle des ondes capillaires en milieu confiné. Lorsque le substrat possède un relief, on met en évidence des effets originaux : les fluctuations de surface dépendent de la position par rapport au motif du substrat et deviennent anisotropes lorsque le motif est celui d'un réseau de diffraction. La description de ces effets reste toutefois qualitative. Lorsque le substrat est liquide, conformément au modèle de [12], on observe que les fluctuations de surface sont gouvernées par deux temps de relaxation. Dans ce cas, l'effet du confinement est uniquement observable aux basses fréquences. De plus, les fluctuations mesurées sont indépendantes des propriétés mécaniques du film mais ne dépendent que de celles du substrat. Dans la suite, nous nous sommes particulièrement intéressés au cas plus riche d'un film liquide étalé sur un substrat plan solide. Puisque le ralentissement de la dynamique des fluctuations est contrôlé par la condition hydrodynamique avec le substrat, notre technique permet de quantifier un éventuel glissement sans imposer d'écoulement et sans ajouter de traceurs. Sachant que les longueurs de glissement intrinsèques sont inférieures à la centaine de nanomètres, nous avons adapté le montage optique afin de pouvoir mesurer les fluctuations sur des films minces. Ce mon-

tage tire profit des interférences entre les réflexions du faisceau laser aux interfaces air/film et film/substrat et permet de connaître l'épaisseur du film sur lequel les fluctuations sont sondées. Afin de contrôler l'épaisseur du film mince, on utilise un effet Marangoni induit par un gradient de température à la surface du liquide. Cet effet thermocapillaire est obtenu en chauffant localement le substrat grâce à l'absorption d'un second faisceau laser. Le montage obtenu permet de détecter les fluctuations de surface de films dont l'épaisseur est d'environ 30 nanomètres. Avec une huile silicone étalée sur substrat en verre, on montre que la dynamique des fluctuations mesurées est en accord avec la condition hydrodynamique attendue de non glissement. On s'intéresse ensuite au cas de l'hexadécane pour lequel un glissement a déjà été observé [64]. Comme pour l'huile silicone, la dynamique des fluctuations mesurées est en accord avec la condition de non-glissement. Les fluctuations ont également été mesurées lorsque l'on cisaille le film et aucune différence n'a été observée avec les fluctuations mesurées sur le même film à l'équilibre. Nous avons donc démontré qu'une condition hydrodynamique régissant des écoulements macroscopiques peut être déterminée avec des fluides au repos, à l'aide de la seule énergie thermique.

Les résultats obtenus permettent d'envisager différentes perspectives à ce travail. Comme nous l'avons vu, l'utilisation de la mesure des fluctuations de surface pour révéler les propriétés de viscoélasticité linéaire offre de nombreux avantages. La simplicité du principe sur lequel la technique repose permet d'envisager de l'utiliser de façon standard au même titre qu'un rhéomètre de laboratoire. Dans ce cadre, un dispositif identique à celui que j'ai utilisé dans la première partie de mon travail va être prochainement intégré à la plateforme de rhéologie du laboratoire. Par ailleurs, une version de l'expérience est en cours de développement chez Saint-Gobain Recherche pour permettre une mesure de rhéologie « sans contact » de systèmes comme les verres fondus. De façon plus générale, nous avons montré que la mise à profit de l'énergie thermique du système permet de faire de « l'hydrodynamique sans écoulement », par exemple de mesurer une éventuelle longueur de glissement sur un substrat solide. Si le glissement intrinsèque est maintenant bien compris, les effets de glissement dans les fluides complexes restent à investiguer. Par exemple, dans les solutions polymères, des longueurs de glissement allant jusqu'à plusieurs dizaines de microns ont été mesurées mais l'influence du confinement sur ces effets - qui résultent a priori d'hétérogénéités - n'est pas bien comprise. La technique que nous avons développée est particulièrement bien adaptée pour sonder les éventuelles hétérogénéités de systèmes de la matière molle dont les tailles attendues sont proches de celles sondées. Une utilisation de la mesure des fluctuations de surface, développé en parallèle à ce travail de thèse, concerne d'ailleurs les hétérogénéités dynamiques de phases colloïdales vitreuses [68, 69]. De façon plus générale, cette mesure devrait permettre de mieux comprendre les modifications de la dynamique des fluctuations dans les systèmes hors d'équilibre qu'ils soient vitreux ou en écoulement.



---

# Annexes

## A Calcul du spectre $S(\omega)$

On souhaite calculer le spectre  $S(\omega)$  mesuré avec notre technique. Pour cela, on cherche à exprimer l'intensité reçue sur chaque quadrant de la photodiode.

En effectuant un développement limité au premier ordre en  $\frac{2\pi}{\lambda} [\zeta(\vec{r}) - \zeta(\vec{r}')]$ , de l'expression (I.59), l'intensité sur le quadrant  $A$  s'écrit :

$$I_A = \int d\vec{q} \iint d\vec{r} d\vec{r}' E(r)E(r') e^{\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} + \frac{4i\pi}{\lambda} \int d\vec{q} \iint d\vec{r} d\vec{r}' E(r)E(r') [\zeta(\vec{r}) - \zeta(\vec{r}')] e^{\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \quad (\text{A.1})$$

Le premier terme noté  $I_0$  est non fluctuant, il correspond à l'intensité moyenne reçue sur chaque quadrant  $A$  et  $B$ . Le second terme s'identifie à  $\delta I$  de l'expression (I.53). Le calcul de l'intensité moyenne  $I_0$  est effectué à la fin de cette annexe. On peut mettre  $\delta I$  sous la forme d'une différence de deux termes complexes conjugués :

$$\delta I = \frac{4i\pi}{\lambda} \left\{ \int d\vec{q} \int d\vec{r} E(r) \zeta(\vec{r}, t) e^{\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot \vec{r}} \int d\vec{r}' E(r') e^{-\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot \vec{r}'} - c.c. \right\} \quad (\text{A.2})$$

L'intégrale la plus interne est la conjuguée de la transformée de Fourier de la distribution de l'éclairement. Pour un éclairement à symétrie cylindrique, cette transformée est réelle et à symétrie cylindrique, on a donc :

$$\delta I = \frac{4i\pi}{\lambda} \left\{ \int \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta \right) d\vec{q} \left[ \int d\vec{r} E(r) \zeta(\vec{r}, t) e^{\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot \vec{r}} - \int d\vec{r}' E(r) \zeta(\vec{r}', t) e^{\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot \vec{r}'} \right] \right\} \quad (\text{A.3})$$

En considérant les intégrales entre crochets comme des convolutions dans l'espace de Fourier à 2 dimensions, le terme entre crochets s'écrit :

$$(2\pi)^{-2} \int d\vec{k} \left[ \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} - \vec{k} \right) - \tilde{E} \left( -\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} - \vec{k} \right) \right] \tilde{\zeta}(\vec{k}, t) \quad (\text{A.4})$$

L'intégrale sur  $\vec{k}$  est à 2 dimensions. On a posé :

$$\tilde{E}(\vec{k}) = \int d\vec{r} E(r) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{A.5})$$

$$\tilde{\zeta}(\vec{k}) = \int d\vec{r} \zeta(r) e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (\text{A.6})$$

Ainsi,

$$\delta I = \frac{i}{\pi\lambda} \int_0^{\pi/2} \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta \right) \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi \int d\vec{k} \left[ \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} - \vec{k} \right) - \tilde{E} \left( -\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} - \vec{k} \right) \right] \zeta(\vec{k}, t) \quad (\text{A.7})$$

où l'on a utilisé la symétrie cylindrique de l'éclairement. On peut mettre  $\delta I$  sous la forme :

$$\delta I = \int d\vec{k} F(\vec{k}) \tilde{\zeta}(\vec{k}, t) \quad (\text{A.8})$$

Avec

$$F(\vec{k}) = H(\vec{k}) - H^*(-\vec{k}) \quad (\text{A.9})$$

où

$$H(\vec{k}) = \frac{i}{\pi\lambda} \int_0^\pi d\varphi \int_0^{\pi/2} \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} |\sin \theta| \right) \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} + \vec{k} \right) \cos \theta \sin \theta d\theta \quad (\text{A.10})$$

La suite du calcul, consiste à exprimer le spectre mesuré  $S(\omega)$  dans une forme appropriée, en utilisant l'expression de l'intensité  $\delta I$  calculée précédemment.

On rappelle l'expression du spectre mesuré donnée grâce au théorème de Wiener-Kintchine, faisant intervenir la fonction d'autocorrélation du signal :

$$S(\omega) = \frac{1}{I_0^2} \text{TF} [ \langle \delta I(\tau) \delta I^*(\tau + t) \rangle_\tau ] \quad (\text{A.11})$$

En utilisant l'expression (A.8), le spectre mesuré peut s'exprimer comme :

$$S(\omega) = \frac{1}{I_0^2} \int d\vec{k} F(\vec{k}) \int d\vec{k}' F^*(\vec{k}') \text{TF} [ \langle \tilde{\zeta}(\vec{k}, \tau) \tilde{\zeta}^*(\vec{k}', \tau + t) \rangle_\tau ] \quad (\text{A.12})$$

Si l'on suppose

$$\text{TF} [ \langle \tilde{\zeta}(\vec{k}, \tau) \tilde{\zeta}^*(\vec{k}', \tau + t) \rangle_\tau ] = (2\pi)^2 P(k, \omega) \delta(\vec{k} - \vec{k}') \quad (\text{A.13})$$

c'est-à-dire une indépendance temporelle des modes distincts, alors

$$S(\omega) = \frac{1}{I_0^2} \int d\vec{k} |F(\vec{k})|^2 P(k, \omega) \quad (\text{A.14})$$

On peut exprimer l'intégrale sur  $\vec{k}$  en coordonnées polaires (module  $k$  et angle polaire  $\alpha$ ) :

$$S(\omega) = \frac{1}{I_0^2} \int P(k, \omega) k dk \int_0^{2\pi} |F(\vec{k})|^2 d\alpha \quad (\text{A.15})$$

Finalement, le spectre  $S(\omega)$  peut se mettre sous la forme :

$$S(\omega) = \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi(k) k dk \quad (\text{A.16})$$

où l'on a posé la fonction de pondération :

$$\Phi(k) = \frac{1}{I_0^2} \int_0^{2\pi} |F(\vec{k})|^2 d\alpha \quad (\text{A.17})$$

Le calcul de la fonction de pondération  $\Phi(k)$  est effectué dans l'annexe [B](#).

## B Calcul de la fonction de pondération $\Phi(k)$

L'objectif est de calculer la fonction de pondération définie dans l'annexe A par :

$$\Phi(k) = \frac{1}{I_0^2} \int_0^{2\pi} |F(\vec{k})|^2 d\alpha \quad (\text{B.1})$$

Avec

$$F(\vec{k}) = H(\vec{k}) - H^*(-\vec{k}) \quad (\text{B.2})$$

où

$$H(\vec{k}) = \frac{i}{\pi\lambda} \int_0^\pi d\varphi \int_0^{\pi/2} \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} |\sin \theta| \right) \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} + \vec{k} \right) \cos \theta \sin \theta d\theta \quad (\text{B.3})$$

Avec  $\tilde{E}$  la transformée de Fourier de la distribution de l'éclairement  $E$ .

Si l'on suppose que l'éclairement du faisceau laser est gaussien :

$$E(r) = E_0 e^{-r^2/2R^2} \quad (\text{B.4})$$

La transformée de Fourier s'écrit :

$$\tilde{E}(\kappa) = \iint d\vec{r} E(r) e^{i\vec{\kappa} \cdot \vec{r}} \quad (\text{B.5})$$

$$= \int_0^\infty r dr E(r) \int_0^{2\pi} d\psi e^{i\kappa r \cos \psi} \quad (\text{B.6})$$

$$= 2\pi E_0 \int_0^\infty r dr e^{-r^2/2R^2} J_0(\kappa r) \quad (\text{B.7})$$

$$= 2\pi R^2 E_0 e^{-\kappa^2 R^2/2} \quad (\text{B.8})$$

On peut poursuivre le calcul de la fonction  $H(\vec{k})$  :

$$H(\vec{k}) = \frac{i}{\pi\lambda} \left( 2\pi R^2 E_0 \right)^2 \int_0^{\pi/2} \sin \theta \cos \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi e^{-\frac{R^2}{2} \left[ k^2 + \frac{8\pi^2}{\lambda^2} \sin^2 \theta - \frac{4\pi}{\lambda} k \sin \theta \cos(\varphi - \alpha) \right]} \quad (\text{B.9})$$

$$= \frac{4i\pi}{\lambda} R^4 E_0^2 \int_0^{\pi/2} e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda} R^2 \sin^2 \theta} \sin \theta \cos \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi e^{\frac{R^2}{2} \left[ \frac{4\pi}{\lambda} k \sin \theta \cos(\varphi - \alpha) - k^2 \right]} \quad (\text{B.10})$$

En posant

$$\omega = \frac{2\pi R}{\lambda} \quad (\text{B.11})$$

$$\kappa = kR \quad (\text{B.12})$$

## B Calcul de la fonction de pondération $\Phi(k)$

$$H(\vec{k}) = \frac{i\lambda}{\pi} R^2 E_0^2 e^{-\kappa^2/2} \int_0^\omega e^{-u^2} u du \int_0^\pi d\varphi e^{\kappa u \cos(\varphi-\alpha)} \quad (\text{B.13})$$

$$\cong \frac{i\lambda}{\pi} R^2 E_0^2 e^{-\kappa^2/2} \int_0^\infty e^{-u^2} u du \int_0^\pi d\varphi e^{\kappa u \cos(\varphi-\alpha)} \quad (\text{B.14})$$

La dernière relation est valable pour  $\omega \gg 1$ . En pratique, le rayon  $R$  du faisceau focalisé à l'interface est toujours supérieur à la longueur d'onde  $\lambda$  du laser. On a donc  $\omega = \frac{2\pi R}{\lambda} > 6$ . La double intégrale s'interprète comme une somme sur le demi-plan supérieur. Avec (3.323.2) et (3.322.2) d'après [70], on obtient :

$$H(\vec{k}) = \frac{i\lambda}{\pi} R^2 E_0^2 e^{-\kappa^2/2} \int_{-\infty}^\infty du_x \int_0^\infty du_y e^{-u_x^2 - u_y^2 + u_x \kappa \cos \alpha + u_y \kappa \sin \alpha} \quad (\text{B.15})$$

$$= \frac{i\lambda}{\pi} R^2 E_0^2 e^{-\kappa^2/2} \sqrt{\pi} e^{\frac{\kappa^2}{4} \cos^2 \alpha} \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^{\frac{\kappa^2}{4} \sin^2 \alpha} \operatorname{erfc} \left( -\frac{\kappa}{2} \sin \alpha \right) \quad (\text{B.16})$$

$$= \frac{i\lambda}{\pi} R^2 E_0^2 e^{-\kappa^2/4} \left[ 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{\kappa}{2} \sin \alpha \right) \right] \quad (\text{B.17})$$

Dans laquelle  $\operatorname{erf}$  représente la fonction erreur  $\operatorname{erf} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\infty e^{-t^2} dt$ . Alors

$$F(\vec{k}) = i\lambda R^2 E_0^2 e^{\frac{\kappa^2}{4}} \operatorname{erf} \left( \frac{\kappa}{2} \sin \alpha \right) \quad (\text{B.18})$$

### Calcul de l'intensité moyenne $I_0$

Afin de calculer la fonction  $\Phi(k)$ , il est nécessaire de calculer l'intensité  $I_0$  reçue sur chaque quadrant. L'intensité moyenne s'écrit :

$$I_0 = \int d\vec{q} \iint d\vec{r} d\vec{r}' E(r) E(r') e^{\frac{2i\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \quad (\text{B.19})$$

Soit encore

$$I_0 = \int d\vec{q} \left| \tilde{E} \left( \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta \right) \right|^2 \quad (\text{B.20})$$

Pour un éclairage gaussien, défini par l'expression (B.4), l'intensité  $I_0$  se met sous la forme

$$I_0 = 4\pi^2 R^4 E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^\pi d\varphi e^{-\frac{2\pi^2 R^2 \sin^2 \theta}{\lambda^2}} \quad (\text{B.21})$$

$$= 4\pi^3 R^4 E_0^2 \int_0^1 x dx e^{-x^2 \frac{2\pi^2 R^2}{\lambda^2}} \quad (\text{B.22})$$

$$= 4\pi^3 R^4 E_0^2 \frac{\lambda^2}{4\pi^2 R^2} \left[ 1 - e^{-\frac{2\pi^2 R^2}{\lambda^2}} \right] \quad (\text{B.23})$$

## Annexes

---

Comme  $\frac{2\pi^2 R^2}{\lambda^2} \gg 1$ , l'intensité s'écrit :

$$I_0 \cong \pi R^2 E_0^2 \lambda^2 \quad (\text{B.24})$$

Finalement, la fonction d'appareil s'écrit :

$$\Phi(k) = \frac{1}{\pi^2 \lambda^2} e^{-\frac{\kappa^2 R^2}{2}} \int_0^{2\pi} d\alpha \operatorname{erf}^2 \left( \frac{\kappa R}{2} \sin \alpha \right) \quad (\text{B.25})$$

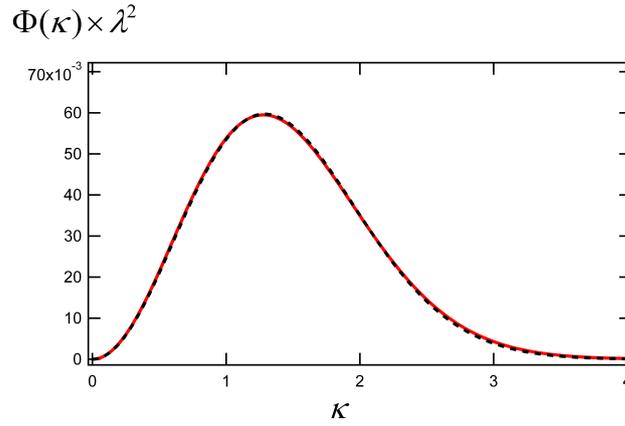
Une bonne approximation est

$$e^{-\frac{x^2}{2}} \int_0^{2\pi} d\alpha \operatorname{erf}^2 \left( \frac{x}{2} \sin \alpha \right) \cong 0.979 x^2 e^{-\frac{x^2}{1.658}} \quad (\text{B.26})$$

On peut donc écrire :

$$\Phi(k) \cong \frac{1}{\pi^2 \lambda^2} B k^2 R^2 e^{-\frac{\kappa^2 R^2}{c}} \quad (\text{B.27})$$

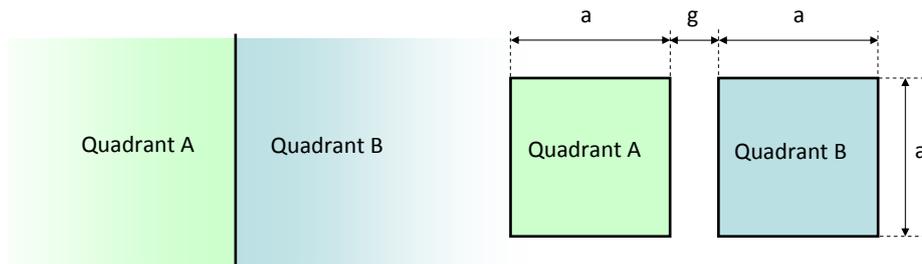
où  $B = 0.979$  et  $c = 1.658$



**Figure 62** – Fonctions de pondération calculée (en trait plein rouge) et approximée (en pointillés noirs) en fonction du produit  $\kappa = kR$ .

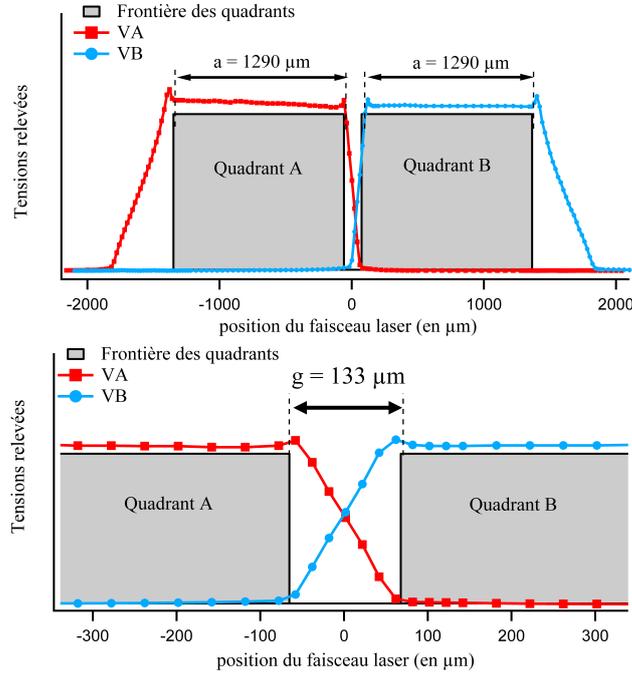
## C Sur le gap entre les quadrants

Le calcul de la fonction de pondération  $\Phi(k)$  a été effectué en supposant que les deux quadrants de la photodiode constituent respectivement deux espaces semi-infini (figure 63). En pratique, les fluctuations sont mesurées avec deux quadrants qui possèdent une forme carrée de largeur  $a$ , espacés d'une distance  $g$  (figure 63). L'existence d'une zone séparant les deux



**Figure 63** – Représentations des deux quadrants permettant de mesurer les fluctuations du faisceau réfléchi. Dans le calcul de la fonction de pondération, on suppose implicitement que les deux quadrants possèdent une taille infinie et sont collés l'un à l'autre (représentation de gauche). En pratique, les fluctuations sont mesurées avec une photodiode constituée de deux quadrants ayant une forme carrée de largeur  $a$  et sont séparés l'un de l'autre de la distance  $g$ .

quadrants, sur laquelle le faisceau est centré dans la mesure des fluctuations, nous incite à réfléchir aux éventuels effets causés par cette zone sur le signal mesuré : la largeur finie du gap a-t-elle une influence significative sur le signal mesuré ? Afin de pouvoir répondre à cette question, on cherche à connaître la réponse spatiale des quadrants sur l'ensemble de la photodiode. Pour cela, on focalise un faisceau laser directement sur la photodiode afin d'éclairer la plus petite zone possible, et on relève les tensions  $V_A$  et  $V_B$  délivrées par chacun des quadrants en fonction de la position du faisceau par rapport aux quadrants. Les courbes obtenues sont représentées sur la figure 64, où l'on a ajouté les frontières des deux quadrants, observées au microscope. D'après cette observation de la photodiode au microscope, on mesure  $a = 1290 \mu m$  et  $g = 133 \mu m$ . Lorsque l'on envoie le faisceau dans une zone se situant sur l'un des quadrants, la tension délivrée est indépendante de la position du point éclairé ainsi que du quadrant choisi. Cependant, on remarque que les quadrants sont sensibles à l'éclairement en dehors de leurs frontières. Notamment dans la zone séparant les deux quadrants, où la tension ne varie pas brutalement, mais décroît linéairement sur la distance  $g$ . Les tensions délivrées par les quadrants ne sont donc pas indépendantes de l'éclairement dans la zone intermédiaire. En tenant compte de la réponse réelle des quadrants, nous allons calculer le signal mesuré pour une fluctuation d'interface donnée et comparer le résultat à celui obtenu pour le cas idéal de référence où  $g = 0$ . Cette comparaison nous permettra d'évaluer quantitativement l'effet, dû à l'espace entre les deux quadrants, et savoir si cela peut entraîner un écart significatif entre le spectre mesuré et celui calculé. Pour effectuer ce calcul, on modélise la réponse spatiale



**Figure 64** – Réponse spatiale des deux quadrants de la photodiode. On affiche la tension délivrée par chaque quadrant, symbole carré rouge pour  $A$  et rond bleu pour  $B$ , en fonction de la position relative du faisceau laser les éclairant. On superpose à ces réponses, en trait plein, les frontières de chaque quadrant observées au microscope. On remarque que les quadrants possèdent une sensibilité non négligeable en dehors de leurs frontières. La figure du dessous est un zoom de ces réponses sur le gap séparant les deux quadrants.

mesurée sur chaque quadrant  $A$  et  $B$  par deux fonctions analytiques  $f_A$  et  $f_B$  définies par morceaux. D’après les courbes  $V_A$  et  $V_B$  représentées sur la figure 64, on a :

$$f_A(x) = \begin{cases} 1 & \text{si } x < -g/2 \\ -x/g + 1/2 & \text{si } |x| < g/2 \\ 0 & \text{si } x > g/2 \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

$$f_B(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } x < -g/2 \\ x/g + 1/2 & \text{si } |x| < g/2 \\ 1 & \text{si } x > g/2 \end{cases} \quad (\text{C.2})$$

Dans la limite où  $g = 0$ , correspondant au cas de référence, ces fonctions deviennent :

$$f_A(x) = \begin{cases} 1 & \text{si } x < 0 \\ 0 & \text{si } x > 0 \end{cases} \quad (\text{C.3})$$

$$f_B(x) = \begin{cases} 0 & \text{si } x < 0 \\ 1 & \text{si } x > 0 \end{cases} \quad (\text{C.4})$$

On considère un mode  $k$  de déformation de surface, tel que  $kR_0 \ll 1$ , c'est-à-dire une déformation de grande longueur d'onde par rapport à la taille du faisceau  $R_0$  à l'interface. L'interface peut donc être considérée comme plane dans le faisceau. On note  $\delta\alpha$  la variation d'angle de l'interface induite par une fluctuation. Si l'on note  $L$ , la distance entre l'interface et la photodiode, alors le faisceau réfléchi sur la photodiode est dévié de la distance  $\delta x = 2\delta\alpha L$  suivant l'axe  $x$ . En supposant que le profil d'intensité du faisceau laser est gaussien, l'éclairement dans le plan de la photodiode, obtenu pour une fluctuation d'angle  $\delta\alpha$ , s'écrit :

$$I(x, y) = I_0 e^{-\frac{(x+\delta x)^2 + y^2}{R_L^2}} \quad (\text{C.5})$$

où  $R_L$  est la largeur du faisceau laser dans le plan de la photodiode. D'après l'expression (x), pour  $L \gg z_R$ , on a  $R_L \gg \sqrt{2}L\theta_0$ , où  $\theta_0$  est le demi-angle de divergence du faisceau défini par (x). Les tensions  $V_A$  et  $V_B$  délivrées par les quadrants  $A$  et  $B$  sont proportionnelles à l'intensité lumineuse reçue sur chacun des quadrants pondérée par la réponse spatiale correspondante. En supposant on écrit :

$$V_A \propto \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy I(x, y) f_A(x) \quad (\text{C.6})$$

$$V_B \propto \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy I(x, y) f_B(x) \quad (\text{C.7})$$

où l'on a supposé la taille des quadrants grande devant la largeur du faisceau qui les éclaire,  $a \gg R_L$ .

On note  $s$ , la différence de tension normalisée dont on calcule ensuite la densité spectrale de puissance pour obtenir le spectre  $S(\omega)$  :

$$s = \frac{V_A - V_B}{V_A + V_B} \quad (\text{C.8})$$

Dans le cas de référence, où la distance entre les quadrants est nulle ( $g = 0$ ), on calcule

$$s_{g=0} = \operatorname{erf}\left(\frac{\delta x}{R_L}\right) = \operatorname{erf}\left(\sqrt{2}\frac{\delta\alpha}{\theta_0}\right) \quad (\text{C.9})$$

En pratique, les angles de fluctuations sont très faibles devant la divergence du faisceau,  $\delta\alpha \ll \theta_0$ . On peut retenir uniquement le premier terme du développement en série entière de la fonction erreur :

$$s_{g=0} \cong \frac{2\sqrt{2}}{\sqrt{\pi}} \frac{\delta\alpha}{\theta_0} \quad (\text{C.10})$$

Le signal mesuré est donc proportionnel au rapport entre l'angle de fluctuation et l'angle de divergence du faisceau. Pour une distance entre les quadrants non nulle, on obtient :

$$s = s_{g=0} \times f\left(\frac{g}{2R_L}\right) \quad (\text{C.11})$$

où

$$f(x) = \frac{\sqrt{\pi} \operatorname{erf}(x)}{2x} \quad (\text{C.12})$$

Le signal mesuré  $s$  dans le cas général où  $g \neq 0$ , s'écrit comme le produit du signal de référence  $s_{g=0}$  et d'une fonction de  $g/2L_R$ . En pratique, on a  $g = 133 \mu m$  et pour une largeur de faisceau à l'interface  $R_0 = 28 \mu m$  et en plaçant la photodiode à 9 cm de l'interface, on a une largeur de faisceau éclairant les quadrants  $R_L = \frac{z\lambda}{2\pi R_0} \approx 324 \mu m$ . On a donc  $x = g/2L_R \approx 0.205$  et  $f(0.205) \approx 0.986$ .

Malgré une largeur de séparation relativement importante par rapport à la taille du faisceau  $g/2R_L \approx 20\%$ , ce calcul montre que le signal  $s$ , mesuré avec notre photodiode, est moins de 2% plus faible que dans le cas idéal où  $g = 0$ . En conclusion, l'existence de cet espace entre les deux quadrants ne provoque pas d'écart important entre le signal mesuré et le signal calculé. Nous avons pu tester expérimentalement l'influence de cette largeur de séparation en utilisant une photodiode ayant un écart différent entre les quadrants ( $g = 50 \mu m$  au lieu de  $g = 133 \mu m$ ). Le spectre de fluctuations est alors 1% plus élevé que celui obtenu avec la photodiode où  $g = 133 \mu m$ . Ceci nous confirme bien que la largeur de séparation, dans nos conditions, n'entraîne pas d'écart important sur la mesure des fluctuations.

## D Calcul du spectre hors du col

Dans cette annexe, nous allons généraliser le calcul du spectre  $S(\omega)$  effectué en annexe A et B au cas où l'interface ne se situe plus au col du faisceau laser. Pour cela, on utilise l'expression générale du champ lumineux d'un faisceau gaussien :

$$E(r, z) = A_0 \frac{R_0}{R(z)} \exp \left[ -r^2 \left( \frac{1}{2R^2(z)} - \frac{i\pi}{\lambda \Gamma(z)} \right) - i \tan^{-1} \frac{z}{z_R} + i \frac{2\pi}{\lambda} z \right] \quad (\text{D.1})$$

Les relations définissant les paramètres sont :

$$\Gamma(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right]^2 \quad (\text{D.2})$$

$$R(z) = R_0 \sqrt{1 + \left( \frac{z}{z_R} \right)^2} \quad (\text{D.3})$$

$$z_R = \frac{2\pi R_0^2}{\lambda} \quad (\text{D.4})$$

$$\xi = \frac{z_R}{z_R + iz} \quad (\text{D.5})$$

On montre facilement

$$\frac{R_0}{R(z)} e^{-i \tan^{-1} \frac{z}{z_R}} = \frac{z_R}{z_R + iz} = \xi \quad (\text{D.6})$$

$$\frac{1}{2R^2(z)} - \frac{i\pi}{\lambda \Gamma(z)} = \frac{z_R^2}{2R_0^2 (z_R^2 + z^2)} - i \frac{z_R}{2R_0^2} \frac{z}{z_R^2 + z^2} \quad (\text{D.7})$$

$$= \frac{1}{w_0^2} \frac{z_R}{z_R + iz} \quad (\text{D.8})$$

$$= \frac{1}{w_0^2} \xi \quad (\text{D.9})$$

Le champ peut se mettre sous la forme :

$$E(r, z) = A_0 \xi e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \xi + \frac{2i\pi}{\lambda} z} \quad (\text{D.10})$$

On note

$$A(r, z) = A_0 \xi e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \xi} \quad (\text{D.11})$$

Le champ diffusé dans la direction  $\vec{q}$  par un point du plan de hauteur moyenne  $Z$  par rapport au waist situé en  $\vec{r}, Z + \zeta(\vec{r})$  peut s'écrire :

$$E(\vec{r}, Z + \zeta(\vec{r}), \vec{q}) = A(r, Z + \zeta(\vec{r})) e^{\frac{2i\pi}{\lambda} (Z + 2\zeta(\vec{r})) + i\vec{q} \cdot \vec{r}} \quad (\text{D.12})$$

Considérant que les fluctuations de hauteurs sont petites, un développement au premier ordre conduit à

$$E(\vec{r}, Z + \zeta(\vec{r}), \vec{q}) = A(r, Z) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} + \zeta(\vec{r}) \left[ \frac{4i\pi}{\lambda} A(r, Z) + \partial_Z A(r, Z) \right] e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \quad (\text{D.13})$$

On a ignoré le facteur de phase constant  $e^{\frac{2i\pi}{\lambda} Z}$ . D'autre part,

$$\partial_Z A(r, Z) = A_0 z_R \left[ \frac{-i}{(z_R + iZ)^2} + \frac{r^2}{2R_0^2} \frac{iz_R}{(z_R + iZ)^3} \right] e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \frac{z_R}{z_R + iz}} \quad (\text{D.14})$$

$$= A(r, Z) \left[ \frac{-i}{z_R + iZ} + \frac{r^2}{2R_0^2} \frac{iz_R}{(z_R + iZ)^2} \right] \quad (\text{D.15})$$

Le champ diffusé se met sous la forme

$$E(\vec{r}, Z + \zeta(\vec{r}), \vec{q}) = A(r, Z) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} + \frac{4i\pi}{\lambda} \zeta(\vec{r}) (U + Vr^2) A(r, Z) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \quad (\text{D.16})$$

avec

$$U = 1 - \frac{\lambda}{4\pi} \frac{1}{z_R + iZ} = 1 - \frac{\xi R_0^2}{2 z_R^2} \quad (\text{D.17})$$

$$V = \frac{1}{4} \frac{1}{(z_R + iZ)^2} = \frac{\xi^2}{4} \frac{1}{z_R^2} \quad (\text{D.18})$$

On note

$$\tilde{A}(r, Z) = (U + Vr^2) A(r, Z) \quad (\text{D.19})$$

Cette amplitude modifiée reste à symétrie cylindrique. L'intensité dans la direction  $\vec{q}$  s'écrit alors pour le terme fluctuant

$$\delta I(\vec{q}) = \frac{4i\pi}{\lambda} \int d\vec{r} \zeta(\vec{r}) \tilde{A}(r, Z) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} \int d\vec{r}' A^*(r', Z) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}'} + c.c. \quad (\text{D.20})$$

On définit les transformées de Fourier

$$A(\vec{q}, Z) = \int A(r, Z) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (\text{D.21})$$

$$\zeta(\vec{q}) = \int \zeta(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (\text{D.22})$$

$$\zeta(\vec{r}) = \frac{1}{4\pi^2} \int \zeta(\vec{q}) e^{-i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{q} \quad (\text{D.23})$$

$$\tilde{A}(\vec{q}, Z) = \int \tilde{A}(r, Z) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (\text{D.24})$$

$$= (U - V\Delta) A(\vec{q}, Z) \quad (\text{D.25})$$

où  $\Delta$  est l'opérateur de Laplace. Remplaçant  $\zeta(\vec{r})$  par son expression dans l'espace de Fourier dans (D.20), on obtient

$$\delta I(\vec{q}) = \frac{i}{\pi\lambda} \int d\vec{k} \int d\vec{r} \zeta(\vec{k}) \tilde{A}(r, Z) e^{i(\vec{q}-\vec{k})\vec{q}\cdot\vec{r}} \int d\vec{r}' A^*(r', Z) e^{-i\vec{q}\cdot\vec{r}'} + c.c. \quad (\text{D.26})$$

$$= \frac{i}{\pi\lambda} A^*(\vec{q}, Z) \int d\vec{k} \tilde{A}(\vec{q}-\vec{k}, Z) \zeta(\vec{k}) + c.c. \quad (\text{D.27})$$

Sur un quadrant de la photodiode,

$$\delta I^+ = \int \delta I(\vec{q}) \cos \theta d\vec{q} \quad (\text{D.28})$$

$$= \int_0^{\pi/2} \sin \theta \cos \theta d\theta \int_0^\pi \delta I(\vec{q}) d\varphi \quad (\text{D.29})$$

Ainsi

$$\delta I^+ = \frac{i}{\pi\lambda} \int A^*(\vec{q}, Z) \cos \theta d\vec{q} \int \tilde{A}(\vec{q}-\vec{k}, Z) \zeta(\vec{k}) d\vec{k} + c.c. \quad (\text{D.30})$$

$$\delta I^+ = \frac{i}{\pi\lambda} \int \zeta(\vec{k}) d\vec{k} \int A^*(\vec{q}, Z) \tilde{A}(\vec{q}-\vec{k}, Z) \cos \theta d\vec{q} + c.c. \quad (\text{D.31})$$

$$= \int \zeta(\vec{k}) G(\vec{k}) d\vec{k} + c.c. \quad (\text{D.32})$$

On a noté

$$G(\vec{k}) = \frac{i}{\pi\lambda} \int A^*(\vec{q}, Z) \tilde{A}(\vec{q}-\vec{k}, Z) \cos \theta d\vec{q} \quad (\text{D.33})$$

Maintenant on cherche à exprimer le terme *c.c.* en fonction de  $\zeta(\vec{k})$  :

$$\delta I^+ = \int \zeta(\vec{k}) G(\vec{k}) d\vec{k} + \int \zeta^*(\vec{k}) G^*(\vec{k}) d\vec{k} \quad (\text{D.34})$$

$$= \int \zeta(\vec{k}) G(\vec{k}) d\vec{k} + \int \zeta^*(-\vec{k}) G^*(-\vec{k}) d\vec{k} \quad (\text{D.35})$$

$$= \int \zeta(\vec{k}) [G(\vec{k}) + G^*(-\vec{k})] d\vec{k} \quad (\text{D.36})$$

on a utilisé le fait que  $\zeta(\vec{r})$  est réelle et donc que  $\zeta^*(-\vec{k}) = \zeta(\vec{k})$ . On note

$$F(\vec{k}) = G(\vec{k}) + G^*(-\vec{k}) \quad (\text{D.37})$$

Ainsi,

$$\delta I^+ = \int F(\vec{k}) \zeta(\vec{k}) d\vec{k} \quad (\text{D.38})$$

La suite est identique au calcul de l'annexe A. La fonction d'appareil est donnée par la relation

$$\Phi(k) = \frac{1}{I_0^2} \int_0^{2\pi} |F(\vec{k})|^2 d\alpha \quad (\text{D.39})$$

On peut remarquer que

$$G(\vec{k}) = \frac{i}{\pi\lambda} \int A^*(\vec{q}, Z) (U - V\Delta) A(\vec{q} - \vec{k}, Z) \cos\theta d\vec{q} \quad (\text{D.40})$$

$$= \frac{i}{\pi\lambda} (U - V\Delta) \int A^*(\vec{q}, Z) A(\vec{q} - \vec{k}, Z) \cos\theta d\vec{q} \quad (\text{D.41})$$

$$= (U - V\Delta) H(\vec{k}) \quad (\text{D.42})$$

avec la notation  $H(\vec{k})$  utilisée dans les annexes A et B. Le calcul est donc identique.

Compte-tenu du résultat de l'annexe B, on cherche à calculer

$$H(\vec{k}) = i \frac{4\pi}{\lambda} A_0^2 R_0^4 \int_0^{\pi/2} \sin\theta \cos\theta d\theta \quad (\text{D.43})$$

$$\int_0^\pi d\varphi e^{-\frac{R_0^2}{2} \frac{4\pi^2}{\xi^* \lambda^2} \sin^2\theta} e^{-\frac{R_0^2}{2\xi} \left( \frac{4\pi^2}{\lambda^2} \sin^2\theta - \frac{4\pi}{\lambda} k \sin\theta \cos(\varphi - \alpha) + k^2 \right)} \quad (\text{D.44})$$

L'intégrale s'écrit :

$$H(\vec{k}) = i \frac{4\pi}{\lambda} A_0^2 R_0^4 \int_0^{\pi/2} e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2 \sin^2\theta} \sin\theta \cos\theta d\theta \int_0^\pi d\varphi e^{\frac{R_0^2}{2\xi} \left( \frac{4\pi}{\lambda} k \sin\theta \cos(\varphi - \alpha) - k^2 \right)} \quad (\text{D.45})$$

On pose

$$\omega = \frac{2\pi R_0}{\lambda} \quad (\text{D.46})$$

$$\kappa = k \frac{R_0}{\xi} \quad (\text{D.47})$$

Attention,  $\kappa$  est un nombre complexe de partie réelle positive.

$$H(\vec{k}) = i \frac{\lambda}{\pi} A_0^2 R_0^2 e^{-\kappa^2 \xi/2} \int_0^\omega e^{-u^2} u du \int_0^\pi d\varphi e^{\kappa u \cos(\varphi - \alpha)} \quad (\text{D.48})$$

$$H(\vec{k}) \simeq i \frac{\lambda}{\pi} A_0^2 R_0^2 e^{-\kappa^2 \xi/2} \int_0^\infty e^{-u^2} u du \int_0^\pi d\varphi e^{\kappa u \cos(\varphi - \alpha)} \quad (\text{D.49})$$

La dernière relation est valable pour  $\omega \gg 1$ . La double intégrale s'interprète comme une somme sur le demi-plan supérieur. Avec (3.323.2) et (3.322.2) d'après [70], on obtient :

$$H(\vec{k}) = i \frac{\lambda}{\pi} A_0^2 R_0^2 e^{-\kappa^2 \xi/2} \int_{-\infty}^\infty du_x \int_0^\infty du_y e^{-u_x^2 - u_y^2 + u_x \kappa \cos\alpha + u_y \kappa \sin\alpha} \quad (\text{D.50})$$

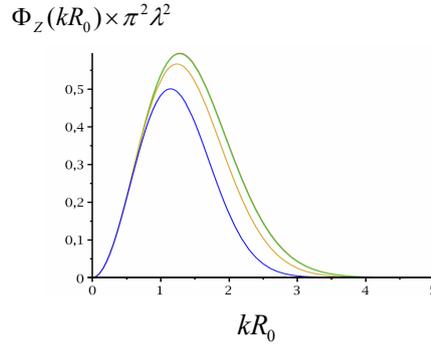
$$= i \frac{\lambda}{\pi} A_0^2 R_0^2 e^{-\kappa^2 \xi/2} \sqrt{\pi} e^{\frac{\kappa^2}{4} \cos^2\alpha} \frac{\sqrt{\pi}}{2} e^{\frac{\kappa^2}{4} \sin^2\alpha} \operatorname{erfc}\left(-\frac{\kappa}{2} \sin\alpha\right) \quad (\text{D.51})$$

$$= i \frac{\lambda}{2} A_0^2 R_0^2 e^{-\frac{\kappa^2}{2}(\xi - \frac{1}{2})} \left[ 1 + \operatorname{erf}\left(\frac{\kappa}{2} \sin\alpha\right) \right] \quad (\text{D.52})$$

Dans le cas où  $\kappa$  est réel et  $\xi = 1$ , on retrouve bien le résultat de l'annexe B (B.18) :

$$H(\vec{k}) + H^*(-\vec{k}) = i\lambda A_0^2 R_0^2 e^{-\kappa^2/4} \operatorname{erf}\left(\frac{\kappa}{2} \sin \alpha\right) \quad (\text{D.53})$$

Ainsi, la fonction de pondération s'exprime en fonction du rapport  $z/z_R$ . Sur la figure 65, on affiche les fonctions de pondérations calculées pour les rapports  $z/z_R = 0, 0.1, 0.5$  et 1.



**Figure 65** – Fonctions de pondération  $\Phi_Z$  normalisées par  $1/\pi^2 \lambda^2$  en fonction du produit  $kR_0$  calculées pour les rapports  $Z/z_R = 0, 0.1, 0.2, 0.5$  et 1.

## Transformée de Fourier de $A(r, Z)$ et intensité totale

Pour la fonction

$$A(r, Z) = A_0 \frac{z_R}{z_R + iZ} e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \frac{z_R}{z_R + iZ}} \quad (\text{D.54})$$

$$= A_0 \xi e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \xi} \quad (\text{D.55})$$

on a la transformée de Fourier

$$A(\vec{q}, Z) = A_0 \xi \int e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \xi + i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (\text{D.56})$$

$$= A_0 \xi \int_0^\infty e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \xi} r dr \int_0^{2\pi} d\psi e^{iqr \cos \psi} \quad (\text{D.57})$$

$$= 2\pi A_0 \xi \int_0^\infty e^{-\frac{r^2}{2R_0^2} \xi} J_0(qr) r dr \quad (\text{D.58})$$

$$= 2\pi A_0 R_0^2 e^{-q^2 \frac{R_0^2}{2\xi}} \quad (\text{D.59})$$

$$= 2\pi A_0 w_0^2 e^{-q^2 \frac{R_0^2}{2} \left(1 + i \frac{Z}{z_R}\right)} \quad (\text{D.60})$$

L'intensité totale sur les deux quadrants s'écrit

$$I_0 = \int d\vec{q} \iint d\vec{r} d\vec{r}' A(\vec{r}', Z) A^*(\vec{r}', Z) e^{i\vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \quad (\text{D.61})$$

$$= 4\pi^2 A_0^2 R_0^4 \int d\vec{q} e^{-q^2 \frac{R_0^2}{2} \left( \frac{1}{\xi} + \frac{1}{\xi^*} \right)} \quad (\text{D.62})$$

$$= 4\pi^2 A_0^2 R_0^4 \int_0^{\pi/2} \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2 \sin^2 \theta} \quad (\text{D.63})$$

$$= 8\pi^3 A_0^2 R_0^4 e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2} \int_0^{\pi/2} \sin \theta d\theta e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2 \cos^2 \theta} \quad (\text{D.64})$$

$$= 8\pi^3 A_0^2 R_0^4 e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2} \int_0^1 du e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2 u^2} \quad (\text{D.65})$$

$$= 4\pi^2 \lambda A_0^2 R_0^3 e^{-\frac{4\pi^2}{\lambda^2} R_0^2} \int_0^{2\pi \frac{R_0}{\lambda}} dx e^{-x^2} \quad (\text{D.66})$$

$$\simeq \pi \lambda^2 A_0^2 R_0^2 \quad (\text{D.67})$$

on a considéré  $\frac{2\pi R_0}{\lambda} \gg 1$ . L'intensité totale est bien indépendante de Z.

## E Calcul du diagramme

Cette annexe consiste à déterminer les développements asymptotiques du spectre  $S(\omega)$  pour connaître la sensibilité du signal mesuré aux différents paramètres du problème dans le cas général d'un milieu viscoélastique.

On se donne

$$S(\omega) = -\frac{8Bk_B T}{\omega\lambda^2} \int_0^\infty k^2 \Im \left( \frac{1}{Z(\omega, k)} \right) e^{-k^2/c} dk \quad (\text{E.1})$$

pour une description  $G = G' + iG'' = |G| \exp(i\delta) = i\omega\eta$  avec  $\eta'' < 0$  et une propagation en  $\exp -i\omega t$ . On a noté

$$Z(\omega, k) = \sigma k + \frac{G^2 k^2}{\omega^2 \rho R} \left[ 4\sqrt{1 - \frac{\omega^2 \rho R^2}{k^2 G}} - \left( 2 - \frac{\omega^2 \rho R^2}{k^2 G} \right)^2 \right] \quad (\text{E.2})$$

Pour étudier le comportement en fréquence du spectre, il est commode de poser

$$\omega^* = c^{3/4} \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R^3}} \quad (\text{E.3})$$

$$|G|^* = c^{1/2} \frac{\sigma}{R} \quad (\text{E.4})$$

$$\omega = \omega^* \Omega \quad (\text{E.5})$$

$$|G| = |G|^* \Gamma \quad (\text{E.6})$$

On doit alors calculer :

$$S(\omega) = -\frac{8Bck_B T}{\lambda^2} \frac{1}{\omega\sigma} \Im \int_0^\infty \frac{e^{-1/t^2} dt}{t^3 D(t)} \quad (\text{E.7})$$

où l'on a noté :

$$D(t) = 1 + \frac{\Gamma^2}{\Omega^2} \frac{e^{2i\delta}}{t} \left[ 4\sqrt{1 - \frac{\Omega^2 e^{-i\delta}}{\Gamma} t^2} - \left( 2 - \frac{\Omega^2 e^{-i\delta}}{\Gamma} t^2 \right)^2 \right] \quad (\text{E.8})$$

Le terme  $t^{-3} e^{-1/t^2}$  est exponentiellement petit autour de  $t = 0$ . Il présente aussi une décroissance en  $t^{-3}$  pour les grandes valeurs de  $t$ . En pratique, il est piqué vers  $t = 1$  ce qui permet d'étudier le comportement de  $D$  en fonction des paramètres  $\Omega$  et  $\Gamma$  pour des valeurs finies de  $t$ . Cette remarque n'est pas très rigoureuse, mais elle simplifie fort le calcul ! On notera

$$J = \int_0^\infty \frac{e^{-1/t^2} dt}{t^3 D(t)} \quad (\text{E.9})$$

Pour  $t$  fini, les comportements asymptotiques de  $D$  sur  $\Omega$  sont :

$$D(t) \simeq -\Omega^2 t^3 + 4\Gamma e^{i\delta} t \text{ pour } \Omega \rightarrow \infty \quad (\text{E.10})$$

$$\simeq 1 + 2\Gamma e^{i\delta} t - \frac{3}{2}\Omega^2 t^3 \text{ pour } \Omega \rightarrow 0 \quad (\text{E.11})$$

On peut maintenant étudier plusieurs situations suivant l'importance relative des termes conservés dans les développements pour  $t \simeq 1$  :

$\Omega \gg 1 - \Gamma \gg \Omega^2$  On peut approximer :

$$D(t) \simeq 4\Gamma e^{i\delta} t \quad (\text{E.12})$$

et donc

$$J = \frac{e^{-i\delta}}{4\Gamma} \int_0^\infty \frac{e^{-1/t^2} dt}{t^4} \quad (\text{E.13})$$

$$= \frac{\sqrt{\pi} e^{-i\delta}}{16\Gamma} \quad (\text{E.14})$$

Terme en  $\omega^{-1}$ , région S2.

$-\Gamma \ll \Omega^2$  On ne peut pas garder le seul terme  $-\Omega^2 t^3$  qui est réel. On peut approximer :

$$\frac{1}{D(t)} \simeq \frac{-1}{\Omega^2 t^3} \left( 1 + \frac{4\Gamma e^{i\delta}}{\Omega^2 t^2} \right) \quad (\text{E.15})$$

En éliminant le terme réel, on déduit

$$\Im \frac{1}{D(t)} \simeq -\frac{4G''}{\Omega^4 t^5} \quad (\text{E.16})$$

Finalement,

$$\Im J \simeq -\frac{15G''}{4\Omega^4 t^5} \quad (\text{E.17})$$

Terme en  $\omega^{-5}$ , région M

$$J = \int_0^\infty \frac{e^{-1/t^2} dt}{t^4 (-\Omega^2 t^2 + 4\Gamma e^{i\delta})} \quad (\text{E.18})$$

$\Omega \ll 1 - \Gamma \gg \Omega^2$

$-\Gamma \ll \Omega^2$

$$k = \omega x \sqrt{\frac{\rho R^2}{|G|}} \quad (\text{E.19})$$

$$\gamma = \omega \frac{\sigma \sqrt{\rho}}{|G|^{3/2}} \quad (\text{E.20})$$

$$\varepsilon = \omega \sqrt{\frac{\rho R^2}{c|G|}} \quad (\text{E.21})$$

alors

$$Z(\omega, k) = \sigma \omega x \sqrt{\frac{\rho R^2}{|G|}} + x^2 |G| R e^{2i\delta} \left[ 4 \sqrt{1 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2}} - \left( 2 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2} \right)^2 \right] \quad (\text{E.22})$$

$$= x |G| R \left\{ \gamma + x e^{2i\delta} \left[ 4 \sqrt{1 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2}} - \left( 2 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2} \right)^2 \right] \right\} \quad (\text{E.23})$$

$$S(\omega) = -\frac{8Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\omega^2 R^2}{|G|^{5/2} \rho^{3/2}} \Im \int_0^\infty \frac{x e^{-\varepsilon^2 x^2}}{\gamma + x e^{2i\delta} \left[ 4 \sqrt{1 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2}} - \left( 2 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2} \right)^2 \right]} dx \quad (\text{E.24})$$

$$= -\frac{8Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\omega \rho R^2}{\sigma |G|} \Im \int_0^\infty \frac{x e^{-\varepsilon^2 x^2}}{1 + \frac{1}{\gamma} \psi(x)} dx \quad (\text{E.25})$$

$$= -\frac{8Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\omega \rho R^2}{\sigma |G|} \Im J \quad (\text{E.26})$$

avec

$$\psi(x) = x e^{2i\delta} \left[ 4 \sqrt{1 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2}} - \left( 2 - \frac{e^{-i\delta}}{x^2} \right)^2 \right] \quad (\text{E.27})$$

$$J = \int_0^\infty \frac{x e^{-\varepsilon^2 x^2}}{1 + \frac{1}{\gamma} \psi(x)} dx \quad (\text{E.28})$$

Dans le plan  $(\omega, |G|)$ , on définit les frontières correspondant à  $\varepsilon = 1$  et  $\gamma = 1$ .

$$\varepsilon = 1 : |G| = \omega^2 \frac{\rho R^2}{c} \quad (\text{E.29})$$

$$\gamma = 1 : |G| = \omega^{2/3} \sigma^{2/3} \rho^{1/3} \quad (\text{E.30})$$

Elles se coupent en  $(\omega^*, |G|^*)$

$$\omega^* = c^{3/4} \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R^3}} \quad (\text{E.31})$$

$$|G|^* = c^{1/2} \frac{\sigma}{R} \quad (\text{E.32})$$

et donc

$$\gamma = \frac{\Omega}{\Gamma^{3/2}} \quad (\text{E.33})$$

$$\varepsilon = \frac{\Omega}{\Gamma^{1/2}} \quad (\text{E.34})$$

$$\Omega = \frac{\omega}{\omega^*} ; \Gamma = \frac{|G|}{|G|^*} \quad (\text{E.35})$$

Pour  $G$  et  $\omega$  donnés, le spectre est défini avec les variables  $\varepsilon$  et  $\gamma$  réelles par l'intégrale  $J$  (la dépendance en l'angle de phase  $\delta$  est cachée dans cette représentation). La difficulté provient des deux paramètres dans l'intégrale qui peuvent être très grands ou très petits. Il est nécessaire de trouver des développements asymptotiques de l'intégrale *uniformes sur les deux paramètres*. Dans cet esprit, on va chercher à transformer l'intégrale en faisant explicitement apparaître les paramètres sous forme de deux échelles que l'on pourra aisément comparer. Pour cette raison et pour simplifier (peut-être) le traitement, on pose  $x = u^{1/3}\gamma^{-1/3}$  dans l'intégrale  $J$  :

$$J = \frac{1}{3}\gamma^{-2/3} \int_0^\infty \frac{u^{-1/3} e^{-\varepsilon^2 \gamma^{-2/3} u^{2/3}}}{1 + \frac{1}{\gamma} \psi(u^{1/3} \gamma^{-1/3})} du \quad (\text{E.36})$$

$$= \frac{1}{3}\gamma^{-2/3} \int_0^\infty \frac{u^{2/3} e^{-(\frac{u}{\nu})^{2/3}}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} du \quad (\text{E.37})$$

$u = 0$  est un point de branchement, on choisit une coupure selon le demi-axe réel négatif. On a noté :

$$\nu = \varepsilon^{-3}\gamma = \left(\frac{\omega^*}{\omega}\right)^2 = \Omega^{-2} \quad (\text{E.38})$$

$$H\left(\frac{u}{\gamma}\right) = \frac{u}{\gamma} \psi\left(\frac{u^{1/3}}{\gamma^{1/3}}\right) \quad (\text{E.39})$$

Il faut obtenir des expressions de  $J$  dans le plan  $(\gamma, \nu)$ . Comme  $\gamma = \Omega\Gamma^{-3/2}$ , les frontières des domaines dans le plan  $(\Omega, \Gamma)$  seront  $\Gamma = \Omega^2$ ,  $\Gamma = \Omega^{2/3}$ ,  $\Gamma = 1$  et  $\Omega = 1$ .

$\nu$  fixe la limite pratique pour l'intégration à cause du terme gaussien. Par exemple, dans la région  $\nu < \gamma$  seules les valeurs de  $u \ll \gamma$  contribueront.

A) Région  $\frac{u}{\gamma} \ll 1$  :

$$u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right) = -1 + u + 4e^{i\delta} \left(\frac{u}{\gamma}\right)^{2/3} + O\left(\frac{u}{\gamma}\right) \quad (\text{E.40})$$

On peut montrer par itérations qu'il existe un pôle simple si  $\gamma \gg 1$

$$u_0 \sim 1 - 4e^{i\delta}\gamma^{-2/3} \quad (\text{E.41})$$

et le résidu de  $u^{2/3} \left(u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)\right)^{-1}$  est

$$A_{-1} \sim u_0^{2/3} \sim 1 \quad (\text{E.42})$$

Comme  $u_0 \sim 1$ , sa contribution sera importante pour  $\nu > 1$ . Pour  $\nu < 1$  le terme gaussien rendra exponentiellement petite sa contribution.

Si  $\gamma \ll 1$ , il n'y a pas de pôle dans la région d'intérêt.

En résumé, il y aura une contribution du pôle si  $\nu > 1$  et  $\gamma > 1$  (Régions P et Q).

B) Région  $\frac{u}{\gamma} \ll 1$  :

$$u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right) = u + 2e^{i\delta}\gamma^{-2/3}u^{2/3} \quad (\text{E.43})$$

On n'a pas de pôle dans cette région :  $\gamma \ll 1$  donnerait  $u$  très loin de l'axe et  $\gamma \gg 1$  contredirait l'hypothèse  $\frac{u}{\gamma} \ll 1$ .

**Région M** :  $\nu < \gamma$  et  $\nu < 1$  soit ( $\Gamma < \Omega^2$  et  $\Omega > 1$ ). Pas de contribution du pôle (exp. petite). Watson ou Laplace : comportement à l'origine OK.

$$\frac{u^{2/3}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} = -u^{2/3} - 4e^{i\delta}\gamma^{-2/3}u^{4/3} + \dots \quad (\text{E.44})$$

qui peut s'intégrer terme à terme. En retirant le premier terme purement réel, on obtient

$$J' = -\frac{15\sqrt{\pi}}{4}e^{i\delta}\gamma^{-4/3}\nu^{7/3} \quad (\text{E.45})$$

$$= -\frac{15\sqrt{\pi}}{4}e^{i\delta}\gamma\epsilon^{-7} \quad (\text{E.46})$$

Soit

$$S_M(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T}{\lambda^2} \frac{15c^{7/2}G''}{4\rho^2 R^5} \omega^{-5}$$

**Région P** :  $\nu < \gamma$  et  $\nu > 1$  soit ( $\Gamma < \Omega^2$  et  $\Omega < 1$ ). Contribution du pôle, approximation  $\frac{u}{\gamma} \ll 1$  partout. On peut exprimer la fonction à intégrer sous la forme

$$\frac{u^{2/3}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} = \frac{u^{2/3}}{u - u_0 + 4e^{i\delta}\gamma^{-2/3}(1 + u^{2/3})} \quad (\text{E.47})$$

Comme  $\gamma \gg 1$  et  $u < \gamma$ , on a l'approximation

$$\frac{u^{2/3}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} \sim \frac{u^{2/3}}{u - u_0} \quad (\text{E.48})$$

Le pôle est situé juste au-dessous du demi-axe réel positif. Il tend vers la valeur  $u_0 = 1$  quand  $\gamma \rightarrow \infty$ . L'intégrale doit donc être comprise en valeur principale, avec la contribution du pôle, tout comme la distribution  $\frac{1}{x+i0^+} = vp\left(\frac{1}{x}\right) - i\pi\delta$ . Ici,  $u_0 = a - ib$ , avec  $a$  et  $b$  positifs. Comme la fonction est (au premier ordre) réelle, on ne s'intéresse qu'à la contribution de Dirac  $-i\pi A_{-1}$ . On obtient

$$J' = -\frac{\pi}{3}\gamma^{-2/3} \quad (\text{E.49})$$

Soit

$$S_P(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\sqrt{\pi}}{3} \frac{\rho^{2/3}R^2}{\sigma^{5/3}} \omega^{1/3}$$

Le terme en  $\omega^{1/3}$  est un terme capillaire original !

**Région Q** :  $\gamma < \nu$  et  $\gamma > 1$  soit ( $\Gamma > \Omega^2$  et  $\Gamma < \Omega^{2/3}$ ). Contribution pôle, puis approximation  $\frac{u}{\gamma} < 1$  puis  $\frac{u}{\gamma} > 1$ . La partie de l'intégrale avec  $u < \gamma$  est identique à la précédente, on doit lui adjoindre

$$J' = \frac{1}{3}\gamma^{-2/3} \int_{\gamma}^{\infty} \frac{u^{2/3}e^{-\left(\frac{u}{\nu}\right)^{2/3}}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} du \quad (\text{E.50})$$

Dans cette région  $u \gg \gamma$

$$H\left(\frac{u}{\gamma}\right) \sim 2e^{i\delta}\gamma^{-2/3}u^{2/3} + \dots \quad (\text{E.51})$$

et donc pour  $\gamma \rightarrow \infty$

$$\frac{u^{2/3}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} \sim u^{-1/3} - 2e^{i\delta}\gamma^{-2/3}u^{-2/3} \quad (\text{E.52})$$

En ne conservant que le premier terme non-réel, il vient en considérant  $\nu \rightarrow \infty$

$$J' \sim -\sqrt{\pi}e^{i\delta}\gamma^{-4/3}\nu^{1/3} \quad (\text{E.53})$$

$$\sim -\sqrt{\pi}e^{i\delta}\gamma^{-1}\varepsilon^{-1} \quad (\text{E.54})$$

Au total

$$J = -\frac{\pi}{3}\gamma^{-2/3} - \sqrt{\pi}e^{i\delta}\gamma^{-1}\varepsilon^{-1} \quad (\text{E.55})$$

Le premier terme est prépondérant lorsque  $\Gamma < \Omega^{4/3}$ . La ligne  $\Gamma = \Omega^{4/3}$  sépare donc

deux sous-domaines la région Q1 ( $\Gamma > \Omega^2$  et  $\Gamma < \Omega^{4/3}$ )

$$S_{Q1}(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\sqrt{\pi} \rho^{2/3} R^2}{3 \sigma^{5/3}} \omega^{1/3} \quad (\text{E.56})$$

et la région Q2 ( $\Gamma > \Omega^{4/3}$  et  $\Gamma < \Omega^{2/3}$ )

$$S_{Q2}(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\sqrt{c}G''R}{\sigma^2} \omega^{-1}$$

Le terme en  $\omega^{1/3}$  est un terme capillaire original !

**Région R** :  $\gamma < \nu$  et  $\gamma < 1$  soit ( $\Gamma > \Omega^2$  et  $\Gamma > \Omega^{2/3}$ ). Approximations  $\frac{u}{\gamma} < 1$  puis  $\frac{u}{\gamma} > 1$ . Il n'y a pas de pôle sur le chemin. On sépare l'intégrale en deux.

La contribution  $u < \gamma < 1$  peut être estimée

$$\text{Im} \frac{u^{2/3}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} = \text{Im} \frac{u^{2/3}}{(-1+u) \left[1 + 4e^{i\delta} u^{2/3} \gamma^{-2/3} (-1+u)^{-1}\right]} \quad (\text{E.57})$$

$$\sim -\text{Im} \frac{4e^{i\delta} u^{4/3} \gamma^{-2/3}}{(-1+u)^2} \quad (\text{E.58})$$

$$\sim -\text{Im} 4e^{i\delta} u^{4/3} \gamma^{-2/3} \quad (\text{E.59})$$

car  $u < 1$ . La contribution correspondante est donc

$$\begin{aligned} J_1 &= -\frac{4}{3} e^{i\delta} \gamma^{-4/3} \int_0^\gamma u^{4/3} e^{-(\frac{u}{\nu})^{2/3}} du \\ &= -\frac{4}{3} e^{i\delta} \gamma \int_0^1 s^{4/3} e^{-(\gamma \frac{s}{\nu})^{2/3}} ds \end{aligned}$$

Avec  $\gamma < \nu$

$$J_1 \sim -\frac{4}{7} e^{i\delta} \gamma$$

Pour  $u > \gamma$ , on approxime comme plus haut

$$H\left(\frac{u}{\gamma}\right) \sim 2e^{i\delta} \gamma^{-2/3} u^{2/3} + \dots \quad (\text{E.60})$$

et donc pour  $\gamma \rightarrow 0$

$$\frac{u^{2/3}}{u + H\left(\frac{u}{\gamma}\right)} \sim \frac{u^{2/3}}{u + 2e^{i\delta} \gamma^{-2/3} u^{2/3}} \quad (\text{E.61})$$

Il nous faut estimer

$$\begin{aligned}
 J_2 &= \frac{1}{3} \gamma^{-2/3} \int_{\gamma}^{\infty} \frac{u^{2/3} e^{-(\frac{u}{\nu})^{2/3}}}{u + 2e^{i\delta} \gamma^{-2/3} u^{2/3}} du \\
 &= \frac{1}{3} \gamma^{-2/3} \int_{\gamma}^{\infty} \frac{u^{-1/3} e^{-(\frac{u}{\nu})^{2/3}}}{1 + 2e^{i\delta} \gamma^{-2/3} u^{-1/3}} du \\
 &= \frac{1}{3} \gamma^{-2/3} \nu^{2/3} \int_{\frac{\gamma}{\nu}}^{\infty} \frac{s^{-1/3} e^{-s^{2/3}}}{1 + 2e^{i\delta} \gamma^{-2/3} \nu^{-1/3} s^{-1/3}} ds
 \end{aligned}$$

$\frac{\gamma}{\nu}$  est très inférieur à 1. Il nous faut distinguer deux cas :

Région R1 :  $\gamma^{-2/3} \nu^{-1/3} < 1$ , c'est à dire  $\Gamma < 1$ , soit au total ( $\Gamma > \Omega^{2/3}$  et  $\Gamma < 1$ ). On a alors

$$\begin{aligned}
 J_2^1 &= \frac{1}{3} \gamma^{-2/3} \nu^{2/3} \int_{\frac{\gamma}{\nu}}^{\infty} s^{-1/3} e^{-s^{2/3}} \left(1 - 2e^{i\delta} \gamma^{-2/3} \nu^{-1/3} s^{-1/3}\right) ds \\
 J_2'^1 &= -\frac{2}{3} e^{i\delta} \gamma^{-4/3} \nu^{1/3} \int_{\frac{\gamma}{\nu}}^{\infty} s^{-2/3} e^{-s^{2/3}} ds
 \end{aligned}$$

On n'a conservé que le terme non-réel. On peut faire tendre la borne inférieure vers zéro et on obtient :

$$J_2'^1 = -\sqrt{\pi} e^{i\delta} \gamma^{-4/3} \nu^{1/3}$$

Au total :

$$J^1 = -\sqrt{\pi} e^{i\delta} \gamma^{-4/3} \nu^{1/3} - \frac{4}{7} e^{i\delta} \gamma$$

Quelles régions pour chaque contribution ? On a les scalings

$$\begin{aligned}
 J_1 &\sim \Omega \Gamma^{-3/2} \\
 J_2'^1 &\sim \Omega^{-2} \Gamma^2
 \end{aligned}$$

Donc

$$\frac{J_1}{J_2'^1} \sim \Omega^3 \Gamma^{-7/2}$$

or dans la région

$$\Omega < \Gamma^{3/2}$$

et donc

$$\frac{J_1}{J_2'^1} < \Gamma \ll 1$$

Il vient

$$\begin{aligned}
 J^1 &= -\sqrt{\pi} e^{i\delta} \gamma^{-4/3} \nu^{1/3} \\
 &= -\sqrt{\pi} e^{i\delta} \gamma^{-1} \varepsilon^{-1}
 \end{aligned}$$

et donc

$$S_{R_1}(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T}{\lambda^2} \frac{\sqrt{cG''}R}{\sigma^2} \omega^{-1}$$

Région R2 :  $\gamma^{-2/3}\nu^{-1/3} > 1$ , c'est à dire  $\Gamma > 1$ , soit au total ( $\Gamma > \Omega^2$  et  $\Gamma > 1$ ). On a alors

$$J_2^2 = \frac{1}{6} e^{-i\delta} \nu \int_{\frac{\gamma}{\nu}}^{\infty} e^{-s^{2/3}} ds$$

On peut faire tendre la borne inférieure vers zéro et on obtient :

$$J_2^2 = \frac{\sqrt{\pi}}{8} e^{-i\delta} \nu \quad (\text{E.62})$$

Au total :

$$J^2 = \frac{\sqrt{\pi}}{8} e^{-i\delta} \nu - \frac{4}{7} e^{i\delta} \gamma$$

Comme  $\gamma < \nu$ , le terme principal est le premier, et donc

$$S_{R_2}(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T c^{3/2}}{\lambda^2} \frac{G''}{|G|^2 R} \omega^{-1}$$

## Bilan

On a toujours un spectre de la forme

$$S_X(\omega) = \frac{8\sqrt{\pi}Bk_B T}{\lambda^2} A_X \quad (\text{E.63})$$

$X$	$A_X$
$M$	$\frac{15c^{7/2}G''}{4\rho^2 R^5} \omega^{-5}$
$P$	$\frac{\sqrt{\pi}}{3} \frac{\rho^{2/3} R^2}{\sigma^{5/3}} \omega^{1/3}$
$Q_1$	$\frac{\sqrt{\pi}}{3} \frac{\rho^{2/3} R^2}{\sigma^{5/3}} \omega^{1/3}$
$Q_2$	$\frac{\sqrt{cG''}R}{\sigma^2} \omega^{-1}$
$R_1$	$\frac{\sqrt{cG''}R}{\sigma^2} \omega^{-1}$
$R_2$	$c^{3/2} \frac{G''}{ G ^2 R} \omega^{-1}$

On peut faire disparaître les frontières entre P et Q1 ainsi qu'entre Q2 et R1. On a donc les domaines M, S, T et U définis sur la figure avec les résultats suivants

$X$	$A_X$
$M$	$\frac{15c^{7/2}G''}{4\rho^2 R^5} \omega^{-5}$
$S$	$\frac{c^{3/2}}{8} \frac{G''}{ G ^2 R} \omega^{-1}$
$T$	$\frac{\sqrt{cG''}R}{\sigma^2} \omega^{-1}$
$U$	$\frac{\sqrt{\pi}}{3} \frac{\rho^{2/3} R^2}{\sigma^{5/3}} \omega^{1/3}$

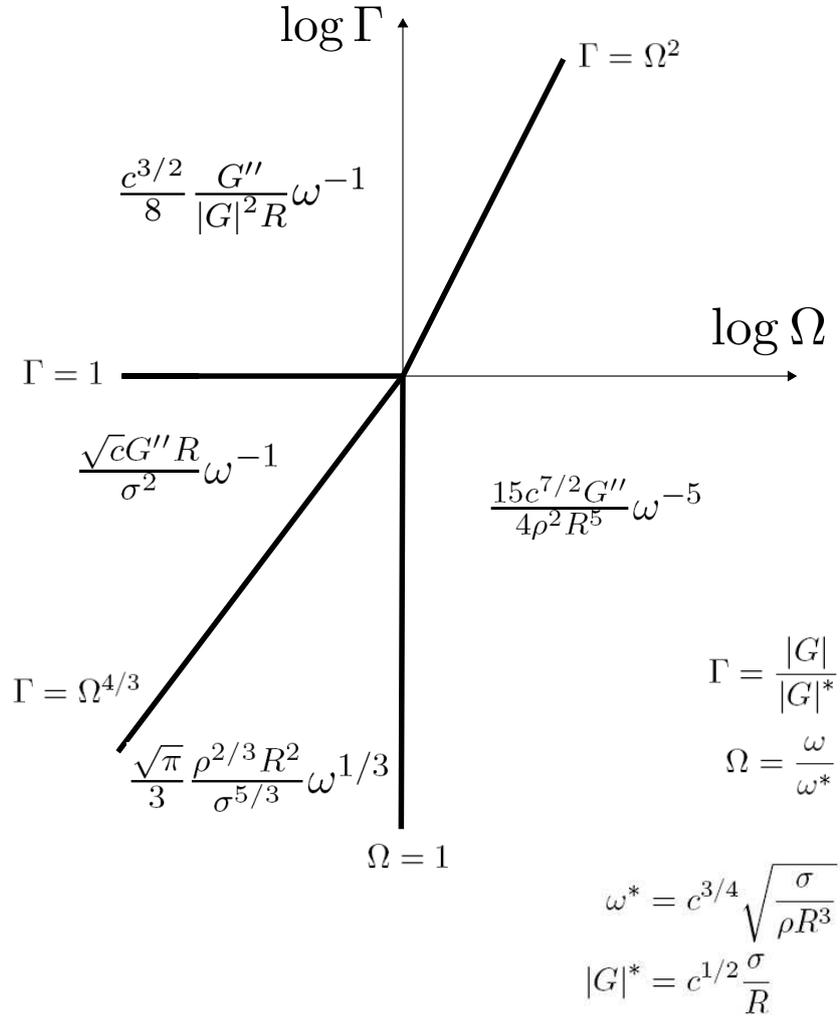


Figure 66 – Régions dans le plan  $(\Gamma, \Omega)$ .

## F Prise en compte de la viscoélasticité de surface

D'après Langevin et Bouchiat [71] et Buzza [72], pour un milieu de module viscoélastique  $G^*(\omega)$  et de module de dilatation de surface  $\epsilon^*(\omega)$ , la susceptibilité  $\chi$  comme fonction du vecteur d'onde  $k$  et de la fréquence  $\omega$  est telle que :

$$\frac{1}{\chi(k, \omega)} = \gamma k^2 - G^*(\omega) \left[ \frac{(k+m)^2}{k+m + \epsilon^*(\omega) \frac{k^2}{G^*(\omega)}} - \frac{m(k+m)}{k} \right] \quad (\text{F.1})$$

Avec

$$m = k \sqrt{1 - \frac{\omega^2 \rho}{k^2 G^*(\omega)}} \quad (\text{F.2})$$

où  $\gamma$  est la tension de surface et  $\rho$  la masse volumique.

Les effets de viscoélasticité de surface attendus sur la susceptibilité peuvent être déduits des arguments qualitatifs suivants :

- D’après (F.2),  $m \approx k$  pour des fréquences inférieures à  $(|G^*|/\rho R^2)^{1/2}$ , ainsi le terme contenant la viscoélasticité de surface dans (F.1) (premier terme entre les crochets) est négligeable par rapport à l’autre terme entre crochets. Par conséquent, quelle que soit la valeur du module de dilatation de surface  $\epsilon^*$ , tant que  $\omega < (|G^*|/\rho R^2)^{1/2}$ , on ne s’attend pas à ce que les effets de viscoélasticité de surface modifient le spectre de fluctuations.
- Pour des fréquence supérieures à  $(|G^*|/\rho R^2)^{1/2}$ ,  $m \approx \omega(\rho/G^*)^{1/2}$ . D’après (F.1), les effets de viscoélasticité peuvent influencer seulement si  $\epsilon^*k^2/G^* \approx 1$ , ce qui correspond à un nombre sans dimension  $|\epsilon^*|/\omega R^2(\rho|G^*|)^{1/2}$  proche de 1.

En utilisant les propriétés de la solution de micelles géantes étudiées, on calcule  $(|G^*|/\rho R^2)^{1/2} \approx 4$  kHz, les effets de viscoélasticité de surface sont donc négligeables en dessous de cette fréquence. Pour  $|\epsilon^*| = 100$  mN/m, la fréquence à laquelle le nombre sans dimension  $|\epsilon^*|/\omega R^2(\rho|G^*|)^{1/2} = 1$  est environ 20 kHz. Cette valeur est proche de la fréquence maximale à laquelle le spectre des fluctuations est mesuré, par conséquent, l’influence des effets de viscoélasticité de surface sur le spectre est négligeable.

## G Calcul des intensités réfléchies avec interférences

On souhaite calculer les intensités  $I_A - I_B$  et  $I_A + I_B$  lorsqu'il existe des interférences entre les faisceaux réfléchis aux interfaces air/film et film/substrat.

D'après (III.40), le champ électrique total réfléchi s'écrit :

$$E_{r\acute{e}fl}(r, t) = \left( r_1 e^{i\phi_0(\vec{r}, t)} + r_2 e^{i\phi_1(\vec{r}, t)} \right) E_{inc}(r) \quad (\text{G.1})$$

Avec

$$E_{inc} = E_0 e^{-\frac{r^2}{2R^2}} \quad (\text{G.2})$$

$$\phi_0(\vec{r}, t) = \frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} + 2\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{G.3})$$

$$\phi_1(\vec{r}, t) = \frac{2\pi}{\lambda} [\vec{q} \cdot \vec{r} - 2nh - 2(n-1)\zeta(\vec{r}, t)] \quad (\text{G.4})$$

L'intensité réfléchie dans la direction  $(\theta, \phi)$  est donnée par le carré du module du champ, soit :

$$I(\theta, \phi) = \iint d\vec{r} d\vec{r}' E_{r\acute{e}fl}(r) E_{r\acute{e}fl}^*(r') \quad (\text{G.5})$$

$$I(\theta, \phi) = E_0^2 \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} \left( r_1 e^{i\phi_0(\vec{r}, t)} + r_2 e^{i\phi_1(\vec{r}, t)} \right) \left( r_1 e^{-i\phi_0(\vec{r}', t)} + r_2 e^{-i\phi_1(\vec{r}', t)} \right) \quad (\text{G.6})$$

On peut effectuer un développement des termes de phases au 1er ordre :

$$\begin{aligned} I(\theta, \phi) = E_0^2 \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \left\{ r_1^2 \left( 1 + 2\frac{2i\pi}{\lambda} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] \right) \right. \\ \left. + r_2^2 \left( 1 - 2(n-1)\frac{2i\pi}{\lambda} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] \right) \right. \\ \left. + r_1 r_2 e^{-i\phi} \left( 1 + 2\frac{2i\pi}{\lambda} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] + 2n\frac{2i\pi}{\lambda} \zeta(\vec{r}, t) \right) \right. \\ \left. + r_1 r_2 e^{i\phi} \left( 1 + 2\frac{2i\pi}{\lambda} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] - 2n\frac{2i\pi}{\lambda} \zeta(\vec{r}, t) \right) \right\} \quad (\text{G.7}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} I(\theta, \phi) = E_0^2 \iint d\vec{r} d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} \left\{ r_1^2 + r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos \phi \right. \\ \left. + 2\frac{2i\pi}{\lambda} \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + 2r_1 r_2 \cos \phi \right) [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] \right. \\ \left. + 2\frac{2i\pi}{\lambda} n r_1 r_2 \left[ e^{-i\phi} \zeta(\vec{r}', t) - e^{i\phi} \zeta(\vec{r}, t) \right] \right\} \quad (\text{G.8}) \end{aligned}$$

où on pose :  $\phi = \frac{2\pi}{\lambda} 2nh$

Afin d'écrire  $I(\theta, \phi)$  comme une grandeur sensible aux fluctuations d'angle, en  $\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)$ , et sensible aux fluctuations de hauteur, en  $\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)$ , on utilise la relation :

$$e^{-i\phi}\zeta(\vec{r}', t) - e^{i\phi}\zeta(\vec{r}, t) = -\cos\phi [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] - i\sin\phi [\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)] \quad (\text{G.9})$$

$I(\theta, \phi)$  devient :

$$I(\theta, \phi) = E_0^2 \iint d\vec{r}d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda}\vec{q}\cdot(\vec{r}-\vec{r}')} \left\{ r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos\phi \right. \\ \left. + 2i\frac{2\pi}{\lambda} \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1r_2 \cos\phi \right) [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] \right. \\ \left. - 2\frac{2\pi}{\lambda} nr_1r_2 \sin\phi [\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)] \right\} \quad (\text{G.10})$$

On calcule  $I_A - I_B$  et  $I_A + I_B$  en intégrant  $I(\theta, \phi)$  sur le domaine correspondant :

$$I_A - I_B = \int_0^{\pi/2} \cos\theta \sin\theta d\theta \int_0^\pi d\varphi I(\theta, \phi) - \int_0^{\pi/2} \cos\theta \sin\theta d\theta \int_\pi^{2\pi} d\varphi I(\theta, \phi) \quad (\text{G.11})$$

$$I_A + I_B = \int_0^{\pi/2} \cos\theta \sin\theta d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi I(\theta, \phi) \quad (\text{G.12})$$

On obtient<sup>11</sup> :

$$I_A + I_B = \left( r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos\phi \right) I_0 + (nr_1r_2 \sin\phi) g(t) \quad (\text{G.13})$$

$$I_A - I_B = \left( r_1^2 - (n-1)r_2^2 + (2-n)r_1r_2 \cos\phi \right) f(t) \quad (\text{G.14})$$

avec

$$I_0 = E_0^2 \int d\vec{q} \iint d\vec{r}d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda}\vec{q}\cdot(\vec{r}-\vec{r}')} = \pi R^2 E_0^2 \lambda^2 \quad (\text{G.15})$$

$$f(t) = 4i\frac{2\pi}{\lambda} E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos\theta \sin\theta d\theta \int_0^\pi d\varphi \iint d\vec{r}d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda}\vec{q}\cdot(\vec{r}-\vec{r}')} [\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)] \quad (\text{G.16})$$

$$g(t) = -2\frac{2\pi}{\lambda} E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos\theta \sin\theta d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi \iint d\vec{r}d\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i\frac{2\pi}{\lambda}\vec{q}\cdot(\vec{r}-\vec{r}')} [\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)] \quad (\text{G.17})$$

---

11. Compte tenu des parités des fonctions en  $\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)$  et  $\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)$ , la différence d'intensité  $I_A - I_B$  est uniquement sensible au terme en  $\zeta(\vec{r}, t) - \zeta(\vec{r}', t)$  et la somme  $I_A + I_B$  est uniquement sensible au terme en  $\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)$ .

## H Calcul du spectre $S_{A+B}(\omega)$ .

On souhaite calculer le spectre  $S_{A+B}(\omega)$  défini par :

$$S_{A+B}(\omega) = \left\langle \frac{1}{T} \left| \text{TF} \left( \frac{I_A + I_B}{I_{inc}} \right) \right|^2 \right\rangle \quad (\text{H.1})$$

Avec

$$I_A + I_B = (r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \phi) I_{inc} + (nr_1r_2 \sin \phi) g(t) \quad (\text{H.2})$$

$$g(t) = -2 \frac{2\pi}{\lambda} E_0^2 \int_0^{\pi/2} \cos \theta \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} d\phi \iint \vec{r}\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} [\zeta(\vec{r}, t) + \zeta(\vec{r}', t)] \quad (\text{H.3})$$

$$I_{inc} = E_0^2 \int \vec{q} \iint \vec{r}\vec{r}' e^{-\frac{r^2+r'^2}{2R^2}} e^{i \frac{2\pi}{\lambda} \vec{q} \cdot (\vec{r} - \vec{r}')} = \pi R^2 E_0^2 \lambda^2 \quad (\text{H.4})$$

En annexe B, la fonction de pondération  $\Phi_{angle}$  a été obtenue en calculant :

$$\frac{1}{I_0^2} \int_0^{2\pi} |F(\vec{k})|^2 d\alpha \quad (\text{H.5})$$

Avec

$$I_0 = \pi R^2 E_0^2 \lambda^2 \quad (\text{H.6})$$

$$F(\vec{k}) = F_{angle}(\vec{k}) = H(\vec{k}) + H^*(-\vec{k}) \quad (\text{H.7})$$

$$H(\vec{k}) = \frac{i\lambda}{2} R^2 E_0^2 e^{-\frac{\kappa^2}{4}} \left[ 1 + \text{erf} \left( \frac{\kappa}{2} \sin \alpha \right) \right] \quad (\text{H.8})$$

où  $\kappa = kR$ .

En comparant les expressions de  $f(t)$  et  $g(t)$  qui définissent respectivement  $I_A - I_B$  et  $I_A + I_B$ , le spectre  $S_{A+B}$  se met sous la forme :

$$S_{A+B}(\omega) = (nr_1r_2 \sin \phi)^2 \int_0^\infty P(k, \omega) \Phi_{hauteur}(k) k dk \quad (\text{H.9})$$

où  $\Phi_{hauteur}$  se calcule comme  $\Phi_{angle}$  en remplaçant la fonction  $F_{angle}(\vec{k})$  par :

$$F_{hauteur}(\vec{k}) = H(\vec{k}) - H^*(-\vec{k}) \quad (\text{H.10})$$

D'après l'expression de  $H(\vec{k})$  (H.8),

$$F_{hauteur}(\vec{r}) = \lambda R^2 E_0^2 e^{-\frac{\kappa^2}{4}} \quad (\text{H.11})$$

Après intégration sur  $\alpha$ , on obtient :

$$\Phi_{hauteur}(k) = \frac{2}{\pi \lambda^2} e^{-\frac{k^2 R^2}{2}} \quad (\text{H.12})$$

Pour comparaison, avec  $S_{A-B}(\omega)$ , on a la fonction de pondération :

$$\Phi_{angle}(k) = \frac{2}{\pi^2 \lambda^2} B k^2 R^2 e^{-\frac{k^2 R^2}{c}} \quad (\text{H.13})$$

où  $B = 0.973$  et  $c = 1.658$ .



---

## Références bibliographiques

- [1] Dominique Langevin. *Light scattering by liquid surfaces and complementary techniques*. New York, dekker edition, 1992. [1](#), [10](#)
- [2] Hyunjung Kim, A. Rühm, L. B. Lurio, J. K. Basu, J. Lal, D. Lumma, S. G. J. Mochrie, and S. K. Sinha. Surface dynamics of polymer films. *Physical Review Letters*, 90(6) :068302, February 2003. [1](#), [77](#)
- [3] T. A. Waigh. Microrheology of complex fluids. *Reports on Progress in Physics*, 68(3) :685–742, March 2005. WOS :000228157400004. [1](#), [62](#)
- [4] L. Joly, C. Ybert, and L. Bocquet. Probing the nanohydrodynamics at liquid-solid interfaces using thermal motion. *Physical Review Letters*, 96(4) :046101, February 2006. [1](#), [77](#)
- [5] L. Bellon, L. Buisson, S. Ciliberto, and F. Vittoz. Zero applied stress rheometer. *Review of Scientific Instruments*, 73(9) :3286, September 2002. [2](#)
- [6] Pierdomenico Paolino. *Bruit thermique et dissipation d'un microlevier*. PhD thesis, Ecole normale supérieure de lyon - ENS LYON, November 2008. [2](#)
- [7] F. P. Buff, R. A. Lovett, and F. H. Stillinger. Interfacial density profile for fluids in the critical region. *Physical Review Letters*, 15(15) :621–623, October 1965. [5](#), [6](#)
- [8] J. D. van der Waals. The thermodynamic theory of capillarity under the hypothesis of a continuous variation of density. *Verhandel. Konink Akad. Wete. Amsterdam*, 1894. [6](#)
- [9] Serge Mora. *Structure d'interface de fluides complexes*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, September 2003. [10](#)
- [10] Veniamin Grigoevich Levich. *Physicochemical hydrodynamics : V. G. Levich Festschrift*. Advance Publications, 1977. [11](#)
- [11] M. A. Bouchiat and J. Meunier. Spectre des fluctuations thermiques de la surface libre d'un liquide simple. *Journal de Physique*, 32(7) :561–571, 1971. [11](#), [49](#)

- 
- [12] Mark L. Henle and Alex J. Levine. Capillary wave dynamics on supported viscoelastic films : Single and double layers. *Physical Review E*, 75(2) :021604, February 2007. [14](#), [78](#), [79](#), [92](#), [93](#), [147](#), [168](#), [172](#)
- [13] Alexis Casner. Déformations, manipulations et instabilités d’interfaces liquides induites par la pression de radiation d’une onde laser, 2002. [20](#), [120](#)
- [14] A. Tay, C. Thibierge, D. Fournier, C. Fretigny, F. Lequeux, C. Monteux, J. P. Roger, and L. Talini. Probing thermal waves on the free surface of various media : Surface fluctuation specular reflection spectroscopy. *Review of Scientific Instruments*, 79(10) :103107–103107–7, October 2008. [21](#)
- [15] Takahisa Mitsui and Kenichiro Aoki. Direct optical observations of surface thermal motions at sub-shot noise levels. *Physical Review E*, 80(2) :020602, August 2009. [26](#)
- [16] Takahisa Mitsui and Kenichiro Aoki. Measurements of liquid surface fluctuations at sub-shot-noise levels with michelson interferometry. *Physical Review E*, 87(4) :042403, April 2013. [26](#)
- [17] H. KOGELNIK and T. LI. Laser beams and resonators. *Applied Optics*, 5(10) :1550–1567, October 1966. [27](#)
- [18] Basile Pottier, Guylaine Ducouret, Christian Fretigny, Francois Lequeux, and Laurence Talini. High bandwidth linear viscoelastic properties of complex fluids from the measurement of their free surface fluctuations. *Soft Matter*, 7(17) :7843–7850, 2011. WOS :000294014200032. [48](#)
- [19] Basile Pottier, Allan Raudsepp, Christian Fretigny, Francois Lequeux, Jean-Francois Palierne, and Laurence Talini. High frequency linear rheology of complex fluids measured from their surface thermal fluctuations. *Journal of Rheology*, 57(2) :441–455, March 2013. WOS :000314748100006. [48](#)
- [20] J. L. Harden, H. Pleiner, and P. A. Pincus. Hydrodynamic surface modes on concentrated polymer solutions and gels. *The Journal of Chemical Physics*, 94(7) :5208–5221, April 1991. [51](#)
- [21] Y. Ohmasa and M. Yao. Surface waves on non-newtonian viscoelastic liquids. *Physical Review E*, 83(3), March 2011. WOS :000288898100004. [51](#)
- [22] Francisco Monroy and Dominique Langevin. Direct experimental observation of the crossover from capillary to elastic surface waves on soft gels. *Physical Review Letters*, 81(15) :3167–3170, October 1998. [51](#)
- [23] John D Ferry. *Viscoelastic properties of polymers*. Wiley, New York, 1980. [56](#)
- [24] Michael Rubinstein and Ralph H Colby. *Polymer physics*. Oxford University Press, Oxford ; New York, 2003. [56](#)
- [25] S. R. de Groot. *Non-equilibrium thermodynamics*. Dover Publications, New York, 1984. [59](#)

- [26] Ronald G Larson. *The structure and rheology of complex fluids*. Oxford University Press, New York, 1999. 61
- [27] Pietro Cicutta and Athene M. Donald. Microrheology, a review of the method and applications. *Soft Matter*, 3(12) :1449–1455, November 2007. 62
- [28] F. C. MacKintosh and C. F. Schmidt. Microrheology. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 4(4) :300–307, August 1999. WOS :000084650400010. 62
- [29] J. C. Crocker, M. T. Valentine, E. R. Weeks, T. Gisler, P. D. Kaplan, A. G. Yodh, and D. A. Weitz. Two point microrheology of inhomogeneous soft materials. *Physical Review Letters*, 85(4) :888–891, July 2000. WOS :000088311800052. 62
- [30] I. Y. Wong, M. L. Gardel, D. R. Reichman, E. R. Weeks, M. T. Valentine, A. R. Bausch, and D. A. Weitz. Anomalous diffusion probes microstructure dynamics of entangled f-actin networks. *Physical Review Letters*, 92(17), April 2004. WOS :000221179200066. 62
- [31] F. Lortie, S. Boileau, L. Bouteiller, C. Chassenieux, B. Deme, G. Ducouret, M. Jalaubert, F. Laupretre, and P. Terech. Structural and rheological study of a bis-urea based reversible polymer in an apolar solvent. *Langmuir*, 18(19) :7218–7222, September 2002. WOS :000178020000020. 62
- [32] L. Bouteiller, O. Colombani, F. Lortie, and P. Terech. Thickness transition of a rigid supramolecular polymer. *Journal of the American Chemical Society*, 127(24) :8893–8898, June 2005. WOS :000229981200050. 62
- [33] Guylaine Ducouret, Christophe Chassenieux, Sandrine Martins, Francois Lequeux, and Laurent Bouteiller. Rheological characterisation of bis-urea based viscoelastic solutions in an apolar solvent. *Journal of Colloid and Interface Science*, 310(2) :624–629, June 2007. WOS :000246459700033. 62
- [34] Toshiyuki Shikata, Takuya Nishida, Benjamin Isare, Mathieu Linares, Roberto Lazzaroni, and Laurent Bouteiller. Structure and dynamics of a bisurea-based supramolecular polymer in n-dodecane. *The Journal of Physical Chemistry B*, 112(29) :8459–8465, July 2008. 62, 67
- [35] J. van der Gucht, N. A. M. Besseling, W. Knoben, L. Bouteiller, and M. A. Cohen Stuart. Brownian particles in supramolecular polymer solutions. *Physical Review E*, 67(5) :051106, May 2003. 62, 68
- [36] M. E. Cates. Reptation of living polymers : dynamics of entangled polymers in the presence of reversible chain-scission reactions. *Macromolecules*, 20(9) :2289–2296, September 1987. 63
- [37] N. Willenbacher, C. Oelschlaeger, M. Schopferer, P. Fischer, F. Cardinaux, and F. Schefold. Broad bandwidth optical and mechanical rheometry of wormlike micelle solutions. *Physical Review Letters*, 99(6) :068302, August 2007. 63, 68

- 
- [38] D. C. Morse. Viscoelasticity of concentrated isotropic solutions of semiflexible polymers. 2. linear response. *Macromolecules*, 31(20) :7044–7067, October 1998. WOS :000076389300041. [63](#)
- [39] P. Hébraud, F. Lequeux, and J.-F. Palierne. Role of permeation in the linear viscoelastic response of concentrated emulsions. *Langmuir*, 16(22) :8296–8299, October 2000. [65](#)
- [40] M. E. Cates and S. M. Fielding. Rheology of giant micelles. *Advances in Physics*, 55(7-8) :799–879, December 2006. WOS :000243126400003. [69](#)
- [41] Benjamin Akers and Andrew Belmonte. Impact dynamics of a solid sphere falling into a viscoelastic micellar fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 135(2) :97–108, May 2006. [69](#)
- [42] M. A. Bos and T. van Vliet. Interfacial rheological properties of adsorbed protein layers and surfactants : a review. *Advances in Colloid and Interface Science*, 91(3) :437–471, July 2001. WOS :000170462000003. [71](#)
- [43] M. Buchanan, M. Atakhorrami, J. F. Palierne, F. C. MacKintosh, and C. F. Schmidt. High-frequency microrheology of wormlike micelles. *Physical Review E*, 72(1) :011504, July 2005. [72](#)
- [44] B. N. J. Persson. Rolling friction for hard cylinder and sphere on viscoelastic solid. *The European Physical Journal E*, 33(4) :327–333, December 2010. [72](#)
- [45] Allan Raudsepp, Christian Fretigny, François Lequeux, and Laurence Talini. Two beam surface fluctuation specular reflection spectroscopy. *Review of Scientific Instruments*, 83(1) :013111–013111–7, January 2012. [76](#)
- [46] Zhang Jiang, Hyunjung Kim, X. Jiao, H. Lee, Y.-J. Lee, Y. Byun, S. Song, D. Eom, C. Li, M. H. Rafailovich, L. B. Lurio, and S. K. Sinha. Evidence for viscoelastic effects in surface capillary waves of molten polymer films. *Physical Review Letters*, 98(22) :227801, May 2007. [77](#)
- [47] J. Jackle. The spectrum of surface waves on viscoelastic liquids of arbitrary depth. *Journal of Physics-Condensed Matter*, 10(32) :7121–7131, August 1998. WOS :000075593400004. [78](#), [79](#)
- [48] K. J. Alvine, Y. Dai, H. W. Ro, S. Narayanan, A. R. Sandy, C. L. Soles, and O. G. Shpyrko. Capillary wave dynamics of thin polymer films over submerged nanostructures. *Physical Review Letters*, 109(20) :207801, November 2012. [90](#), [91](#)
- [49] Hugues Bodiguel. *Propriétés mécaniques de films polymères ultraminces*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, November 2006. [92](#)
- [50] JI Keddie, Ral Jones, and Ra Cory. Size-dependent depression of the glass-transition temperature in polymer-films. *Europhysics Letters*, 27(1) :59–64, July 1994. WOS :A1994NV66500011. [92](#)

- [51] J. A. Forrest and K. Dalnoki-Veress. The glass transition in thin polymer films. *Advances in Colloid and Interface Science*, 94(1-3) :167–196, November 2001. WOS :000172091000011. [92](#)
- [52] Jgem Fraaije and Am Cazabat. Dynamics of spreading on a liquid substrate. *Journal of Colloid and Interface Science*, 133(2) :452–460, December 1989. WOS :A1989CE00600019. [96](#)
- [53] Jose-Philippe Pérez and Eric Anterrieu. *Optique : fondements et applications*. Dunod, Paris, 2004. [103](#)
- [54] Hamza Chraïbi and Jean-Pierre Delville. Thermocapillary flows and interface deformations produced by localized laser heating in confined environment. *Physics of Fluids*, 24(3) :032102–032102–14, March 2012. [120](#), [129](#)
- [55] P. Kavehpour, B. Ovryn, and G. H. McKinley. Evaporatively-driven marangoni instabilities of volatile liquid films spreading on thermally conductive substrates. *Colloids and Surfaces a-Physicochemical and Engineering Aspects*, 206(1-3) :409–423, July 2002. WOS :000176724500035. [120](#)
- [56] M. Lax. Temperature rise induced by a laser beam. *Journal of Applied Physics*, 48(9) :3919–3924, September 1977. [129](#)
- [57] S. J. Vanhook, M. F. Schatz, J. B. Swift, W. D. McCormick, and H. L. Swinney. Long-wavelength surface-tension-driven benard convection : experiment and theory. *Journal of Fluid Mechanics*, 345 :45–78, August 1997. WOS :A1997XV71800003. [131](#)
- [58] T. M. Squires and S. R. Quake. Microfluidics : Fluid physics at the nanoliter scale. *Reviews of Modern Physics*, 77(3) :977–1026, July 2005. WOS :000232443800008. [144](#)
- [59] H. A. Stone, A. D. Stroock, and A. Ajdari. Engineering flows in small devices : Microfluidics toward a lab-on-a-chip. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 36 :381–411, 2004. WOS :000189042700016. [144](#)
- [60] Chiara Neto, Drew R. Evans, Elmar Bonaccorso, Hans-Jürgen Butt, and Vincent S. J. Craig. Boundary slip in newtonian liquids : a review of experimental studies. *Reports on Progress in Physics*, 68(12) :2859, December 2005. [145](#)
- [61] Eric Lauga, Michael P. Brenner, and Howard A. Stone. Microfluidics : The no-slip boundary condition. arXiv e-print cond-mat/0501557, January 2005. Chapter 19 in : Handbook of Experimental Fluid Dynamics, C. Tropea, A. Yarin, J. F. Foss (Eds.), Springer, 2007. [145](#)
- [62] REMMELT PIT. *Mesure locale de la vitesse a l'interface solide-liquide simple : glissement et role des interactions*. PARIS 11, ORSAY, January 1999. [145](#)
- [63] R. Pit, H. Hervet, and L. Leger. Friction and slip of a simple liquid at a solid surface. *Tribology Letters*, 7(2-3) :147–152, 1999. WOS :000084276900012. [145](#)

- 
- [64] R. Pit, H. Hervet, and L. Leger. Direct experimental evidence of slip in hexadecane : Solid interfaces. *Physical Review Letters*, 85(5) :980–983, July 2000. WOS :000088457000020. [145](#), [151](#), [173](#)
- [65] Marine Thiébaud. Quelques aspects de la physique des interfaces cisailées : hydrodynamique et fluctuations, 2011. [163](#)
- [66] Didi Derks. Suppression of thermally excited capillary waves by shear flow. *Physical Review Letters*, 97(3), 2006. [163](#)
- [67] R. Pit, H. Hervet, and L. Leger. Direct experimental evidence of slip in hexadecane : Solid interfaces. *Physical Review Letters*, 85(5) :980–983, July 2000. WOS :000088457000020. [166](#)
- [68] A. Mamane, C. Fretigny, F. Lequeux, and L. Talini. Surface fluctuations of an aging colloidal suspension : Evidence for intermittent quakes. *Epl*, 88(5), December 2009. WOS :000272835100027. [173](#)
- [69] Tadashi Kajiya, Adrian Daerr, Tetsuharu Narita, Laurent Royon, Francois Lequeux, and Laurent Limat. Dynamics of the contact line in wetting and diffusing processes of water droplets on hydrogel (PAMPS-PAAM) substrates. *Soft Matter*, 7(24) :11425–11432, 2011. WOS :000297425700016. [173](#)
- [70] I. S Gradshtein, I. M Ryzhik, and Alan Jeffrey. *Table of integrals, series, and products*. Academic Press, New York, 1980. [179](#), [188](#)
- [71] D. Langevin and Ma Bouchiat. Spectrum of thermal fluctuation of liquid recovered from thin film. *Comptes Rendus Hebdomadaires Des Seances De L Academie Des Sciences Serie B*, 272(25) :1422–&, 1971. WOS :A1971YY82700008. [200](#)
- [72] D. M. A. Buzza. General theory for capillary waves and surface light scattering. *Langmuir*, 18(22) :8418–8435, October 2002. [200](#)





## Résumé

La dynamique des fluctuations thermiques d'un milieu révèle les propriétés de ce milieu, sans qu'il soit nécessaire de le solliciter. Afin d'exploiter ce principe, nous avons mis au point une technique optique destinée à mesurer des fluctuations spontanées de hauteur de surfaces libres, basée sur la mesure de la déflexion d'un laser réfléchi à la surface.

Nous montrons que l'on peut ainsi mesurer les fluctuations de surface de milieux très variés, allant des liquides peu visqueux aux solides viscoélastiques. Les propriétés viscoélastiques du milieu sondé peuvent être déterminées à partir du spectre expérimental des fluctuations. On compare les valeurs obtenues avec des mesures rhéométriques conventionnelles, la technique s'avère être un moyen fiable pour caractériser les propriétés rhéologiques dans une gamme de fréquences allant de 0,1 Hz à quelques dizaines de kHz.

Par ailleurs, on s'intéresse à l'influence du confinement sur les fluctuations de surface d'un liquide newtonien. On étudie l'effet du confinement en utilisant des substrats de différentes natures : solide plan, solide en relief et liquide. On montre que les fluctuations de surface dépendent fortement du substrat utilisé. On étudie en particulier le cas où le film liquide est déposé sur une surface solide plane. En créant un effet Marangoni induit par un gradient de température à la surface libre du liquide, on parvient à contrôler l'épaisseur du film sondé. On mesure ainsi les fluctuations de surface de films dont l'épaisseur varie entre 30 nanomètres et quelques micromètres. Les spectres mesurés sont sensibles à la condition hydrodynamique à l'interface liquide-solide et permettent d'évaluer une éventuelle longueur de glissement.

## Abstract

The dynamics of thermal fluctuations of a medium reveals the properties of this medium, without the need to apply any stress. In order to exploit this principle, we have developed an optical technique for measuring spontaneous free surface height fluctuations, based on the measurement of the deflection of a laser reflected at the surface.

We show that we can measure surface fluctuations of various materials, ranging from low viscosity liquids to viscoelastic solids. The viscoelastic properties of the medium probed can be determined from the experimental fluctuations spectrum. Comparing the data obtained with conventional rheometric measurements, the technique turns out to be a reliable way to characterize the rheological properties of frequencies ranging from 0.1 Hz to tens of kHz.

In addition, we are interested in the influence of confinement on the surface fluctuations of a newtonian liquid. We study the effect of confinement using substrates of different types : solid plane, solid with a relief and liquid. We show that the surface fluctuations strongly depend on the substrate used. We study in particular the case where a liquid film is deposited onto a solid surface. By creating a Marangoni effect induced by a temperature gradient at the free surface of the liquid, it is possible to control the thickness of the probed film. We can therefore measure surface fluctuations of films whose thickness varies between 30 nanometers and a few micrometers. The measured spectra are sensitive to the hydrodynamic condition at the liquid-solid interface and makes it possible to estimate a possible slip length.