



HAL
open science

Mesure spatio-temporelle du taux de dissipation à l'interface des écoulements par diffusion multiple de la lumière

Enzo Francisco

► **To cite this version:**

Enzo Francisco. Mesure spatio-temporelle du taux de dissipation à l'interface des écoulements par diffusion multiple de la lumière. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Paris-Saclay, 2024. Français. NNT : 2024UPASP108 . tel-04793447

HAL Id: tel-04793447

<https://theses.hal.science/tel-04793447v1>

Submitted on 20 Nov 2024

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.

Mesure spatio-temporelle du taux de
dissipation à l'interface des écoulements
par diffusion multiple de la lumière

*Spatiotemporal measurement of
the boundary dissipation rate in flows
using Diffusing-Wave Spectroscopy*

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 564, Physique en Île-de-France (PIF)
Spécialité de doctorat : Physique
Graduate School : Physique. Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse préparée dans l'unité de recherche **SPEC** (Université Paris-Saclay, CEA, CNRS),
sous la direction de **Sébastien AUMAÎTRE**, directeur de recherche CEA et le
co-encadrement de **Basile GALLET**, directeur de recherche CEA.

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 22 octobre 2024, par

Enzo FRANCISCO

Composition du jury

Membres du jury avec voix délibérative

François PÉTRÉLIS Directeur de recherche, École Normale Supérieure	Président
Jérôme CRASSOUS Professeur des universités, Université de Rennes 1	Rapporteur & Examineur
Romain MONCHAUX Professeur associé, ENSTA Paris, Institut Polytechnique de Paris	Rapporteur & Examineur
Benjamin LECLAIRE Maître de recherche, ONERA	Examineur
Ivana VINKOVIC Professeure des Universités, Université Claude Bernard Lyon 1	Examinatrice

Titre : Mesure spatio-temporelle du taux de dissipation à l'interface des écoulements par diffusion multiple de la lumière

Mots clés : Diffusion multiple de la lumière, Taux de dissipation, Spectroscopie non destructive, Turbulence, Approximation de diffusion, Taylor-Couette

Résumé : Dans cette thèse, nous présentons une nouvelle technique expérimentale permettant la mesure spatio-temporelle du taux de dissipation à l'interface (paroi, surface libre, ...) d'un écoulement. Cette technique, connue sous le nom anglais de Diffusing-Wave Spectroscopy (DWS), repose sur l'approximation de diffusion pour décrire la diffusion multiple de la lumière dans le fluide et consiste en l'analyse des fluctuations temporelles de l'intensité diffusée. La DWS a pour principal intérêt de n'être sensible qu'à la norme du tenseur des taux de déformation, autrement dit aux gradients de vitesse, et pas au champ de vitesse en lui-même. De plus, elle permet de sonder ces différences spatiales de vitesse sur une distance égale au libre parcours moyen de transport, qui est typiquement de l'ordre de quelques dizaines de microns. Initialement développée à la fin des années 1980 pour l'étude des suspensions colloïdales, elle fut ensuite utilisée, à deux reprises seulement, pour obtenir le taux de dissipation moyen (ou local) à l'interface dans des écoulements stationnaires. Nous démontrons ici la possibilité d'une mesure résolue à la fois spatialement et temporellement, grâce à l'utilisation d'une caméra haute vitesse, permettant ainsi l'étude d'écou-

lements instationnaires et turbulents. Pour cela, nous discutons du choix des conditions aux limites de l'équation de diffusion pour une bonne interprétation des données, et de la pondération du taux de dissipation s'il est inhomogène. Le cas d'un taux de dissipation instationnaire est également décrit, démontrant la possibilité d'une mesure résolue temporellement si le temps caractéristique des fluctuations est plus long que le temps de convergence des fonctions d'autocorrélation. Ces considérations sont validées expérimentalement sur l'écoulement de Taylor-Couette : dans le régime de Couette (dissipation homogène stationnaire), des rouleaux de Taylor (dissipation inhomogène stationnaire) et enfin des rouleaux oscillants (dissipation inhomogène instationnaire). Par ailleurs, nous suggérons l'utilisation conjointe d'une mesure de réflectance spatialement résolue pour contrôler en temps réel le libre parcours moyen de transport. Ceci nous permet in fine de présenter de premières mesures dans un écoulement à très haut Reynolds (10^5 environ), qui viennent illustrer le potentiel de la DWS pour la mesure de la valeur moyenne et des fluctuations spatio-temporelles du taux de dissipation à l'interface des écoulements turbulents.

Title : Spatiotemporal measurement of the boundary dissipation rate in flows using Diffusing-Wave Spectroscopy

Keywords : Diffusing-Wave Spectroscopy, Dissipation rate, Multiple light scattering, Turbulence, Diffusion approximation, Taylor-Couette

Abstract : In this thesis, we present a new experimental technique for the spatiotemporal measurement of the dissipation rate at a flow interface (wall, free surface, etc.). This technique, known as Diffusing-Wave Spectroscopy (DWS), relies on the diffusion approximation to describe multiple light scattering in the fluid, and consists in analyzing temporal fluctuations in the scattered intensity. The main advantage of DWS is that it is sensitive only to the norm of the strain rate tensor, i.e. to velocity gradients, and not to the velocity field itself. Moreover, it can probe these spatial differences in velocity over a distance equal to the transport mean free path, which is typically of the order of a few tens of microns. Initially developed in the late 1980s for the study of colloidal suspensions, it was subsequently used, on only two occasions, to obtain the mean (or local) boundary dissipation rate in steady flows. Here, we demonstrate the possibility of a spatially and temporally resolved measurement using a high-speed camera, allowing for the study of unsteady and turbulent flows. To this end, we discuss both the choice of

boundary conditions for the diffusion equation to ensure correct interpretation of the data, and the weighting of the dissipation rate if it is inhomogeneous. The case of an unsteady dissipation rate is also described, demonstrating the possibility of a time-resolved measurement if the characteristic time of the fluctuations is longer than the convergence time of the autocorrelation functions. These considerations are validated experimentally on a Taylor-Couette flow : in the Couette flow (homogeneous stationary dissipation), the Taylor vortex flow (inhomogeneous stationary dissipation) and finally the wavy vortex flow (inhomogeneous unsteady dissipation). In addition, we suggest the joint use of spatially resolved reflectance measurement to monitor the transport mean free path in real time. This allows us to present preliminary measurements in a very high Reynolds number flow (around 10^5), illustrating the potential of DWS for measuring the mean value and spatiotemporal fluctuations of the boundary dissipation rate in turbulent flows.

Remerciements

Qui paie ses dettes s'enrichit.

À l'heure d'écrire ces remerciements, mes premiers mots s'adressent à mon directeur de thèse Sébastien. Tes qualités de physicien et ton encadrement ont été essentiels à la réussite de cette thèse. Merci pour ta disponibilité à toutes épreuves, la richesse de tes conseils et la large liberté de travail que tu m'as accordée tout au long de ces 3 ans et demi, dont je serai très vite nostalgique!

Basile, c'est ton tour : je te remercie pour ton rôle de co-encadrant, encadrant, ou quelque soit le titre exact. Tu as su à de nombreuses reprises apporter un regard neuf sur des points essentiels de ce travail. Votre tandem avec Sébastien a de beaux jours devant lui, aussi bien d'un point de vue scientifique qu'humain.

Je remercie également chaleureusement les membres de mon jury Jérôme Crassous, Romain Monchaux, François Pétrélis, Benjamin Leclaire et Ivana Vinkovic pour l'intérêt qu'ils ont porté aussi bien à ce manuscrit qu'à la soutenance.

Un grand merci à Gabriel, vite rejoint par Julie, puis Murukesh, et enfin Alexandre, d'avoir égayé les journées au bureau, en conférence, en cours ou encore en école d'été. Vous avez été les meilleurs co-doctorants qu'on puisse imaginer! Merci également à Julien et Thibault pour leurs stages sur ce travail de thèse, qui n'aurait pas produit ces résultats sans leur contribution. Merci enfin à Vincent et Benjamin pour leur accueil dans l'équipe à mon arrivée.

Plusieurs dispositifs expérimentaux étant au centre de cette thèse, elle aurait été impossible sans Vincent, Jean-Claude et Louis, qui ont permis leur conception et leur fabrication : merci à vous. Merci également à Cécile d'avoir géré la visioconférence de ma soutenance et l'automatisation d'expériences.

Je remercie plus généralement l'intégralité du groupe turbulence et du SPHYNX pour les discussions scientifiques, ainsi que la bonne humeur et l'entraide qui y règnent.

Mention spéciale à François, pour ta patience et ton implication dans la gestion des thèses, à Béréngère pour m'avoir dirigé vers les bonnes personnes, et à Michael, Antoine, Ben, Émile et Damien, pour les super moments passés avec vous !

Merci à Fabrice Charra, Simon Vassant, Michael Berhanu et Patrick Guenoun, pour le prêt de matériel et pour les discussions scientifiques. Merci également au directeur du SPEC Patrice Roche, à Nathalie Royer, Julie Bourget et Isabelle Souriou qui m'ont grandement simplifié la vie par leur gestion très efficace des demandes administratives.

Les dernières lignes de ces remerciements seront pour mes amis et ma famille. Merci à vous d'avoir assisté en nombre à ma soutenance, au labo ou en visio, avec une attention des plus impressionnantes. Je vous remercie aussi pour votre soutien de près ou de loin pendant cette aventure, lors de repas de famille ou de voyages extraordinaires.

Merci à vous mes parents, qui m'avez soutenu inconditionnellement pendant ces longues années de scolarité, jusqu'à cette thèse inédite dans la famille, et qui avez toujours été présents pour me faciliter la vie. Je vous dédie, à vous et à ma soeur, ce manuscrit.

Enfin, je le dédie également à ma compagne Anita. Je te remercie pour toutes ces années à mes côtés, ces voyages incroyables, ces expériences communes qui nous ont fait grandir, et qui en appellent d'autres. Et merci pour ton soutien et ta patience au quotidien qui m'ont permis, entre autres, de garder un rythme de vie raisonnable pendant la rédaction de ce manuscrit...

Merci !

Table des matières

Introduction	13
I Généralités	15
1 Dynamique des fluides newtoniens incompressibles	17
1.1 Équation du mouvement et équations de bilan	18
1.1.1 Conservation de la masse et équation de Navier-Stokes	18
1.1.2 Équation de bilan d'énergie cinétique et taux de dissipation	19
1.1.3 Un bref état de l'art de la mesure des gradients de vitesse	21
1.2 Écoulement de Taylor-Couette	22
1.2.1 Régime de Couette : écoulement de base	22
1.2.2 Première instabilité : régime des rouleaux de Taylor	24
1.2.3 Deuxième instabilité et au-delà : régime des rouleaux oscillants et transition vers la turbulence	24
1.3 Généralités sur la turbulence	25
1.3.1 Nombre de Reynolds	25
1.3.2 Description statistique de la turbulence	26
1.3.3 Turbulence homogène et isotrope : la cascade de Kolmogorov	28
1.3.4 Turbulence de paroi	31
2 Diffusion élastique de la lumière	37
2.1 Diffusion par une seule particule	38
2.1.1 Champ incident	38
2.1.2 Champ diffusé et sections efficaces	38
2.1.3 Simplification en champ lointain, vecteur de diffusion	41
2.2 Diffusion par un ensemble de particules	42
2.2.1 Coefficients d'atténuation et libre parcours moyen	42
2.2.2 Diffusion simple et diffusion multiple	43
2.3 Théorie du transfert radiatif et approximation de diffusion	44
2.3.1 Définition des grandeurs et équation de transport	44

2.3.2	Approximation de diffusion et libre parcours moyen de transport	46
-------	---	----

II Théorie 49

3	<i>Diffusing-Wave Spectroscopy</i> pour l'étude des écoulements	51
3.1	Historique et idée générale	52
3.2	Autocorrélation temporelle de l'intensité diffusée	53
3.2.1	Autocorrélation de l'intensité et autocorrélation du champ électrique	54
3.2.2	Cas de la diffusion simple : DLS	56
3.2.3	Cas de la diffusion multiple : DWS	58
3.3	Moments de la variation de phase	62
3.3.1	Cas d'une dynamique de mouvement brownien	62
3.3.2	Cas d'une dynamique d'écoulement	63
3.3.2.1	Expression de la variation de phase en fonction du tenseur des taux de déformation	65
3.3.2.2	Moyenne de la variation de phase	66
3.3.2.3	Variance de la variation de phase	67
3.3.2.4	Cas général	71
3.4	Densité de probabilité de la longueur des chemins : équation de diffusion et résolution	72
3.4.1	Approximation continue	72
3.4.2	Équation de diffusion et condition initiale	73
3.4.3	Conditions aux limites et solutions pour un milieu semi-infini	75
3.4.3.1	Condition aux limites de paroi absorbante	75
3.4.3.2	Condition aux limites de flux net à la paroi : formulation de Robin	77
3.4.3.3	Condition aux limites de flux net à la paroi : formulation extrapolée de Dirichlet	78
3.4.3.4	Comparaison des différentes solutions et limites de l'approximation de diffusion en rétrodiffusion	79
3.4.3.5	Impact des réflexions à la paroi et de la polarisation	82
3.4.4	Conditions aux limites et solutions pour une tranche d'épaisseur finie	84
3.4.4.1	Conditions aux limites de parois absorbantes	84
3.4.4.2	Conditions aux limites de flux net à la paroi : formulation de Robin	85
3.4.4.3	Conditions aux limites de flux net à la paroi : formulation extrapolée de Dirichlet	86
3.4.4.4	Comparaison avec les solutions en milieu semi-infini	86
3.4.5	Conclusion sur le choix des conditions aux limites	88
3.5	Cas d'un taux de dissipation inhomogène	89
3.5.1	Influence sur la fonction d'autocorrélation	89
3.5.2	Mesure résolue spatialement et temporellement	91
3.6	Récapitulatif	93

4	Réflectance spatialement résolue	95
4.1	Réflectance pour un faisceau ponctuel	96
4.2	Réflectance pour un faisceau gaussien	98
III	Expériences	101
5	Caractérisation des fluides diffusants	103
5.1	Description et préparation	104
5.2	Viscosités et masse volumique	105
5.3	Rayon hydrodynamique des diffuseurs	106
5.4	Libre parcours moyen de transport	107
5.4.1	Mesure par DWS en épaisseur finie	108
5.4.2	Mesure par réflectance spatialement résolue	109
5.5	Tableau récapitulatif des grandeurs clés	113
6	Traitement des données	115
6.1	Données brutes et autocorrélation temporelle	116
6.1.1	Cas du tube photomultiplicateur et corrélateur	116
6.1.2	Cas de la caméra	116
6.2	Ajustement à la prédiction théorique	118
6.2.1	Intervalle d'ajustement	118
6.2.1.1	Pour l'écoulement de Taylor-Couette	118
6.2.1.2	Pour l'écoulement turbulent	119
6.2.2	Détermination du paramètre γ	122
6.3	Convergence des fonctions d'autocorrélation	123
6.4	Valeurs des paramètres utilisés	125
7	Mesures de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette	127
7.1	Dispositif	128
7.1.1	Écoulement	128
7.1.2	Agencement optique et appareils de mesure	128
7.2	Procédure expérimentale	132
7.3	Résultats	133
7.3.1	Mesures globales	133
7.3.2	Mesures spatio-temporelles	134
7.3.2.1	Mesures locales : résolution spatiale	134
7.3.2.2	Mesures locales dans le temps : résolution spatio-temporelle	135
7.4	Conclusion	137

8 Mesures de DWS dans un écoulement turbulent	139
8.1 Dispositif	140
8.1.1 Écoulement	140
8.1.2 Agencement optique et appareils de mesure pour la DWS	140
8.1.3 Dispositif de mesure de l^* par réflectance spatialement résolue	143
8.2 Procédure expérimentale	143
8.3 Résultats	145
8.3.1 Valeurs moyennes : puissance injectée et dissipée	145
8.3.1.1 Taux de dissipation moyen dans le volume et à la paroi	145
8.3.1.2 Dépendance en Re_L	147
8.3.2 Fluctuations temporelles	148
8.3.3 Variations spatio-temporelles	149
8.4 Conclusion	152
Conclusion	154
Annexe A Moyennes sur le tenseur de diffusion isotrope	155
Annexe B Mesure du rayon hydrodynamique moyen par DLS	159
Annexe C Article sur la mesure de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette	167

Introduction

"La turbulence est le plus important problème non résolu de la physique classique". Près de 60 ans plus tard, l'affirmation de Richard Feynman reste plus que jamais d'actualité. Les écoulements autour des éoliennes et des avions, au sein des atmosphères planétaires et des océans, ou encore dans les mélangeurs industriels, constituent autant d'exemples, parmi beaucoup d'autres, d'écoulements turbulents encore largement incompris. Et ce alors même que les équations de Navier-Stokes qui les décrivent sont connues depuis plus de 200 ans. En particulier, bien que les enjeux de sobriété et d'efficacité énergétiques soient au centre de nos préoccupations, nous sommes loin d'avoir trouvé –et encore moins compris– comment obtenir d'un objet baignant dans un fluide (véhicule, mélangeur, ...) le comportement dynamique souhaité, tout en lui fournissant le minimum d'énergie possible. Cette énergie est transférée au fluide pour le mettre en mouvement, mais une partie de l'énergie cinétique du fluide est elle-même transformée en chaleur, sous l'action des frottements visqueux : c'est le mécanisme de dissipation visqueuse. Il s'agit d'un processus irréversible, cette part de l'énergie est ainsi perdue pour la dynamique. Le taux de dissipation, c'est-à-dire la quantité d'énergie cinétique dissipée sous forme de chaleur par unité de temps et de masse, constitue ainsi une quantité clé en dynamique des fluides, et en particulier dans l'étude des écoulements turbulents. Sa connaissance, en termes de valeur moyenne comme de variations spatio-temporelles, est cruciale aussi bien dans l'ingénierie, comme illustré précédemment, que pour la compréhension fondamentale de la turbulence et l'amélioration des modèles météorologiques ou de climat, car il a un impact sur les bilans et les échanges d'énergie à grande échelle.

La mesure expérimentale du taux de dissipation, tout comme son étude par simulation numérique, est toutefois difficile, car les frottements visqueux sont liés aux gradients de vitesse dans l'écoulement. En effet, la plupart des techniques expérimentales de caractérisation des écoulements permettent d'obtenir le champ de vitesse avec une certaine résolution, champ de vitesse qui doit ensuite être dérivé spatialement pour obtenir une estimation des gradients de vitesse. Cette estimation peut s'avérer totalement incorrecte si la résolution du champ de vitesse n'est pas suffisante pour réaliser la dérivation spatiale, autrement dit si la plus petite échelle de variation du champ de vitesse n'est pas résolue. Or, et c'est là toute la difficulté de l'étude des écoulements turbulents, cette plus

petite échelle, appelée échelle de dissipation, est d'autant plus petite que l'écoulement est turbulent. Pour les simulations numériques, la situation est encore plus critique puisqu'elles doivent être capable de résoudre aussi bien les grandes échelles de l'écoulement que l'échelle de dissipation, ce qui représente vite des temps de calcul colossaux. Malgré la progression spectaculaire des capacités de calcul ces dernières décennies, la prédiction météorologique ou l'optimisation du comportement aérodynamique d'un véhicule restent ainsi des défis de taille.

C'est dans ce contexte qu'une nouvelle technique expérimentale présente un fort intérêt : la diffusion multiple de la lumière, plus connue sous le nom anglais de *Diffusing-Wave Spectroscopy* et à laquelle on se réfère dans la suite par ses initiales DWS. Née à la fin des années 1980 [1, 2], elle est développée dans l'optique d'étendre l'usage de la technique de diffusion dynamique de la lumière (*dynamic light scattering*) à des fluides diffusant très bien la lumière. La diffusion dynamique de la lumière permet en effet d'étudier la dynamique de diffuseurs dans un fluide diffusant très faiblement la lumière, en s'appuyant sur la théorie de la diffusion simple. La DWS repose au contraire sur l'approximation de diffusion pour décrire le transport de la lumière dans l'échantillon, et permet de remonter au déplacement relatif moyen des diffuseurs. Or, si le fluide est en écoulement, ce déplacement relatif correspond à une différence spatiale de vitesse, et donc à un gradient de vitesse. Cette technique a ainsi été appliquée à deux reprises dans les années 1990 sur des écoulements stationnaires classiques [3, 4]. La quantité exacte auquel elle donne accès s'avère en fait être le taux de dissipation, pour peu que le libre parcours moyen de transport, c'est-à-dire la distance moyenne entre deux événements de diffusion, soit plus faible que l'échelle de dissipation. Le libre parcours moyen de transport pouvant facilement être de l'ordre de quelques dizaines de microns, on comprend donc le potentiel de la DWS pour l'étude du taux de dissipation dans les écoulements turbulents. De plus, dans d'autres domaines de recherche où la DWS est utilisée, l'utilisation de caméras a, plus récemment, permis d'obtenir la résolution spatio-temporelle de la quantité d'intérêt [5-9], contrairement aux premières mesures qui donnaient une mesure globale. L'objectif de cette thèse est ainsi double :

- d'une part, démontrer la possibilité et la validité d'une mesure résolue spatialement et temporellement du taux de dissipation à une interface par DWS, par des mesures sur un écoulement connu ;
- et d'autre part, démontrer la possibilité d'une telle mesure à l'interface d'un écoulement turbulent.

Pour cela, ce manuscrit est organisé en trois parties : Généralités, Théorie et Expériences.

- Dans la partie I sont présentés les concepts fondamentaux nécessaires à la compréhension des tenants et aboutissants de cette thèse. Le chapitre 1 décrit les notions de base de dynamique des fluides newtoniens incompressibles, en particulier le taux de dissipation. Il présente également l'écoulement de Taylor-Couette, qui nous servira à valider la DWS résolue spatio-temporellement, et des généralités sur la turbulence pour comprendre ses enjeux et le potentiel de cette technique. Le chapitre 2 détaille la théorie de la diffusion élastique de la lumière, des notions de diffusion simple et multiple jusqu'à la théorie du transfert radiatif et l'approximation de diffusion, essentielle dans la théorie de la DWS.
- La partie II regroupe les éléments théoriques de cette thèse, nécessaires pour une bonne application expérimentale de la technique. Le chapitre 3 en constitue le coeur et s'attache à décrire précisément la théorie de la DWS, de l'idée générale aux conditions aux limites adaptées pour l'approximation de diffusion, en passant par la pondération spatiale intervenant dans la mesure du taux de dissipation. La possibilité d'une mesure résolue spatio-temporellement et ses limites y sont également détaillées. Le chapitre 4 présente succinctement la théorie derrière la méthode expérimentale de la réflectance spatialement résolue, qui permet le contrôle en temps réel du paramètre crucial pour la DWS qu'est le libre parcours moyen de transport.
- Enfin, la partie III vient répondre aux objectifs annoncés de cette thèse. Le chapitre 5 détaille les propriétés optiques et hydrodynamiques des fluides diffusants utilisés dans nos expériences, indispensables pour une bonne interprétation des données. Le chapitre 6 détaille le traitement de ces données, du calcul des fonctions d'autocorrélation à leur ajustement à la prédiction théorique, en passant par l'étude de leur convergence. Ensuite, le chapitre 7 vient démontrer la validité d'une mesure résolue spatialement et temporellement du taux de dissipation à l'interface des écoulements par DWS, en s'appuyant sur un écoulement de Taylor-Couette. Enfin, le chapitre 8 constitue le point final de cette thèse : une étude préliminaire du taux de dissipation et de ses fluctuations spatio-temporelles en paroi d'un écoulement turbulent, afin d'illustrer le potentiel de la DWS pour l'étude de la turbulence.

Première partie

Généralités

Chapitre 1

Dynamique des fluides newtoniens incompressibles

L'objectif de ce chapitre est de présenter les notions de dynamique des fluides indispensables à la compréhension du reste de ce manuscrit. Il permet en particulier de comprendre l'intérêt et les possibilités qu'offre la *Diffusing-Wave Spectroscopy* (DWS) pour l'étude des écoulements turbulents, pour lesquels le taux de dissipation est une quantité cruciale et difficile à mesurer. On présentera d'abord les quantités et équations classiques de la dynamique des fluides, avant de s'intéresser à l'écoulement de Taylor-Couette. Celui-ci nous permettra de valider l'utilisation de la DWS pour obtenir la résolution spatio-temporelle du taux de dissipation (chapitre 7). Enfin, on donnera quelques résultats essentiels concernant les écoulements turbulents, dans le cas homogène et isotrope comme dans le cas de la turbulence de paroi, pour comprendre l'intérêt d'une mesure par DWS telle que celle présentée en fin de manuscrit (chapitre 8).

L'essentiel de ce chapitre suivra le traitement présenté entre autres dans l'ouvrage de référence "Hydrodynamique physique" de Guyon, Hulin et Petit (2001) [10], que ce soit pour présenter les équations classiques de la dynamique des fluides, décrire l'écoulement de Taylor-Couette ou introduire la turbulence. Pour cette dernière, on s'appuiera également sur un autre ouvrage de référence, "*Turbulence : An Introduction for Scientists and Engineers*" de Davidson (2015) [11], qu'on pourra consulter pour plus de détails.

1.1 Équation du mouvement et équations de bilan

1.1.1 Conservation de la masse et équation de Navier-Stokes

Dans tout ce manuscrit, on ne considérera que des fluides newtoniens incompressibles. En notant \mathbf{v} le champ de vitesse, l'équation de conservation de la masse s'écrit alors :

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1.1)$$

Le mouvement d'un tel fluide est décrit par l'équation de Navier-Stokes, qui correspond à la relation fondamentale de la dynamique appliquée à une particule de fluide¹ :

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \rho (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \rho \mathbf{f} + \eta \Delta \mathbf{v} \quad (1.2)$$

où ρ désigne la masse volumique du fluide et η sa viscosité dynamique, toutes deux constantes et non nulles. p correspond au champ de pression, \mathbf{f} correspond à l'ensemble des forces extérieures appliquées au fluide, par unité de volume, et Δ à l'opérateur laplacien vectoriel. Dans cette équation,

- le terme $\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t}$ correspond à l'accélération d'une particule de fluide due explicitement à la variation temporelle du champ de vitesse, ce terme est donc nul si le champ de vitesse est stationnaire ;
- le terme $\rho (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}$, non linéaire, représente l'accélération d'une particule de fluide liée à la variation de vitesse au cours de son déplacement, c'est-à-dire l'advection du champ de vitesse par lui-même ;
- le terme $-\nabla p$ représente les forces de pression, associées aux contraintes normales des particules de fluide les unes sur les autres, y compris en l'absence d'écoulement (pression hydrostatique) ;
- le terme $\rho \mathbf{f}$ regroupe l'ensemble des forces extérieures appliquées à la particule de fluide (la gravité par exemple), par unité de volume ;
- enfin, le dernier terme $\eta \Delta \mathbf{v}$ correspond aux forces de frottement visqueux, associées aux contraintes tangentielles.

Ces deux équations (avec les conditions aux limites et initiale associées) ne permettent malheureusement pas, dans le cas général, de caractériser la dynamique d'un fluide newtonien incompressible, c'est-à-dire de déterminer le champ de vitesse \mathbf{v} et le

1. On notera que le fluide étant incompressible, l'équation de Navier-Stokes peut également être vue comme un bilan de quantité de mouvement.

champ de pression p en tout point du fluide et à tout instant. En effet, la présence du terme non-linéaire d'advection complexifie considérablement l'analyse de l'équation de Navier-Stokes, l'existence systématique d'une solution régulière restant d'ailleurs un problème ouvert. La résolution analytique de ce problème n'est ainsi possible que dans des cas très particuliers.

1.1.2 Équation de bilan d'énergie cinétique et taux de dissipation

A défaut de pouvoir facilement déterminer le champ de vitesse en tout point d'un fluide en écoulement, il est utile de réaliser des équations de bilan sur des quantités d'intérêt (quantité de mouvement, énergie, ...). En effet, ces équations de bilan, qui découlent directement de l'équation de Navier-Stokes et de l'équation de conservation de la masse, peuvent permettre d'analyser quantitativement des écoulements. En particulier, en multipliant l'équation de Navier-Stokes (1.2) par \mathbf{v} et en l'intégrant sur un volume \mathcal{V} , délimité par la surface \mathcal{S} , on obtient l'équation de bilan d'énergie cinétique :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\int_{\mathcal{V}} \rho \frac{v^2}{2} d\mathcal{V} \right) = & - \int_{\mathcal{S}} \rho \frac{v^2}{2} \mathbf{v} \cdot \hat{\mathbf{n}} d\mathcal{S} - \int_{\mathcal{S}} p \mathbf{v} \cdot \hat{\mathbf{n}} d\mathcal{S} + \int_{\mathcal{V}} \rho \mathbf{v} \cdot \mathbf{f} d\mathcal{V} \\ & + 2\eta \int_{\mathcal{S}} \mathbf{v} \cdot (\underline{\underline{\mathbf{e}}} \cdot \hat{\mathbf{n}}) d\mathcal{S} - 2\eta \int_{\mathcal{V}} \sum_{i,j} e_{ij}^2 d\mathcal{V} \end{aligned} \quad (1.3)$$

où $\hat{\mathbf{n}}$ désigne la normale sortante à la surface \mathcal{S} et $\underline{\underline{\mathbf{e}}}$ le tenseur des taux de déformation. Les composantes e_{ij} de ce tenseur symétrique sont données par :

$$e_{ij} \equiv \frac{1}{2} (\partial_i v_j + \partial_j v_i) \quad (1.4)$$

où i et j correspondent aux coordonnées spatiales et ∂_i désigne la dérivée partielle selon la coordonnée i . Tout comme le champ de vitesse, le tenseur des taux de déformation dépend donc en général des coordonnées d'espace et de temps.

Dans l'équation de bilan d'énergie cinétique (1.3),

- le membre de gauche est la variation temporelle d'énergie cinétique du volume \mathcal{V} de fluide ;
- le terme $-\int_{\mathcal{S}} \rho \frac{v^2}{2} \mathbf{v} \cdot \hat{\mathbf{n}} d\mathcal{S}$ correspond au flux d'énergie cinétique advectée par l'écoulement à travers la surface \mathcal{S} ;
- les termes $-\int_{\mathcal{S}} p \mathbf{v} \cdot \hat{\mathbf{n}} d\mathcal{S}$ et $2\eta \int_{\mathcal{S}} \mathbf{v} \cdot (\underline{\underline{\mathbf{e}}} \cdot \hat{\mathbf{n}}) d\mathcal{S}$ représentent le travail des forces de pression et de viscosité s'exerçant normalement à la surface \mathcal{S} . Ces trois premiers termes représentent donc l'ensemble des échanges d'énergie dus aux travaux des forces sur la surface \mathcal{S} ;

- le terme $\int_{\mathcal{V}} \rho \mathbf{v} \cdot \mathbf{f} d\mathcal{V}$ correspond à l'apport (ou l'extraction) d'énergie par les forces extérieures ;
- enfin, le terme $-2\eta \int_{\mathcal{V}} \sum_{i,j} e_{ij}^2 d\mathcal{V}$, appelé taux de dissipation, représente la transformation irréversible d'énergie cinétique en chaleur (autrement dit, en énergie interne) par frottements visqueux.

Par la suite, on s'intéressera à la quantité Γ définie comme suit :

$$\Gamma \equiv \sqrt{2 \sum_{i,j} e_{ij}^2} \quad (1.5)$$

Γ est donc proportionnel à la norme du tenseur des taux de déformation et s'exprime en s^{-1} . Le taux de dissipation volumique (en $W \cdot m^{-3}$), c'est-à-dire $2\eta \sum_{i,j} e_{ij}^2$ est alors simplement donné par $\eta \Gamma^2$. De manière équivalente, on utilise également le taux de dissipation massique (en W/kg), noté ε , défini par :

$$\varepsilon \equiv 2\nu \sum_{i,j} e_{ij}^2 \equiv \nu \Gamma^2 \quad (1.6)$$

où $\nu \equiv \eta/\rho$ est la viscosité cinématique, elle aussi constante par définition.

On notera que le terme $\eta \Delta \mathbf{v}$, à l'origine du taux de dissipation dans l'équation de bilan d'énergie cinétique, entraîne un couplage entre l'équation de Navier-Stokes et l'équation de bilan d'énergie interne du fluide. En effet, le taux de dissipation devient un terme source dans l'équation de bilan d'énergie interne. Celle-ci peut à son tour avoir une influence sur l'équation de Navier-Stokes, à travers la masse volumique et les viscosités, qui dépendent en toute généralité de la température. Néanmoins, le taux de dissipation entraîne dans la plupart des cas une hausse de température extrêmement faible, si bien qu'on peut négliger la rétro-action de la température sur l'équation de Navier-Stokes. Pour illustrer cela, prenons l'exemple d'un fort écoulement de cisaillement pur, avec un gradient de vitesse de $100 s^{-1}$: on a dans ce cas $\Gamma = 100 s^{-1}$, une valeur typique dans nos expériences. Cela revient à ce que deux couches de fluide distantes de 1 cm dans la direction du gradient présentent une différence de vitesse de $1 m \cdot s^{-1}$. La hausse de température ΔT liée à la dissipation pendant la durée Δt est donnée par $c \Delta T = \varepsilon \Delta t = \nu \Gamma^2 \Delta t$ où c désigne la capacité thermique massique du fluide. Pour de l'eau à $25^\circ C$, on obtient alors $\Delta T / \Delta t = 2.11 \times 10^{-6} K \cdot s^{-1}$. Il faut ainsi que l'énergie cinétique du fluide soit dissipée par frottements visqueux pendant plusieurs dizaines d'heures pour obtenir une hausse de température de l'ordre d' $1^\circ C$. C'est également pour cette raison que l'estimation directe (par mesure de température) du taux de dissipation est si compliquée, sans parler de sa résolution spatio-temporelle. On préfère ainsi mesurer la quantité Γ pour en déduire ε .

1.1.3 Un bref état de l'art de la mesure des gradients de vitesse

La mesure de Γ n'est néanmoins pas chose aisée. En effet, la plupart des techniques de mesure permettent d'obtenir une mesure de vitesse, en un ou plusieurs points, mesure qui doit ensuite être dérivée spatialement pour obtenir une estimation du gradient de vitesse local et donc de \underline{e} ou Γ . Hors cette dérivation spatiale est problématique dès lors que le gradient de vitesse n'est pas homogène entre deux points de mesure de vitesse. La résolution du champ de vitesse est donc critique dans ces techniques, voir par exemple la revue de Wang et al. (2021) [12] sur le sujet. On citera en particulier :

- l'anémométrie à fil chaud fournit, avec une grande précision, l'évolution temporelle de la vitesse en un point donné [13]. Cependant, pour accéder à au moins une composante du gradient, il faut soit supposer valide l'hypothèse de "turbulence gelée" de Taylor [14], soit ajouter un deuxième fil chaud, dont la mesure pourrait être perturbé par la présence du premier. De plus, l'estimation du gradient de vitesse reste locale et dans une seule direction ;
- bien que moins intrusive, la vélocimétrie laser Doppler n'est pas non plus adaptée aux mesures de gradients. Elle reste une mesure locale et la résolution temporelle est limitée par la concentration de particules de traçage [15] ;
- la vélocimétrie par image de particules (PIV) permet d'imager trois composantes du champ de vitesse dans un plan. Cependant, les algorithmes de corrélation limitent la résolution spatiale à environ 10 pixels de la caméra [16]. Par exemple, dans le cadre du 4^{ème} défi international de PIV (2014), la résolution dans un écoulement turbulent est d'environ un millimètre (cas B de [17]), ce qui ne permet en général pas de dériver correctement le gradient de vitesse. Cette résolution peut être améliorée en effectuant un zoom, mais cela réduit la région d'intérêt disponible ;
- la vélocimétrie par suivi de particules (PTV) n'offre pas une meilleure alternative, car la résolution eulérienne est limitée par la distance moyenne entre les particules suivies.

Il existe également des capteurs mesurant directement le cisaillement, mais ils doivent être placés sur une surface solide avec un alignement très sensible [18]. Ils sont de plus limités à l'étude des gradients de vitesse près des parois et donnent généralement des mesures locales ou moyennées sur la taille de la sonde.

1.2 Écoulement de Taylor-Couette

1.2.1 Régime de Couette : écoulement de base

L'écoulement de Taylor-Couette, aussi appelé écoulement de Couette cylindrique, consiste en l'écoulement d'un fluide newtonien incompressible, de viscosité cinématique ν , entre deux cylindres coaxiaux de rayons R_1 et R_2 tournant autour de leur axe avec des vitesses angulaires respectives Ω_1 et Ω_2 . Le volume dans lequel se trouve le fluide est appelé entrefer. Dans le cas qui nous intéresse, théoriquement comme expérimentalement, seul le cylindre intérieur est en rotation, autrement dit $\Omega_2 = 0$ et on notera plus simplement $\Omega = \Omega_1$ la vitesse de rotation du cylindre intérieur. En coordonnées cylindriques (r, θ, z) , où Oz est l'axe des cylindres, on cherche à déterminer le champ des vitesses $\mathbf{v} = (v_r, v_\theta, v_z)$. On supposera les cylindres infiniment longs.

Aux faibles vitesses de rotation (plus précisément lorsque le nombre de Taylor est suffisamment faible, voir plus loin), les champs de vitesse et de pression sont indépendants de θ et de z . Par symétrie, et en l'absence de gradient de pression axial, on a $v_z = 0$. Enfin, en coordonnées cylindriques, l'équation de conservation de la masse (1.1) donne :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r v_r) = 0 \quad (1.7)$$

v_r est donc de la forme $v_r = C/r$ avec C une constante. Comme les conditions aux limites en $r = R_1$ ou $r = R_2$ impliquent que v_r soit nul, v_r est identiquement nul dans tout le fluide. Finalement, le champ de vitesse est de la forme $\mathbf{v} = (0, v_\theta(r), 0)$ et on notera plus simplement $v(r) = v_\theta(r)$. En l'absence de force extérieure, les projections de l'équation de Navier-Stokes en coordonnées cylindriques s'écrivent alors :

$$\frac{v^2}{r} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} \quad (1.8)$$

$$\frac{\partial^2 v}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial r} - \frac{v}{r^2} = 0 \quad (1.9)$$

L'équation (1.8) représente l'équilibre entre la force d'inertie centrifuge, due à la courbure des trajectoires des particules du fluide, et le gradient de pression. L'équation (1.9), qui correspond aux différents termes du laplacien de la vitesse, a pour solution $v(r) = Ar + B/r$. Les conditions aux limites $v(R_1) = R_1\Omega$ et $v(R_2) = 0$ permettent d'en déduire :

$$v(r) = \frac{\Omega R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} \left(\frac{R_2^2}{r} - r \right) \quad (1.10)$$

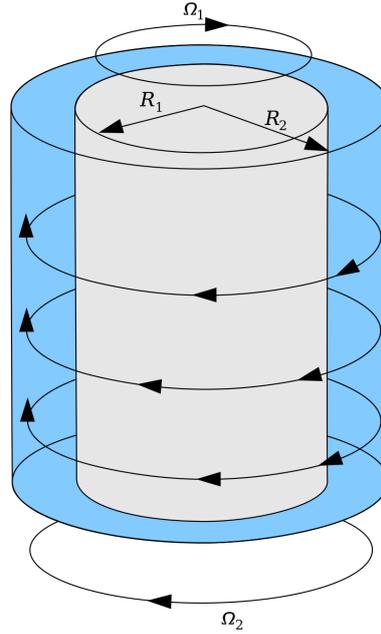


FIGURE 1.1 – Schéma d'un écoulement de Taylor-Couette. Dans le cas qui nous intéresse, le cylindre extérieur est fixe ($\Omega_2 = 0$). Dans le régime laminaire, l'écoulement est purement orthoradial, stable et stationnaire (écoulement de Couette). Image directement tirée de Wikipédia, sans modification (<https://commons.wikimedia.org/wiki/File:CouetteTaylorSystem.png>, par X4or).

Ce régime est souvent appelé régime de Couette, il correspond au régime strictement laminaire de l'écoulement de Taylor-Couette. L'écoulement de Couette est un écoulement purement orthoradial, stable et stationnaire. D'après (1.10), seules les composantes $e_{\theta r}$ et $e_{r\theta}$ du tenseur des taux de déformation sont non nulles². On peut en déduire la norme du tenseur des taux de déformation et donc $\Gamma(r)$ par l'expression (1.5), qui est donc linéaire avec la vitesse de rotation du cylindre intérieur :

$$\Gamma(r) = \frac{2\Omega R_1^2 R_2^2}{(R_2^2 - R_1^2) r^2} \quad (1.11)$$

Γ est donc uniforme à r fixé, et en particulier à l'interface cylindre extérieur – fluide ($r = R_2$).

2. En coordonnées cylindriques, les composantes de \underline{e} sont données par : $e_{rr} = \frac{\partial v_r}{\partial r}$, $e_{\theta\theta} = \frac{1}{r} \frac{\partial v_\theta}{\partial \theta} + \frac{v_r}{r}$, $e_{zz} = \frac{\partial v_z}{\partial z}$, $e_{r\theta} = e_{\theta r} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial \theta} + \frac{\partial v_\theta}{\partial r} - \frac{v_\theta}{r} \right)$, $e_{zr} = e_{rz} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} + \frac{\partial v_r}{\partial z} \right)$ et $e_{\theta z} = e_{z\theta} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_\theta}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_z}{\partial \theta} \right)$.

1.2.2 Première instabilité : régime des rouleaux de Taylor

Si la vitesse de rotation Ω du cylindre intérieur dépasse une valeur critique Ω_c , l'écoulement devient instable. Un écoulement secondaire sous la forme de rouleaux toroïdaux, appelés rouleaux de Taylor, apparaît alors : c'est l'instabilité de Taylor-Couette (figure 1.2). Le plan des tores est horizontal, et leur diamètre égal à la distance inter-cylindres $L = R_2 - R_1$, c'est-à-dire l'épaisseur de l'entrefer. L'écoulement qui en résulte est alors la superposition de l'écoulement de base défini par l'équation (1.10) et de l'écoulement en rouleaux toroïdaux (mouvement de rotation autour de l'axe des rouleaux). Le nombre sans dimension qui régit l'apparition de cette instabilités (et des suivantes) est le nombre de Taylor Ta :

$$Ta = \frac{\Omega^2 L^3 R}{\nu^2} \quad (1.12)$$

où on a supposé que le rayon moyen $R = (R_1 + R_2)/2$ est grand devant la distance inter-cylindres : $R \gg L$. Le nombre de Taylor correspond au rapport entre la force motrice qui s'applique sur une particule et qui tend à l'écarter du centre de l'écoulement si on impose à la particule un déplacement vers l'extérieur (à cause du gradient radial de force centrifuge), et la force de freinage visqueuse, qui tend à ralentir ce mouvement. La rupture d'équilibre entre ces deux forces (autrement dit, le fait que la force motrice devienne supérieure à la force de freinage) est à l'origine de l'instabilité de Taylor-Couette. L'apparition de cette instabilité se produit pour un nombre de Taylor critique Ta_c , de valeur environ 1712. Cette valeur dépend en fait du ratio entre les rayons des cylindres intérieur et extérieur R_1/R_2 [19], la valeur $Ta_c = 1712$ étant obtenue dans la limite d'un ratio très proche de 1.

Dans ce régime, l'écoulement reste stationnaire. Le champ de vitesse n'est plus seulement fonction de r , mais également de z . Plus précisément, les rouleaux successifs étant contra-rotatifs, le champ de vitesse et donc le tenseur des taux de déformation présentent une périodicité verticale avec une longueur d'onde h environ égale à 2 fois le diamètre d'un tore, autrement dit $h \approx 2L$. Γ n'est alors plus linéaire avec la vitesse de rotation Ω et présente également cette dépendance périodique en z de longueur d'onde h [4, 20-24]³.

1.2.3 Deuxième instabilité et au-delà : régime des rouleaux oscillants et transition vers la turbulence

En augmentant encore la vitesse de rotation du cylindre intérieur, autrement dit à plus hauts nombres de Taylor, on observe une oscillation des rouleaux : on parle du régime des rouleaux oscillants. L'écoulement jusqu'ici stationnaire devient instationnaire,

3. L'amplitude de l'instabilité suit en fait une loi de Landau, on se référera aux travaux de Bicout et Maret (1994) [4] pour le détail de la dépendance de Γ en fonction de Ta ou de Ω .

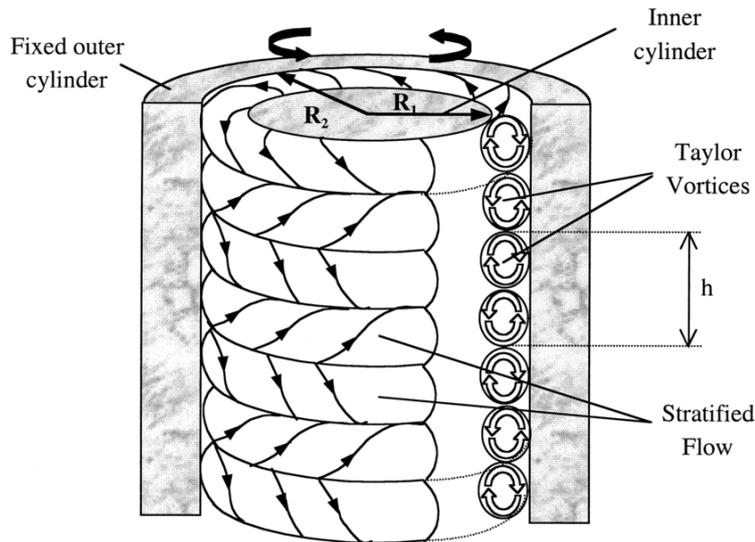


FIGURE 1.2 – Illustration des trajectoires des particules fluides dans le régime des rouleaux de Taylor. L'écoulement consiste en la superposition de l'écoulement de base orthoradial et d'un écoulement orthogonal à l'axe des tores, dont le diamètre est environ égal à la distance inter-cylindres L . Ces écoulements en rouleaux étant contra-rotatifs, le champ de vitesse et le tenseur des taux de déformation sont verticalement périodiques, avec une longueur d'onde h donnée par $h \approx 2L$. Image directement tirée de Moser et al. (2000) [25], sans modification.

mais périodique dans le temps [26].

Enfin, si on continue à augmenter le nombre de Taylor, l'écoulement passe par plusieurs instabilités successives avant de devenir pleinement turbulent [27].

1.3 Généralités sur la turbulence

1.3.1 Nombre de Reynolds

On appelle nombre de Reynolds Re le nombre sans dimension qui décrit l'importance du flux advectif (par l'écoulement) de quantité de mouvement par rapport au flux diffusif (par viscosité) de quantité de mouvement. On peut le définir via l'équation de Navier-Stokes (1.2) par le rapport entre le terme d'advection du champ de vitesse par lui-même (ou terme d'inertie) et le terme de frottements visqueux. Si on note L et v respectivement

une longueur caractéristique et une vitesse caractéristique de l'écoulement, alors on a :

$$\frac{|\rho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}|}{|\eta \Delta \mathbf{v}|} \approx \frac{\rho v L}{\eta} = \frac{v L}{\nu} = Re \quad (1.13)$$

Une autre manière de voir le nombre de Reynolds est comme le rapport entre le temps caractéristique de diffusion visqueuse et le temps caractéristique d'advection. En effet, ces temps caractéristiques sont inversement proportionnels à l'efficacité du mécanisme de transport (advection ou diffusion) associé. Le nombre de Reynolds est le seul paramètre qui apparaît dans l'équation de Navier-Stokes adimensionnée : un facteur Re^{-1} apparaît devant le terme de frottement visqueux adimensionné. Ceci permet d'établir une loi de similitude entre des écoulements à différentes échelles, mais de même nombre de Reynolds.

On notera qu'on peut définir un nombre de Reynolds pour chaque échelle de l'écoulement, en considérant la vitesse typique (ou ses variations) à cette échelle. Ainsi, pour un écoulement de grande longueur et/ou vitesse caractéristique et donc de grand nombre de Reynolds, il existera toujours une échelle de longueur, appelée échelle de dissipation, où les mécanismes d'advection et de diffusion sont d'efficacité équivalente. Par définition, le nombre de Reynolds à cette échelle est de l'ordre de l'unité.

1.3.2 Description statistique de la turbulence

La turbulence, bien que difficile à définir, correspond à l'état des écoulements à haut nombre de Reynolds : la viscosité ne parvenant pas à diffuser efficacement la quantité de mouvement, l'écoulement présente un caractère tourbillonnaire et imprévisible, sur une large gamme d'échelles de longueur et de temps. Dans un écoulement turbulent, il existe ainsi typiquement un grand nombre d'échelles entre l'échelle d'injection de l'énergie et l'échelle de dissipation. Il n'y a pas de valeur universelle du Reynolds pour lequel un écoulement devient turbulent : la valeur exacte dépend de l'écoulement considéré. D'ailleurs, la définition même de l'échelle à laquelle le nombre de Reynolds est calculée reste arbitraire : par exemple, si on considère un écoulement dans une conduite cylindrique, il peut tout aussi bien s'agir du rayon que du diamètre de la conduite. Malgré cela, on considère généralement que la transition vers la turbulence s'effectue autour d'un nombre de Reynolds de l'ordre de quelques milliers. À l'inverse, lorsque le nombre de Reynolds est suffisamment faible (typiquement de l'ordre de la centaine ou moins), l'écoulement est dit laminaire : il est alors stable et prévisible. Entre ces deux régimes, on observe généralement le développement d'instabilités (comme celles de l'écoulement de Taylor-Couette).

La turbulence est ainsi caractérisée par des fluctuations difficilement prévisibles, à la fois en espace et en temps, du champ de vitesse (et de pression) du fluide. Une

des approches possibles pour traiter un tel problème est l'approche statistique : on ne s'intéresse qu'à des valeurs moyennes d'ensemble, autrement dit la moyenne d'une variable pour un grand nombre de réalisations du même écoulement. Dans les faits, on utilisera souvent l'hypothèse d'ergodicité, autrement dit que cette moyenne d'ensemble peut être remplacée par une moyenne temporelle sur une durée plus grande que le temps caractéristique des fluctuations, mais plus courte que le temps caractéristique d'instationnarité (à grande échelle) de l'écoulement. Dans l'approche statistique, on réalise une décomposition appelée "décomposition de Reynolds" pour chaque variable d'intérêt, qu'on écrit comme la somme d'une valeur moyenne et d'une fluctuation de valeur moyenne nulle. Par exemple, la composante v_i de la vitesse au point r et à l'instant t s'écrit :

$$v_i(\mathbf{r}, t) = \bar{v}_i(\mathbf{r}, t) + v'_i(\mathbf{r}, t) \quad (1.14)$$

où \bar{v}_i désigne la valeur moyenne et v'_i les fluctuations. Par soucis de simplicité, on se contentera d'écrire ces grandeurs directement, sans les arguments (\mathbf{r}, t) .

On peut alors obtenir l'équation du mouvement pour une composante moyenne \bar{v}_i de la vitesse, appelée équation de Reynolds, en moyennant l'équation de Navier-Stokes (1.2) :

$$\rho \frac{\partial \bar{v}_i}{\partial t} + \rho \bar{v}_j \partial_j \bar{v}_i + \overline{\rho v'_j \partial_j v'_i} = -\partial_i \bar{p} + \rho f_i + \eta \partial_j^2 \bar{v}_i \quad (1.15)$$

où ∂_i et ∂_i^2 désignent la dérivée partielle par rapport à la coordonnée i , respectivement d'ordre 1 et d'ordre 2. On notera la sommation implicite d'Einstein sur la coordonnée j . Cette équation de Reynolds ne diffère de celle qu'on obtiendrait en appliquant Navier-Stokes à la vitesse moyenne \bar{v}_i que par le terme croisé sur les fluctuations $\overline{\rho v'_j \partial_j v'_i}$. En utilisant également l'équation de conservation de la masse, valable pour les valeurs moyennes comme pour les fluctuations, ce terme se réécrit $\rho \partial_j (\overline{v'_i v'_j})$ et l'équation de Reynolds donne :

$$\rho \frac{\partial \bar{v}_i}{\partial t} = \partial_j \left(-\bar{p} \delta_{ij} + \eta (\partial_j \bar{v}_i + \partial_i \bar{v}_j) - \rho \overline{v_i v_j} - \overline{\rho v'_i v'_j} \right) + \rho f_i \quad (1.16)$$

Le terme $\overline{\rho v'_i v'_j}$ correspond à la composante i, j d'un tenseur appelé tenseur de Reynolds. La somme de ces 3 termes (pour chaque valeur de j) constitue la seule différence par rapport à l'étude de la quantité de mouvement dans les écoulements laminaires. On dit ainsi que le tenseur de Reynolds est à l'origine du transport "turbulent" de quantité de mouvement. En particulier, ses composantes non-diagonales ($i \neq j$) correspondent à des contraintes de cisaillement qui favorisent l'apparition de nouveaux mouvements de rotation et donc de tourbillons dans le champ de vitesse.

1.3.3 Turbulence homogène et isotrope : la cascade de Kolmogorov

On décrit généralement ces tourbillons du champ de vitesse avec le concept de cascade d'énergie de Richardson. Celle-ci décrit la turbulence comme une multitude de tourbillons de tailles différentes qui transportent l'énergie. Dans le cas homogène, isotrope et à trois dimensions, l'énergie est transférée depuis les grandes échelles jusqu'aux petites échelles, où elle est alors dissipée sous forme de chaleur par viscosité (figure 1.3). Cette gamme d'échelle se décompose en 3 parties :

- les grandes échelles, où les grands tourbillons sont caractérisés par la géométrie de l'écoulement et porteurs de l'énergie d'injection, on parle ainsi d'échelle d'injection ;
- les échelles intermédiaires, qui constituent la gamme inertielle, où l'énergie est essentiellement transférée aux plus petites échelles et la dissipation visqueuse négligeable ;
- et enfin, les petites échelles où a lieu la dissipation sous forme de chaleur par viscosité, on parle ainsi d'échelle de dissipation.

Le nombre de Reynolds basé sur ces différentes échelles (et les vitesses caractéristiques associées) varie donc d'une très grande valeur (échelle d'injection et échelles intermédiaires), jusqu'à une valeur de l'ordre de l'unité pour l'échelle de dissipation.

Cette cascade d'énergie est également appelée cascade de Kolmogorov, qui en donna les lois d'échelles générales par analyse dimensionnelle. Nous exposerons ici succinctement ses hypothèses et résultats. On suppose :

- d'une part, que l'écoulement et donc le processus de cascade sont statistiquement stationnaires ;
- et d'autre part, que le transfert d'énergie se fait de proche en proche, c'est-à-dire que les tourbillons d'une certaine taille ne reçoivent d'énergie que de ceux de taille immédiatement supérieure et ne la transfèrent qu'à ceux de taille immédiatement inférieure. Ainsi, on suppose que la dynamique des tourbillons dans la gamme inertielle est indépendante à la fois des grandeurs globales de l'écoulement (grands tourbillons porteurs de l'énergie d'injection) et également de la viscosité (petits tourbillons à l'échelle de dissipation). De la même manière, la dynamique des petits tourbillons à l'échelle de dissipation est indépendante des grandeurs globales de l'écoulement et des tourbillons intermédiaires de la gamme inertielle.

On pose L l'échelle d'injection, qui correspond à la taille caractéristique des plus grands tourbillons, et v_L la vitesse caractéristique associée. Pour la gamme inertielle, on note l la taille caractéristique et v_l la vitesse caractéristique des tourbillons, et enfin, on utilise la notation η_K pour l'échelle de dissipation, aussi appelée longueur de Kolmogorov et v_{η_k} pour la vitesse caractéristique associée, appelée vitesse de Kolmogorov. On

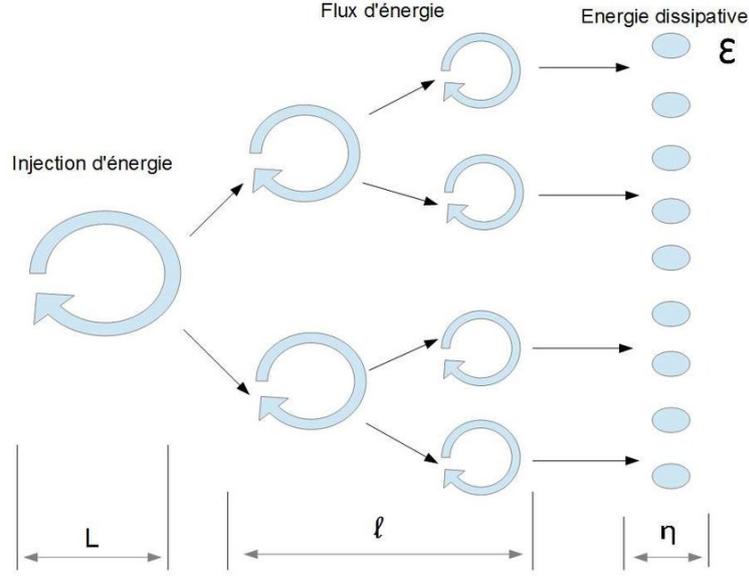


FIGURE 1.3 – Illustration du principe de la cascade de Richardson. L'énergie est injectée à l'échelle L , définie par la géométrie de l'écoulement, puis transférée de proche en proche à des tourbillons de taille inférieure l . Arrivée à l'échelle de dissipation (notée η ici), elle est dissipée sous forme de chaleur par viscosité. Image directement tirée de Derot (2014) [28].

s'intéresse à ε_L le taux d'injection d'énergie cinétique massique dans les grands tourbillons (par l'écoulement moyen) et à ε_l le taux de transfert d'énergie cinétique massique aux tourbillons de taille inférieure dans la gamme inertielle. D'après la première hypothèse (stationnarité), le taux de transfert d'énergie ε_l est forcément le même à toutes les échelles, sinon il y aurait accumulation d'énergie à une échelle. Pour la même raison, ce taux de transfert est nécessairement égal au taux d'injection d'énergie cinétique massique injectée ε_L , mais également au taux de dissipation d'énergie cinétique par viscosité sous forme de chaleur ε (dissipation qui s'effectue essentiellement à l'échelle de Kolmogorov). On a donc :

$$\varepsilon_L = \varepsilon_l = \varepsilon \quad (1.17)$$

Ces taux d'injection, de transfert et de dissipation peuvent s'exprimer en fonction des grandeurs caractéristiques de chaque échelle. En effet, le temps t_L mis par les plus grands tourbillons pour transférer leur énergie (autrement dit, leur durée de vie) est donné par $t_L \propto L/v_L$. D'après la seconde hypothèse, la durée de vie t_l d'un tourbillon de la gamme inertielle ne dépend que des grandeurs caractéristiques de son échelle, à savoir l et v_l , on obtient ainsi $t_l \propto l/v_l$. De même, la durée de vie des tourbillons à l'échelle de Kolmogorov est donnée par $t_{\eta_K} \propto \eta_K/v_{\eta_K}$. L'énergie cinétique massique

étant donnée par $v_l^2/2$, $v_l^2/2$ ou $v_l^2/2$ suivant l'échelle considérée, on obtient :

$$\varepsilon \propto \frac{v_{\eta_K}^3}{\eta_K} \propto \frac{v_l^3}{l} \propto \frac{v_L^3}{L} \quad (1.18)$$

où $Re_L = \frac{v_L L}{\nu}$ est le nombre de Reynolds à grande échelle. Dans la gamme inertielle, on obtient alors que la vitesse caractéristique varie comme :

$$v_l \propto l^{1/3} \quad (1.19)$$

et le gradient de vitesse caractéristique comme :

$$\frac{\partial v_l}{\partial l} \propto l^{-2/3} \quad (1.20)$$

Ainsi, plus l'échelle considérée est petite, plus la vitesse caractéristique associée est faible, mais plus le gradient est élevé. Ceci est cohérent avec le fait que la dissipation, qui dépend du tenseur des taux de déformation et donc des gradients de vitesse, est négligeable à grande échelle, et prépondérante à petite échelle. Tout cela découle du fait que le terme de frottements visqueux est le plus dérivé spatialement dans l'équation de Navier-Stokes.

Enfin, à l'échelle de Kolmogorov, le taux de dissipation est donné à la fois par $\varepsilon \propto v_{\eta_K}^3/\eta_K$ et par son expression générale (1.6), qui peut alors être approximée par $\varepsilon \propto \nu (v_{\eta_K}/\eta_K)^2$, car η_K est la plus petite échelle caractéristique du champ de vitesse. En égalisant ces deux expressions, on obtient les expressions de la longueur de Kolmogorov et la vitesse de Kolmogorov :

$$\eta_K = \nu^{3/4} \varepsilon^{-1/4} = L Re_L^{-3/4} \quad (1.21)$$

$$v_{\eta_K} = (\nu \varepsilon)^{1/4} = \frac{\nu}{L} Re_L^{3/4} \quad (1.22)$$

On notera que la longueur et la vitesse de Kolmogorov ne sont définies qu'à une constante près, et ne correspondent donc qu'à des ordres de grandeur. On retrouve d'ailleurs le fait que Re_{η_K} , le nombre de Reynolds à l'échelle de Kolmogorov, est d'ordre 1.

Une conséquence importante de ces ordres de grandeur est le fait que la plus petite échelle caractéristique du champ de vitesse, la longueur de Kolmogorov η_K , varie comme $L Re_L^{-3/4}$. Ainsi, à grande échelle L fixée, plus le nombre de Reynolds est élevé, autrement dit plus l'écoulement est turbulent, plus la résolution nécessaire expérimentalement pour déterminer correctement le champ des vitesses ou des gradients de vitesse est importante. Numériquement, le nombre de mailles nécessaires est de l'ordre de $(L/\eta_K)^3 = Re_L^{9/4}$, une valeur vite colossale. C'est cela qui explique la difficulté à obtenir, expérimentalement comme numériquement, des champs de vitesse suffisamment

bien résolus.

Enfin, un autre résultat remarquable de la théorie de Kolmogorov concerne la densité spectrale d'énergie cinétique massique $E(k)$, où k désigne la norme du vecteur d'onde dans la décomposition de Fourier spatiale. L'énergie cinétique massique des tourbillons de taille l dans la gamme inertielle étant proportionnelle à v_l^2 et donc à $(\varepsilon l)^{2/3}$, sa densité spectrale $E(k)$ (avec $k = 2\pi/l$) vérifie :

$$E(k)\Delta k \propto \varepsilon^{2/3} k^{-2/3} \quad (1.23)$$

où Δk correspond à la gamme de vecteurs d'onde qui correspondent à l'échelle l . De par la nature logarithmique naturellement choisie pour séparer les tailles de tourbillon (typiquement un facteur 2 ou 10 entre chaque échelle l de la gamme inertielle), cette gamme Δk est de l'ordre de k . On obtient alors finalement :

$$E(k) = K_0 \varepsilon^{2/3} k^{-5/3} \quad (1.24)$$

où K_0 est une constante indépendante de toutes les grandeurs du problème et donc universelle, appelée constante de Kolmogorov, établie expérimentalement à 1.45 environ.

1.3.4 Turbulence de paroi

La théorie de Kolmogorov a permis de grandes avancées dans la compréhension de la turbulence homogène et isotrope, qui n'est malheureusement pas toujours une approximation pertinente. En particulier, dans l'étude des écoulements turbulents près d'une paroi solide (turbulence dite "de paroi", ou "*wall-bounded turbulence*" en anglais), l'hypothèse d'isotropie tombe en défaut et d'autres grandeurs entrent en jeu, comme la distance à la paroi. L'étude du taux de dissipation dans ces écoulements est néanmoins cruciale, celui-ci étant par exemple directement lié à la traînée aérodynamique ou hydrodynamique sur les corps en mouvement, ou aux pertes de charge dans les conduites.

Pour illustrer cela, considérons un écoulement turbulent dans la direction Ox entre deux plaques parallèles selon cette même direction, distantes d'une longueur $2h$ selon Oy (voir figure 1.4).

On peut supposer que la composante longitudinale $\overline{v_x}$ et les moments des composantes des fluctuations de vitesse qui apparaissent dans l'équation de Reynolds (1.16) ne sont fonction que de y et pas de x , et que la composante $\overline{v_y}$ de la vitesse moyenne est nulle. On obtient ainsi pour l'équation selon Ox :

$$\frac{\partial}{\partial y} \left(\eta \frac{\partial \overline{v_x}}{\partial y} - \overline{\rho v'_x v'_y} \right) - \frac{\partial \overline{p}}{\partial x} = 0 \quad (1.25)$$

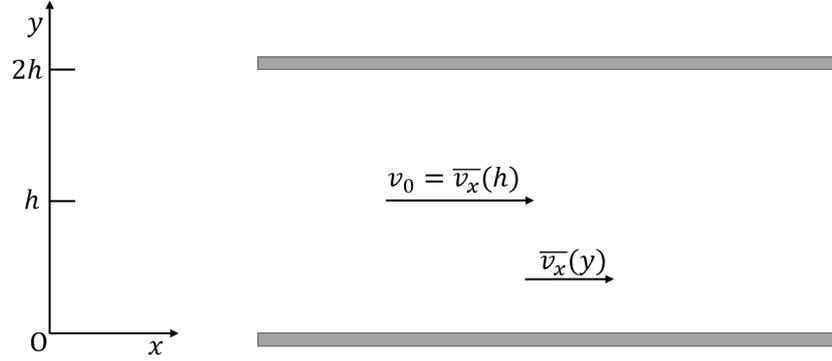


FIGURE 1.4 – Schéma d’écoulement turbulent entre deux plaques parallèles, distantes d’une longueur $2h$. En régime établi, les quantités moyennes (hors pression), telle que la vitesse moyenne selon Ox \bar{v}_x , dépendent de y mais pas de x . $v_0 = \bar{v}_x(h)$ correspond à la vitesse maximale dans la direction Ox , atteinte au centre de l’écoulement.

et selon Oy :

$$\frac{\partial}{\partial y} (\rho \overline{v_y'^2}) - \frac{\partial \bar{p}}{\partial y} = 0 \quad (1.26)$$

Cette dernière équation permet d’établir que le profil de pression moyen varie comme $\bar{p} = p_0 - \rho \overline{v_y'^2}$ où p_0 désigne la pression à la paroi $y = 0$. En dérivant selon x cette expression, on obtient $\partial \bar{p} / \partial x = \partial p_0 / \partial x$, qui est donc une constante par rapport à y . En intégrant par rapport à y l’expression (1.25), on en déduit finalement :

$$\eta \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y} - \rho \overline{v_x' v_y'} = \tau_w + \frac{\partial \bar{p}}{\partial x} y \quad (1.27)$$

où τ_w est la contrainte à la paroi (en Pa), qui se résume aux contraintes visqueuses car les fluctuations turbulentes s’y annulent :

$$\tau_w \equiv \eta \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y} (y = 0) \quad (1.28)$$

Cette contrainte à la paroi, autrement dit la pression exercée par le fluide sur la paroi, est caractéristique de l’intensité de la turbulence de paroi. On notera qu’elle est ici également donnée par $\tau_w = \eta \Gamma(y = 0)$. De manière équivalente, on définit v^* , la vitesse de frottement (en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) par :

$$v^* \equiv \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho}} \equiv \sqrt{\nu \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y} (y = 0)} \quad (1.29)$$

On notera que celle-ci est également donnée par $v^* = \sqrt{\nu \Gamma(y = 0)}$.

Dans le plan $y = h$, parallèle aux plaques et à mi-distance de celles-ci, l'équation (1.27) donne par symétrie $\tau_w + \frac{\partial \bar{p}}{\partial x} h = 0$. On peut ainsi éliminer le gradient de pression de l'expression (1.27) (celui-ci étant indépendant de y), pour obtenir, en divisant le tout par ρ :

$$\nu \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y} - \overline{v'_x v'_y} = v^{*2} \frac{h - y}{h} \quad (1.30)$$

Il n'existe donc pas une seule mais deux échelles caractéristiques du problème : la mi-distance entre les plaques h (échelle globale) et la longueur caractéristique locale à la paroi δ_ν :

$$\delta_\nu = \nu / v^* \quad (1.31)$$

qui correspond à l'épaisseur de la sous-couche visqueuse. Celle-ci est définie comme la couche où le transport de quantité de mouvement se fait principalement par diffusion visqueuse (avec le terme $\nu \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y}$), alors qu'au-delà, il se fait essentiellement par les fluctuations turbulentes (terme $\overline{v'_x v'_y}$).

On notera y^+ la distance à la paroi adimensionnée par ν / v^* :

$$y^+ = \frac{y}{\nu / v^*} \quad (1.32)$$

et Y la distance à la paroi adimensionnée par h :

$$Y = \frac{y}{h} \quad (1.33)$$

Pour $y^+ \ll 1$, l'expression (1.30) donne $\nu \frac{\partial \bar{v}_x}{\partial y} \approx v^{*2}$, soit par intégration par rapport à y :

$$\frac{\bar{v}_x}{v^*} = y^+ \quad (1.34)$$

Le profil de vitesse est donc linéaire très proche de la paroi⁴. À l'interface de la sous-couche visqueuse ($y^+ \approx 1$), la vitesse \bar{v}_x devient de l'ordre de v^* et le terme des fluctuations turbulentes $\overline{v'_x v'_y}$ devient de l'ordre de v^{*2} . Ainsi, proche de la paroi ($y \ll h$ i.e. $Y \ll 1$), le profil de vitesse ne dépend pas de la structure globale de l'écoulement mais surtout de la viscosité : la variable y^+ est la plus pertinente. L'équation (1.30) adimensionnée s'écrit alors :

$$\frac{\partial \left(\frac{\bar{v}_x}{v^*} \right)}{\partial y^+} - \frac{\overline{v'_x v'_y}}{v^{*2}} = -y^+ Re^{*-1} + 1 \quad (1.35)$$

et à l'inverse, suffisamment loin de celle-ci, ($y \gg \nu / v^*$ i.e. $y^* \gg 1$), le transport par viscosité est négligeable et la variable Y est la plus pertinente, on obtient alors :

$$Re^{*-1} \frac{\partial \left(\frac{\bar{v}_x}{v^*} \right)}{\partial Y} - \frac{\overline{v'_x v'_y}}{v^{*2}} = -Y + 1 \quad (1.36)$$

4. Expérimentalement, ce profil linéaire s'avère en fait également valable bien plus loin de la paroi, jusqu'à $y^+ \approx 5$.

où Re^* est un nombre de Reynolds défini par le rapport entre l'échelle globale h et l'échelle locale (l'épaisseur de la sous-couche visqueuse) δ_ν :

$$Re^* \equiv \frac{h}{\delta_\nu} \equiv \frac{v^* h}{\nu} \quad (1.37)$$

Ce nombre de Reynolds traduit ainsi la part de l'écoulement (en termes d'épaisseur transverse) où le transport de quantité de mouvement se fait essentiellement par les fluctuations turbulentes et où la viscosité peut alors être négligée. Pour un écoulement laminaire, la viscosité jouant un rôle important quelque soit la valeur de y , la distinction entre h et δ_ν n'a pas vraiment de sens : on aurait alors $Re^* \approx 1$.

On se place désormais à $Re^* \gg 1$, autrement dit un régime de turbulence développée, pour lequel il y a une forte séparation d'échelles entre h et δ_ν . Il existe alors une sous-couche dite inertielle, définie par :

$$\delta_\nu \ll y \ll h \quad (1.38)$$

autrement dit $y^+ \gg 1$ et $Y \ll 1$. Dans cette région, les termes présentant le facteur Re^{*-1} dans les équations (1.35) et (1.36) sont donc négligeables. En utilisant la méthode de raccordement asymptotique entre ces deux équations, on peut alors montrer que le profil de vitesse est logarithmique selon y :

$$\overline{v_x}(y) = v^* \left(\frac{1}{\kappa} \ln \frac{y v^*}{\nu} + C_1 \right) \quad (1.39)$$

ou encore

$$\overline{v_x}(y) = v_0 + v^* \left(\frac{1}{\kappa} \ln \frac{y}{h} + C_2 \right) \quad (1.40)$$

où C_1 , C_2 et κ désignent des constantes et v_0 la vitesse (maximale) dans le plan médian $y = h$. Cette variation logarithmique, connue sous le nom de "loi du mur", constitue le plus fort résultat de la turbulence de paroi, d'autant qu'elle reste a priori valable dans tout type d'écoulement turbulent en contact avec une paroi : entre deux plaques comme présenté ici, mais aussi dans un tube circulaire ou dans un écoulement de couche limite près d'une paroi. La demi-distance entre les plaques h est alors remplacée par le diamètre du tube ou par l'épaisseur de la couche limite. Ce caractère universel traduit le fait que dans cette sous-couche inertielle, la dynamique ne dépend ni de la géométrie globale de l'écoulement ni de la géométrie des parois (pour peu que celles-ci soient lisses à l'échelle de la sous-couche visqueuse). Enfin, la combinaison des équations (1.39) et (1.40) donne l'expression de la vitesse maximale en fonction de v^* et Re^* :

$$v_0 = v^* \left(\frac{1}{\kappa} \ln Re^* + C_1 - C_2 \right) \quad (1.41)$$

Pour conclure cette introduction à la turbulence, on notera qu'il existe un fort parallèle entre la turbulence de paroi et la turbulence homogène et isotrope. En effet,

l'écoulement aux grandes échelles en turbulence homogène et isotrope se rapproche de l'écoulement à grande distance de la paroi dans la turbulence de paroi : dans les deux cas, la géométrie globale joue un rôle crucial. À l'inverse, la dissipation visqueuse domine pour les tourbillons de taille inférieure ou égale à la longueur de Kolmogorov, comme dans la sous-couche visqueuse. Enfin, lorsque le nombre de Reynolds pertinent (Re_L dans la turbulence homogène et isotrope, Re^* dans celle de paroi) est suffisamment grand, il existe une zone ou une gamme inertielle où des lois universelles existent (pour la densité spectrale $E(k)$ dans la turbulence homogène et isotrope, et pour le profil de vitesse $\overline{v_x}(y)$ dans celle de paroi).

Par ailleurs, au delà de ces cadres théoriques qui décrivent bien les grandeurs moyennes en jeu, l'étude des fluctuations spatiales et temporelles (liées aux concepts d'intermittence et de structure cohérente) de toutes ces quantités, et en particulier du taux de dissipation, reste un domaine de recherche très actif. C'est dans ce contexte que s'inscrit l'intérêt d'une mesure spatio-temporelle du taux de dissipation par *Diffusing-Wave Spectroscopy*.

Chapitre 2

Diffusion élastique de la lumière

On présentera dans ce chapitre les notions et grandeurs clés dans l'étude de la diffusion élastique de la lumière, essentielles à la compréhension de la partie théorique de ce manuscrit. On partira du cas simple de la diffusion d'une onde plane incidente sur une seule particule, avant de généraliser à un milieu présentant une densité de particules. Enfin, on présentera la théorie du transfert radiatif, ou théorie du transport incohérent de la lumière, qui décrit le transport de l'énergie lumineuse par une équation analogue à celle de Boltzmann, qui, sous certaines conditions, se simplifie en une équation de diffusion. On explicitera en particulier le régime de diffusion multiple de la lumière et la notion de libre parcours moyen de transport.

On notera l'ambiguïté du terme diffusion en français, qui renvoie d'une part au phénomène de rayonnement de la lumière par des particules soumises à un champ incident (*scattering* en anglais) et d'autre part à la diffusion de la matière, de la température ou de tout autre quantité, y compris l'intensité lumineuse, qui obéirait à une équation de diffusion (*diffusion* en anglais).

La majeure partie du contenu de ce chapitre suivra le déroulé de l'ouvrage de référence d'Ishimaru "Wave Propagation and Scattering in Random Media" (1968) [29], qu'on pourra consulter pour plus de détails. On pourra également se référer à la revue de van Rossum et Nieuwenhuizen "Multiple scattering of classical waves : microscopy, mesoscopy, and diffusion" (1991) [30] sur les liens entre description microscopique du champ électromagnétique, théorie du transfert radiatif et approximation de diffusion.

2.1 Diffusion par une seule particule

On notera $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ le champ électrique complexe qui décrit la lumière au point \mathbf{r} et à l'instant t . L'intensité lumineuse en ce point et à cet instant est donnée par le carré de la norme du champ $I(\mathbf{r}, t) \equiv \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, t) \equiv |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2$.

2.1.1 Champ incident

On considère un milieu linéaire, homogène et isotrope dans lequel se propage un champ électrique incident, noté $\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t)$. Celui-ci obéit aux équations de Maxwell dans la matière, de telle sorte que ses composantes de Fourier temporelles $\tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) e^{i\omega t} dt$ sont solutions de l'équation d'Helmholtz suivante :

$$\Delta \tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}, \omega) + n^2(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (2.1)$$

où Δ correspond à l'opérateur laplacien vectoriel, n à l'indice de réfraction du milieu, a priori dispersif, et c à la vitesse de la lumière dans le vide. Si on considère des ondes planes linéairement polarisées et se propageant dans une seule direction, les composantes de Fourier s'écrivent alors :

$$\tilde{\mathbf{E}}_i(\mathbf{r}, \omega) = 2\pi E_i e^{i\mathbf{k}_i(\omega) \cdot \mathbf{r}} \hat{\mathbf{e}} \quad (2.2)$$

où $\hat{\mathbf{e}}$ est un vecteur unitaire qui correspond à la polarisation, $2\pi E_i$ désigne l'amplitude de la composante et $\mathbf{k}_i(\omega)$ le vecteur d'onde (donnant la direction de propagation), dont la norme $k_i(\omega)$ vérifie la relation de dispersion $k_i^2(\omega) = n^2(\omega) \frac{\omega^2}{c^2}$. Dans toute la suite, on ne considérera que des ondes monochromatiques à la fréquence ω (on négligera la largeur de bande), de telle sorte que si on note simplement $\mathbf{k}_i \equiv \mathbf{k}_i(\omega)$ et $n \equiv n(\omega)$, le champ incident est donné par :

$$\mathbf{E}_i(\mathbf{r}, t) = E_i e^{i(\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \hat{\mathbf{e}} \quad (2.3)$$

2.1.2 Champ diffusé et sections efficaces

Lorsque cette onde plane monochromatique rencontre une particule, celle-ci rayonne, créant ainsi un champ diffusé tandis que l'onde incidente est partiellement absorbée et partiellement "transmise". Si le milieu est linéaire et le système stationnaire, ce qui est garanti dans notre cas par le fait que la vitesse v du diffuseur est très faible devant la vitesse de la lumière dans le milieu $\frac{c}{n}$, le processus de diffusion est nécessairement élastique, c'est-à-dire que l'onde diffusée reste monochromatique à la même pulsation ω que l'onde incidente. On ne considérera donc dans la suite que la diffusion élastique et on notera simplement k la norme du vecteur d'onde diffusée \mathbf{k}_d : $k_d = k_i = k$. Dans le cas d'une particule sphérique auquel on s'intéresse dans la suite, l'onde diffusée est

décrite par la théorie dite de Mie (dans le cas général, les calculs sont bien plus compliqués, mais l'idée générale reste la même). En dehors de la polarisation, les propriétés de l'onde diffusée ne dépendent que du paramètre de taille ka et du rapport d'indice n_p/n , où a désigne le rayon et n_p l'indice de réfraction de la particule diffusante. Dans l'approximation de champ lointain vis-à-vis de la taille de la particule, c'est-à-dire lorsqu'on se place suffisamment loin pour que les effets de déphasage liés à la taille finie de la particule soient négligeables ($|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p| \gg ka^2$ où \mathbf{r}_p correspond à la position du centre de la particule), l'onde diffusée est sphérique (figure 2.1). Le champ diffusé \mathbf{E}_d est alors donné par :

$$\mathbf{E}_d(\mathbf{r}, t) = \mathbf{f}(\theta) E_i e^{i\mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_p} \frac{e^{i(k|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p| - \omega t)}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p|} \quad (2.4)$$

où θ est l'angle de diffusion, c'est-à-dire l'angle entre le vecteur d'onde incidente \mathbf{k}_i et le vecteur d'onde diffusée $\mathbf{k}_d \propto (\mathbf{r} - \mathbf{r}_p)$ (si on s'intéresse au champ en \mathbf{r}). La quantité $\mathbf{f}(\theta)$, homogène à une longueur, est appelée amplitude de diffusion et décrit l'intensité de la diffusion suivant la direction définie par l'angle θ ¹. Elle donne également la polarisation de l'onde diffusée, en général différente de celle de l'onde incidente.

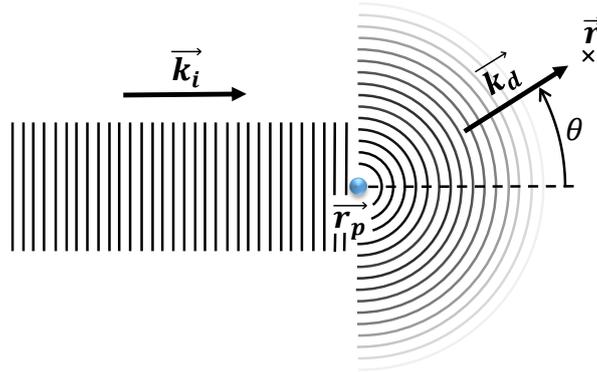


FIGURE 2.1 – Onde plane incidente et onde sphérique diffusée par une particule. Une partie de l'onde incidente est éventuellement absorbée, et une dernière partie est transmise (non représentées ici). L'angle de diffusion θ est l'angle entre le vecteur d'onde incidente et le vecteur d'onde diffusée, qui dépend de la position \mathbf{r} où l'on s'intéresse au champ diffusé et de la position \mathbf{r}_p de la particule. L'intensité correspondante décroît comme le carré de la distance $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p|$.

On définit la section efficace différentielle de diffusion $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ comme la norme au carré

1. Dans la théorie de Mie, la polarisation de l'onde ne joue pas, le problème est ainsi à 2 dimensions. L'amplitude de diffusion est donc de symétrie de révolution autour de l'axe passant par \mathbf{r}_p et de direction \mathbf{k}_i , autrement dit ne dépend que de la colatitude θ .

de l'amplitude de diffusion :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) = |\mathbf{f}(\theta)|^2 \quad (2.5)$$

La section efficace différentielle de diffusion représente la section d'une particule effective, qui diffuserait la totalité de l'onde incidente sur sa section dans la direction définie par l'angle θ (avec un angle solide unitaire). Autrement dit, avec le formalisme quantique, elle est proportionnelle à la densité (sur la sphère unité) de probabilité de diffusion et décrit donc les directions privilégiées de diffusion. On notera que sa notation est impropre dans la mesure où il ne s'agit pas de la dérivée d'une quantité σ . Lorsque la particule est de rayon environ égal ou supérieur à la longueur d'onde, autrement dit pour $ka \geq 1$, on observe un pic de diffusion dans la direction de l'onde incidente (vers "l'avant"). Lorsque $ka \ll 1$, la diffusion reste anisotrope mais cette fois symétrique entre l'avant et l'arrière ($\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) \propto 1 + \cos^2 \theta$) et on parle plutôt de diffusion Rayleigh (figure 2.2).

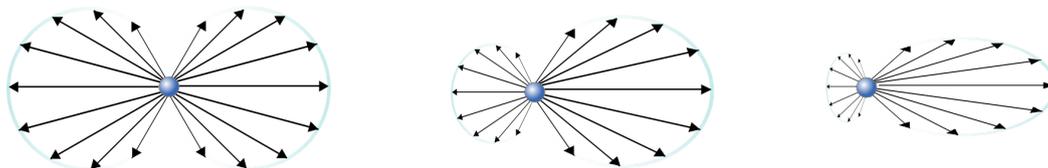


FIGURE 2.2 – Représentation de l'intensité de la diffusion par une particule sphérique en fonction de l'angle de diffusion θ , pour une onde incidente venant de la gauche. Cette intensité est proportionnelle à la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta)$. De gauche à droite, plus le rayon de la particule et donc le paramètre de taille est important, plus la diffusion est piquée vers l'avant. Image directement tirée de Wikipédia, sans modification (https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Mie_scattering.svg par Sharayanan).

La section efficace de diffusion σ_s est définie comme l'intégrale dans toutes les directions de la section efficace différentielle de diffusion :

$$\sigma_s = \int_{4\pi} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) d\Omega \quad (2.6)$$

où $d\Omega = \sin(\theta)d\theta d\varphi$ (avec φ la longitude) et l'intégration se fait sur toute la sphère unité ($0 \leq \theta \leq \pi$ et $0 \leq \varphi \leq 2\pi$). La section efficace de diffusion représente donc la section d'une particule effective qui diffuserait la totalité de l'onde incidente sur sa surface (toutes directions de diffusion confondues). Avec le formalisme quantique, elle est ainsi proportionnelle à la probabilité de diffusion.

On définit de manière analogue la section efficace d'absorption σ_a : c'est la section d'une particule effective qui absorberait l'intégralité de l'onde incidente sur sa section. Enfin, on introduit la section efficace d'extinction (ou d'atténuation, ou encore totale) qui prend en compte à la fois la diffusion et l'absorption : $\sigma_{ext} = \sigma_s + \sigma_a$.

2.1.3 Simplification en champ lointain, vecteur de diffusion

D'après l'expression (2.4), la phase du champ diffusé (en enlevant le terme temporel monochromatique $-i\omega t$) est donnée par :

$$\phi = \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_p + k|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p| \quad (2.7)$$

Cette expression peut se simplifier lorsqu'on se place de nouveau en champ lointain, mais cette fois-ci vis-à-vis des positions possibles de la particule. On considère que la position \mathbf{r}_p de la particule se situe dans un volume de taille caractéristique L et on place l'origine du repère au centre de ce volume. On va alors se restreindre à l'étude du champ diffusé en un point \mathbf{r} tel que :

$$|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p| \gg L \text{ autrement dit } r \gg L \quad (2.8)$$

et

$$r\lambda \gg L^2 \quad (2.9)$$

La condition (2.8) permet d'écrire $\frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p|} \approx \frac{1}{r}$ dans l'amplitude de l'onde sphérique. En revanche, elle ne suffit pas à simplifier l'expression de la phase² : il faut également que la condition (2.9) soit vérifiée. On peut alors écrire $k|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p| \approx k\left(r - \frac{\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}_p}{r}\right)$ et en notant que $k\frac{\mathbf{r}}{r} \approx \mathbf{k}_d$, l'expression de la phase (2.7) se simplifie sous la forme :

$$\phi = \mathbf{k}_i \cdot \mathbf{r}_p + kr - \mathbf{k}_d \cdot \mathbf{r}_p \equiv kr - \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_p \quad (2.10)$$

où \mathbf{q} désigne le vecteur de diffusion défini par :

$$\mathbf{q} \equiv \mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i \quad (2.11)$$

L'expression (2.10) traduit que le champ diffusé par une particule située à l'origine et celui diffusé par une particule située en \mathbf{r}_p sont déphasés de $-\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_p$ (c'est d'ailleurs la seule différence, l'amplitude étant la même). On notera que la norme du vecteur de diffusion est donnée par :

2. En écrivant $|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p| = r \left(1 - 2\frac{\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}_p}{r} + \frac{r_p^2}{r^2}\right)^{1/2} \approx r - \frac{\mathbf{r} \cdot \mathbf{r}_p}{r}$, le terme négligé est en r_p^2/r (soit L^2/r) et représente une différence de marche qui doit être faible devant la longueur d'onde.

$$q = 2k \sin \frac{\theta}{2} \quad (2.12)$$

In fine, l'expression de l'onde diffusée (2.4) se simplifie en :

$$\mathbf{E}_d(\mathbf{r}, t) = \mathbf{f}(\theta) E_i \frac{e^{i(kr - \omega t)}}{r} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_p} \quad (2.13)$$

On n'utilisera pas cette simplification dans la suite de ce chapitre, elle sera en revanche utile dans la description théorique de la DLS pour déterminer la différence de phase (section 3.2.2).

2.2 Diffusion par un ensemble de particules

On considère désormais un milieu présentant un nombre volumique (ou densité, en nombre de particules par unité de volume) n_{vol} de particules identiques, chacune présentant une section efficace différentielle de diffusion $\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta)$, ainsi qu'une section efficace de diffusion σ_s et d'absorption σ_a .

Dans cette section, et dans toute la suite, on s'intéressera souvent au champ issu de plusieurs diffusions successives. On supposera pour cela que le problème de diffusion se répète identiquement à lui-même à chaque diffusion par une particule (avec une nouvelle direction de propagation pour l'onde incidente, déterminée par la position de la particule par rapport à la précédente). Autrement dit, cela nécessite qu'on puisse se ramener à la situation décrite à la section précédente pour chaque particule diffusante sur le "chemin" d'un photon. Cela suppose :

- que l'onde diffusée par une particule, onde sphérique donc, puisse être considérée comme une onde plane lorsqu'elle atteint la prochaine particule,
- que la section efficace de diffusion de chaque particule soit indépendante de la densité de particules, autrement dit qu'à chaque diffusion, les autres particules n'aient pas d'impact sur le processus.

Nous reviendrons sur ces approximations à la fin de la sous-section suivante.

2.2.1 Coefficients d'atténuation et libre parcours moyen

On définit le coefficient d'atténuation par diffusion μ_s du milieu comme le produit de la densité par la section efficace de diffusion : $\mu_s = n_{vol}\sigma_s$. Ce coefficient traduit l'atténuation d'intensité du champ incident à cause de la diffusion dans le milieu : au bout d'une distance d de propagation, le champ transmis (non diffusé) présentera une intensité atténuée d'un facteur $e^{-\mu_s d}$ à cause de la diffusion. De manière analogue, le

coefficient d'atténuation par absorption μ_a est donné par : $\mu_a = n_{vol}\sigma_a$.

On définit également le libre parcours moyen l comme l'inverse du coefficient d'atténuation par diffusion :

$$l = \frac{1}{n_{vol}\sigma_s} \quad (2.14)$$

Ce libre parcours moyen correspond donc à la distance nécessaire de propagation dans le milieu pour que l'intensité du champ transmis (non diffusé) soit atténuée d'un facteur e à cause de la diffusion. Le terme libre parcours moyen vient du fait que si on se place du point de vue corpusculaire de la lumière, l correspond à la distance moyenne entre deux événements de diffusion. De manière encore une fois analogue, la longueur d'atténuation par absorption l_a est donnée par $l_a = \frac{1}{n_{vol}\sigma_a}$.

Avec ces définitions, il est possible de quantifier les deux approximations faites précédemment. Pour que l'onde diffusée sphérique soit perçue par la particule suivante comme une onde plane, il suffit que l'approximation de champ lointain soit valide à une distance égale au libre parcours moyen, autrement dit :

$$l \gg ka^2 \quad (2.15)$$

Cette approximation s'avère largement valide dans nos expériences (voir chapitre 5).

En ce qui concerne l'influence des autres particules sur le processus de diffusion d'une particule, on notera que l'expression (2.14) suppose que la section efficace de diffusion ne dépend pas de la concentration. C'est le cas pour des particules dispersées dans un fluide avec un nombre volumique suffisamment faible, mais lorsque la concentration augmente, le milieu ne peut plus être vu simplement comme homogène avec une seule particule diffusante à chaque événement de diffusion. Ainsi, lorsque la fraction volumique de particules dans le milieu, donnée par $\frac{4}{3}\pi a^3 n_{vol}$, atteint de l'ordre de 20%, la section efficace de diffusion ne correspond plus à celle d'une seule particule. On évitera alors d'extrapoler linéairement la valeur du libre parcours moyen à partir de mesures à faible concentration, et on préférera mesurer directement la valeur du libre parcours moyen à la concentration d'intérêt.

2.2.2 Diffusion simple et diffusion multiple

Lorsque l'intensité mesurée par un détecteur correspond à un champ (ou une somme de champs) diffusé une seule fois, on parle d'approximation de diffusion simple. Les calculs de champ et d'intensité sont alors particulièrement simples. Cette approximation est valide lorsque la distance typique sur laquelle s'est propagée le champ incident est inférieure ou de l'ordre du libre parcours moyen. En particulier, si on s'intéresse à l'intensité diffusée par un échantillon cubique de côté L , l'approximation de diffusion simple

correspond à $L \leq l$. On notera que dans ce cas, le champ incident transmis et non diffusé peut être particulièrement important.

A l'inverse, lorsque l'intensité mesurée correspond à un champ ayant subi plusieurs événements de diffusion, on parle de diffusion multiple. Dans l'exemple précédent, cela correspond donc à $L > l$. Les calculs de champ ou d'intensité peuvent alors être particulièrement complexes, en particulier lorsque le champ est diffusé un petit nombre de fois. Si on considère un grand nombre d'événements de diffusion, qui se traduit dans l'exemple précédent par $L \gg l$, le problème peut se simplifier en utilisant l'approximation de diffusion, décrite dans la section suivante.

2.3 Théorie du transfert radiatif et approximation de diffusion

2.3.1 Définition des grandeurs et équation de transport

Si la description du champ diffusé faite dans les sections précédentes est exacte, elle est néanmoins extrêmement lourde pour décrire la lumière multiples fois diffusée. De plus, elle nécessite de connaître la position exacte de chacune des particules diffusantes. Lorsqu'on s'intéresse essentiellement à l'intensité à des échelles macroscopiques, autrement dit sur des échelles plus grandes que le libre parcours moyen, une autre approche s'avère nécessaire. L'une d'entre elle est la théorie dite du transport incohérent ou du transfert radiatif, qui repose sur l'équation du transfert radiatif, équivalente de l'équation de Boltzmann pour le transport de l'énergie lumineuse dans un milieu contenant des particules diffusantes. Cette théorie permet de décrire le transport de la puissance lumineuse sous plusieurs approximations. En particulier, elle néglige les effets d'interférence : les intensités s'additionnent sans tenir compte des éventuels déphasages des champs. Les grandeurs déterminées correspondent en fait à des moyennes spatiales sur une échelle de l'ordre du libre parcours moyen. On ne peut donc pas non plus décrire dans ce cadre les effets de localisation ou effets cohérents, qui apparaissent lorsque le libre parcours moyen est suffisamment proche de la longueur d'onde (ce qui les rend d'ailleurs particulièrement difficile à observer expérimentalement). On supposera donc dans la suite qu'on se place dans l'approximation dite de faible diffusion :

$$\lambda \ll l \tag{2.16}$$

Cette approximation s'avère largement vérifiée expérimentalement (voir section 5.4). Enfin, on suivra le traitement usuel qui ne prend pas en compte la polarisation du champ électromagnétique.

La grandeur clé de la théorie du transport de la lumière est la luminance énergétique, ou radiance, notée L_e . Elle correspond à la puissance, par unité de surface, du rayonnement passant (et émis) par une surface et dans une direction donnée, par unité d'angle solide (figure 2.3). Elle s'exprime donc en $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{sr}^{-1}$. C'est la généralisation de la luminance à tout type de rayonnement (visible ou non) et on emploiera par la suite le terme luminance par soucis de simplification. On notera que cette quantité et la théorie du transfert radiatif en général sont reliées à la description microscopique du champ électromagnétique par le vecteur de Poynting. En effet, la luminance à la position \mathbf{r} , dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$ et à l'instant t correspond à une moyenne statistique de la norme du vecteur de Poynting lorsqu'il pointe dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$, à la même position et au même instant. La puissance dP passant (et émise) par la surface dS_0 (centrée en \mathbf{r} et de normale $\hat{\mathbf{s}}_0$), et dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$ est donc donnée par :

$$dP = L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) \cos(\psi) dS_0 d\Omega \quad (2.17)$$

où $\psi = \arccos(\hat{\mathbf{s}} \cdot \hat{\mathbf{s}}_0)$ désigne l'angle (non orienté, compris entre 0 et π) entre $\hat{\mathbf{s}}_0$ et $\hat{\mathbf{s}}$.

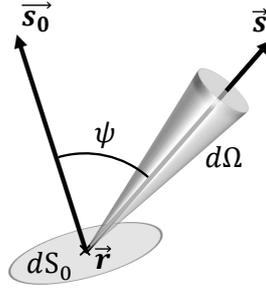


FIGURE 2.3 – Notations utilisées en théorie du transfert radiatif.

La luminance obéit à l'équation du transfert radiatif :

$$\begin{aligned} \frac{n}{c} \frac{\partial L_e}{\partial t}(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) + \nabla \cdot (L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) \hat{\mathbf{s}}) = & -(\mu_s + \mu_a) L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) \\ & + n_{vol} \int_{4\pi} \frac{d\sigma}{d\Omega}(\psi) L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}_0, t) d\Omega_0 + Q(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) \end{aligned} \quad (2.18)$$

où la direction $\hat{\mathbf{s}}$ (resp. $\hat{\mathbf{s}}_0$) est donnée par la colatitude θ (resp. θ_0) et la longitude φ (resp. φ_0), d'où $d\Omega_0 = \sin(\theta_0) d\theta_0 d\varphi_0$. $Q(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t)$ désigne la source, c'est-à-dire la puissance injectée dans une unité de volume centrée en \mathbf{r} et dirigée dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$ (avec un angle solide unitaire), à l'instant t . Cette équation correspond à un bilan d'énergie qui traduit que, pour une direction donnée $\hat{\mathbf{s}}$, la variation spatio-temporelle de la luminance est due à un terme de perte et un terme de gain. Le membre de gauche correspond à la variation de la luminance dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$ par unité de longueur, donnée par :

$\frac{1}{dl} (L_e(\mathbf{r} + dl\hat{\mathbf{s}}, \hat{\mathbf{s}}, t + dt) - L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t))$, où dl est la longueur infinitésimale et $dt = \frac{n}{c}dl$ la durée infinitésimale de transport correspondante. Le premier terme du membre de droite correspond au terme de perte : c'est la part de la luminance initialement dirigée dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$ qui est soit absorbée, soit diffusée dans d'autres directions. Enfin, les deux derniers termes correspondent au terme de gain : d'une part la luminance initialement dirigée dans d'autres directions qui est diffusée dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$, et d'autre part un terme source.

En intégrant la luminance sur toutes les directions $\hat{\mathbf{s}}$, on obtient l'irradiance (aussi appelée taux de fluence ou encore éclaircissement énergétique) $\Phi(\mathbf{r}, t)$, qui correspond donc à la puissance du rayonnement par unité de surface. De même, si on multiplie d'abord la luminance par la direction $\hat{\mathbf{s}}$ puis qu'on intègre sur toutes les directions, on définit le vecteur densité de flux $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$:

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = \int_{4\pi} L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) d\Omega \quad (2.19)$$

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \int_{4\pi} L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) \hat{\mathbf{s}} d\Omega \quad (2.20)$$

L'intégration dans toutes les directions de l'équation du transfert radiatif s'exprime alors en fonction de la densité de flux et de l'irradiance :

$$\frac{n}{c} \frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = -\mu_a \Phi(\mathbf{r}, t) + S(\mathbf{r}, t) \quad (2.21)$$

où $S = \int_{4\pi} Q(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) d\Omega$ correspond au terme source intégré dans toutes les directions.

2.3.2 Approximation de diffusion et libre parcours moyen de transport

L'approximation de diffusion consiste à supposer que le libre parcours moyen est très faible devant la longueur d'atténuation par absorption et devant la longueur caractéristique de la géométrie du problème L (par exemple, la taille de l'échantillon), et que le terme source Q est isotrope (ou alors qu'on se place loin de la source). En plus de l'approximation de champ lointain (2.15) et l'approximation de faible diffusion (2.16), on a donc :

$$l \ll l_a, L \quad (2.22)$$

La luminance $L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t)$ est alors essentiellement isotrope³, avec une faible contribution directionnelle, proportionnelle à la densité de flux $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ dans la direction $\hat{\mathbf{s}}$:

$$L_e(\mathbf{r}, \hat{\mathbf{s}}, t) = \frac{1}{4\pi}\Phi(\mathbf{r}, t) + \frac{3}{4\pi}\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \cdot \hat{\mathbf{s}} \quad (2.23)$$

En substituant l'expression (2.23) dans l'équation du transfert radiatif (2.18), puis en multipliant par $\hat{\mathbf{s}}$ avant d'intégrer dans toutes les directions, on obtient une nouvelle relation entre la densité de flux et l'irradiance⁴ :

$$\frac{n}{c}\frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{3}\nabla\Phi(\mathbf{r}, t) = -(\mu_s + \mu_a - g\mu_s)\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \quad (2.24)$$

où g est le coefficient d'anisotropie, défini par :

$$g = \langle \cos \theta \rangle = \int_{4\pi} \cos(\theta) \frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta) d\Omega \quad (2.25)$$

où $\langle \rangle$ désigne la moyenne sur toutes les directions de diffusion possibles, ou de manière équivalente, sur un grand nombre d'événements de diffusion. Plus le coefficient d'anisotropie est élevé, plus la diffusion est piquée vers l'avant.

En régime stationnaire ou quasi-stationnaire, lorsque la source varie lentement (i.e. de fréquence largement inférieure à $\frac{c}{n((1-g)\mu_s + \mu_a)}$)[31], on obtient une relation analogue à la loi de Fick :

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = -\frac{n}{c}D_l\nabla\Phi(\mathbf{r}, t) \quad (2.26)$$

où le coefficient de diffusion D_l est donné par :

$$D_l = \frac{c}{3n((1-g)\mu_s + \mu_a)} \quad (2.27)$$

Ce coefficient de diffusion de l'énergie lumineuse correspond au coefficient de diffusion des photons dans le milieu. Il s'écrit classiquement $D_l = v^*l^*/3$, où $v^* = c/n$ désigne la vitesse de transport de l'énergie (i.e. la vitesse de la lumière dans le milieu) et l^* le libre parcours moyen de transport, qui correspond à la distance nécessaire pour rendre

3. On considère parfois que seule la luminance "diffusée" (i.e. correspondant à un champ diffusé au moins une fois), et pas la luminance "incidente", peut être décrite par l'approximation de diffusion. On considérera alors la source S comme étant la source de lumière diffusée et non la source de lumière incidente. Nous reviendrons sur cette distinction à la section 3.4.

4. On obtient ce résultat en utilisant les relations suivantes : pour un vecteur \mathbf{A} et un scalaire B , on a $\nabla \cdot (B\hat{\mathbf{s}}) = \hat{\mathbf{s}} \cdot \nabla B$, $\int_{4\pi} \hat{\mathbf{s}}(\mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{s}})d\Omega = \frac{4\pi}{3}\mathbf{A}$ et $\int_{4\pi} \hat{\mathbf{s}}(\hat{\mathbf{s}} \cdot \nabla(\mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{s}}))d\Omega = 0$. On utilisera également le fait que $\int_{4\pi} \hat{\mathbf{s}}\frac{d\sigma}{d\Omega}(\psi)d\Omega = g\hat{\mathbf{s}}_0$ et que la source Q est isotrope.

aléatoire la direction de propagation d'un photon. On obtient donc l'expression du libre parcours moyen de transport suivante :

$$l^* = \frac{1}{((1-g)\mu_s + \mu_a)} \quad (2.28)$$

En remplaçant la densité de flux par son expression en fonction de l'irradiance (2.26) dans l'équation de transfert radiatif intégrée (2.21), on obtient finalement l'équation de diffusion pour l'irradiance :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{r}, t) - D_l \nabla^2 \Phi(\mathbf{r}, t) = -\frac{\mu_a c}{n} \Phi(\mathbf{r}, t) + \frac{c}{n} S(\mathbf{r}, t) \quad (2.29)$$

Dans toute la suite de ce manuscrit, on négligera l'absorption, ce qui revient à supposer $\mu_a = 0$ ou $l_a = \infty$. Celle-ci s'avère en effet très faible devant la diffusion ($\mu_a \ll (1-g)\mu_s$ ou $l_a \gg l^*$) dans les fluides utilisés lors de nos expériences (voir section 5.4). Le libre parcours moyen de transport correspond alors simplement à la distance moyenne entre deux événements de diffusion effectifs qui correspondrait à une diffusion isotrope équivalente. On utilisera donc les expressions suivantes du libre parcours moyen de transport et de l'équation de diffusion pour l'irradiance :

$$l^* = \frac{1}{(1-g)\mu_s} = \frac{l}{1 - \langle \cos \theta \rangle} \quad (2.30)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{r}, t) - D_l \nabla^2 \Phi(\mathbf{r}, t) = \frac{c}{n} S(\mathbf{r}, t) \quad (2.31)$$

Dans certaines théories utilisant l'approximation de diffusion, comme la DWS, on préfère écrire l'équation de diffusion (2.31) pour la densité d'énergie lumineuse (ou densité de photons) U , en J/m^3 , donnée par :

$$U(\mathbf{r}, t) = \frac{n}{c} \Phi(\mathbf{r}, t) \quad (2.32)$$

On obtient donc :

$$\frac{\partial U}{\partial t}(\mathbf{r}, t) - D_l \nabla^2 U(\mathbf{r}, t) = S(\mathbf{r}, t) \quad (2.33)$$

On notera que les équations de diffusion ci-dessus décrivent la limite continue d'une marche aléatoire isotrope [32] : celle d'un photon, avec un pas de longueur égale au libre parcours moyen de transport l^* , une vitesse v^* et donc un coefficient de diffusion D_l .

Deuxième partie

Théorie

Chapitre 3

Diffusing-Wave Spectroscopy pour l'étude des écoulements

L'objectif de ce chapitre est de présenter en détail la théorie de la *Diffusing-Wave Spectroscopy* (DWS), en particulier son application dans les écoulements. En s'appuyant sur une description du transport de la lumière dans l'échantillon par l'approximation de diffusion, cette technique permet en effet de mesurer la norme du tenseur des taux de déformation et donc le taux de dissipation, une grandeur clé en mécanique des fluides.

Ce chapitre présente à la fois la preuve de concept apportée dans les années 90 [3, 4, 33, 34] en détaillant les calculs (et les approximations sous-jacentes) et de nouveaux éléments, permettant de justifier le bien-fondé de la méthode. En particulier, on discutera les conditions aux limites de l'équation de diffusion et la validité de celle-ci dans le cas qui nous intéresse, à savoir l'application expérimentale aux écoulements. On détaillera également le cas d'un taux de dissipation inhomogène qui complexifie considérablement la théorie, mais qui peut tout de même être exploité, en prolongeant les arguments de Bicout et Maynard (1993) [34]. On justifiera ainsi la possibilité d'une mesure expérimentale, résolue à la fois en temps et en espace, du taux de dissipation à l'interface d'un écoulement.

3.1 Historique et idée générale

La DWS est née à la fin des années 1980 avec la volonté d'étendre l'usage de la diffusion dynamique de la lumière (en anglais, *dynamic light scattering* –DLS– ou *photon correlation spectroscopy*) à des échantillons diffusant fortement la lumière. La DLS permet en effet d'étudier la dynamique des diffuseurs dans un échantillon diffusant très faiblement la lumière, en s'appuyant sur la théorie de la diffusion simple. La DWS repose au contraire sur l'approximation de diffusion pour décrire le transport de la lumière dans l'échantillon, et permet de remonter au déplacement relatif moyen des diffuseurs. Les premières études [1, 2] ont ainsi validé la pertinence de la DWS en étudiant le mouvement brownien, avant qu'elle soit exploitée pour déterminer la taille des diffuseurs [35-37]. Elle a depuis été utilisée pour obtenir le déplacement relatif moyen de divers types de diffuseurs (particules, gouttes, bulles, ...), permettant l'étude de la dynamique des mousses [38-40], des milieux granulaires [6, 9, 41, 42], ou encore des déformations plastiques et de la fracture [5, 7, 8]. Elle est également commercialement utilisée aujourd'hui pour la microrhéologie [43-46]. Par ailleurs, au début des années 1990, la méthode est appliquée expérimentalement à des écoulements simples pour mesurer la norme du tenseur des taux de déformation [3, 4] et étudiée théoriquement pour des écoulements plus complexes [33, 34, 47].

L'idée de la DWS est de déduire le déplacement relatif moyen des diffuseurs à partir de l'analyse des fluctuations de l'intensité diffusée par un échantillon, au sein duquel le transport de la lumière peut être décrit par l'approximation de diffusion. Concrètement, une source de lumière cohérente, comme un laser, illumine l'échantillon et un capteur mesure l'intensité diffusée après de multiples diffusions élastiques. Lorsqu'un photon entre dans le milieu, sa trajectoire est décrite par une marche aléatoire, de pas l (le libre parcours moyen) entre les différents diffuseurs. Comme vu au chapitre précédent, cette marche aléatoire est a priori biaisée (anisotrope), mais on peut se ramener à une marche aléatoire isotrope en considérant la distance moyenne entre deux événements de diffusion isotrope comme étant l^* , le libre parcours moyen de transport. Le champ total diffusé étant issu de plusieurs chemins optiques, de phases potentiellement différentes, il est susceptible de présenter des interférences. Comme la phase de chaque chemin dépend aussi de la distance au capteur (les pixels d'une caméra par exemple) ou à l'écran, l'intensité diffusée n'est pas uniforme, mais présente plutôt une alternance de taches brillantes et de taches sombres, appelées taches de speckle [48]. Une tache de speckle correspond en fait à une aire de cohérence, c'est-à-dire une surface où les interférences sont sensiblement les mêmes : l'intensité à l'échelle d'une tache est ainsi uniforme. L'ensemble des taches de speckle forme ce qu'on appelle une figure (ou motif) de speckle (figure 3.1).

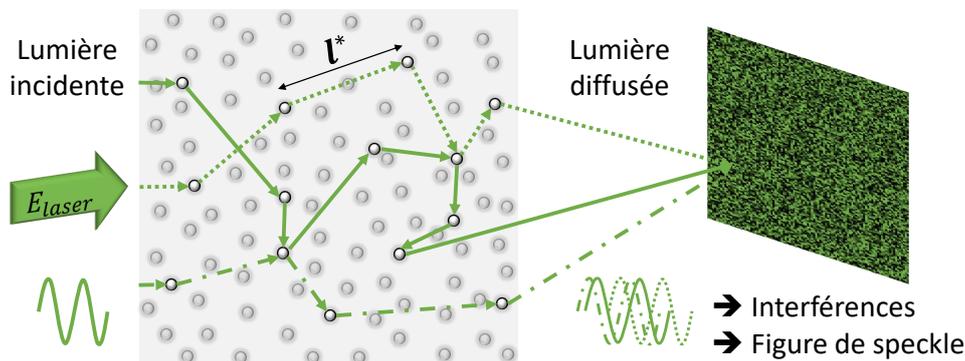


FIGURE 3.1 – Illustration de la marche aléatoire isotrope des photons dans l'échantillon, de pas l^* , avec trois chemins optiques possibles. Les ondes incidentes sont en phase, alors qu'après diffusion elle sont potentiellement déphasées et peuvent interférer destructivement. En mesurant l'intensité diffusée, on observe donc une alternance de taches brillantes et de taches sombres, appelée figure de speckle.

Si les diffuseurs se déplacent (en fait, s'ils ont un déplacement relatif les uns par rapport aux autres, voir plus loin), la phase de chaque chemin est susceptible de varier dans le temps. On peut ainsi observer une fluctuation de l'intensité des taches de speckle et de la figure de speckle en général. Typiquement, il faut que deux ondes qui interféraient constructivement se mettent à interférer destructivement (ou vice-versa) pour que l'intensité d'une tache change significativement. Autrement dit, il faut que la phase d'une des ondes varie de l'ordre d'une demi-longueur d'onde par rapport à l'autre. La DWS (tout comme la DLS) consiste ainsi à remonter à la dynamique des diffuseurs, à très petite échelle, en analysant les variations temporelles d'une ou plusieurs taches de speckle, autrement dit les fluctuations de l'intensité diffusée (figure 3.2).

Pour étudier les fluctuations temporelles de l'intensité diffusée, on calcule sa fonction d'autocorrélation temporelle. On s'intéressera dans un premier temps au cas particulièrement simple de la DLS. On explicitera ensuite le calcul et les hypothèses nécessaires qui permettent d'obtenir la fonction d'autocorrélation en fonction du déplacement relatif des diffuseurs dans le cas de la DWS.

3.2 Autocorrélation temporelle de l'intensité diffusée

On utilisera plusieurs fois dans cette section que le champ diffusé mesuré (via son intensité) au niveau d'un capteur est une variable aléatoire stationnaire (ou quasi-

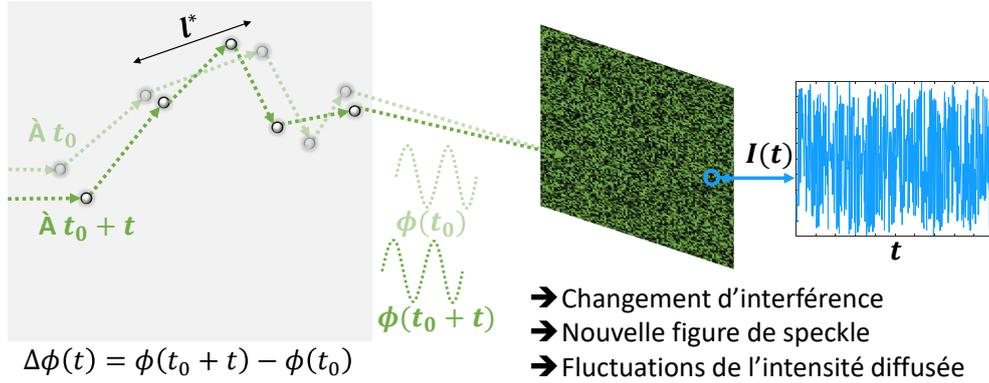


FIGURE 3.2 – Schéma de principe de la DWS. Le déplacement (relatif) des diffuseurs entraînant une variation de la phase ϕ des chemins optiques, les interférences observées, et donc la figure de speckle, peuvent évoluer dans le temps. L'analyse des fluctuations temporelles de l'intensité diffusée, c'est-à-dire l'intensité d'une ou plusieurs taches de speckle, permet de remonter au déplacement relatif moyen des diffuseurs.

stationnaire) gaussienne. En effet, il correspond à la somme de nombreux champs issus de différents diffuseurs (voire différents chemins dans le cas de la diffusion multiple). En supposant ces champs statistiquement indépendants, autrement dit en supposant les positions et les déplacements des diffuseurs non corrélés, le résultat est immédiat d'après le théorème central limite. Cette forte hypothèse de non-corrélation des déplacements des diffuseurs a été discutée à plusieurs reprises, y compris dans le cadre de la diffusion multiple [49-51]. Elle semblait particulièrement discutable lorsque les diffuseurs sont entraînés par un écoulement, mais il a été montré que le caractère gaussien du champ diffusé est largement valable pour des chemins de diffusion suffisamment longs, y compris lorsque le volume typique sondé est plus petit que le volume typique de corrélation du champ de vitesse dans l'écoulement [52].

3.2.1 Autocorrélation de l'intensité et autocorrélation du champ électrique

La fonction d'autocorrélation temporelle de l'intensité (aussi appelée fonction de corrélation d'ordre 2, ou homodyne), notée g_2 , est donnée par :

$$g_2(t_0, t) \equiv \frac{\langle I(t_0)I(t_0 + t) \rangle}{\langle I(t_0) \rangle \langle I(t_0 + t) \rangle} \quad (3.1)$$

où $\langle \dots \rangle$ désigne une moyenne d'ensemble. Par la suite, on supposera le système ergodique et quasi-stationnaire¹, autrement dit on pourra aussi bien faire une moyenne temporelle (sur t_0) qu'une moyenne d'ensemble, et on aura $\langle I(t_0 + t) \rangle = \langle I(t_0) \rangle$. On notera alors simplement :

$$g_2(t) = \frac{\langle I(t_0)I(t_0 + t) \rangle}{\langle I(t_0) \rangle^2} \quad (3.2)$$

Cette fonction est maximale pour $t = 0$ s (le signal lumineux est alors parfaitement corrélé avec lui-même) puis décroît, pour un signal stationnaire aléatoire, jusqu'à 1 (les signaux sont alors parfaitement décorrélés). Plus les particules diffusantes se déplacent vite les unes par rapport aux autres, plus l'intensité diffusée se décorrèle vite. La valeur maximale, pour $t = 0$ s, dépend du contraste temporel β donné par :

$$\beta \equiv \frac{\langle I^2(t_0) \rangle - \langle I(t_0) \rangle^2}{\langle I(t_0) \rangle^2} \quad (3.3)$$

On a alors $g_2(0) = 1 + \beta$. En considérant le champ diffusé comme une variable aléatoire quasi-stationnaire gaussienne, le contraste dépend essentiellement de deux paramètres : d'une part le nombre de taches de speckle sur lesquelles l'intensité est moyennée, et la polarisation d'autre part. En effet, si on considère un capteur mesurant l'intensité sur une surface correspondant à N_s taches de speckle ($N_s \geq 1$), on aura $\beta \approx 1/N_s$ [50]. Ainsi, pour un détecteur ponctuel ou une fibre parfaitement monomode [53], le contraste sera maximal. A l'inverse, pour un capteur large, comme un pixel de caméra, le signal peut être moyenné sur de nombreuses taches de speckle : le contraste est alors très faible. Il faut de plus tenir compte de la polarisation de l'onde : si elle est aléatoire, le contraste est diminué d'un facteur 2 par rapport au cas où une polarisation précise est sélectionnée (par exemple en plaçant un polariseur avant le capteur). On retiendra les cas idéalisés lorsqu'on utilise une fibre monomode : $\beta \approx 1/2$ (sans polariseur) et $\beta \approx 1$ (avec polariseur)[50].

Pour s'affranchir de cette dépendance vis-à-vis du montage expérimental et se concentrer uniquement sur la dynamique de l'échantillon, on peut utiliser la fonction d'auto-corrélation normalisée de l'intensité, notée g_i , qui décroît de 1 jusqu'à 0 : $g_i(t) \equiv \frac{g_2(t)-1}{\beta}$. Autrement dit :

$$g_i(t) \equiv \frac{\langle I(t_0)I(t_0 + t) \rangle - \langle I(t_0) \rangle^2}{\langle I^2(t_0) \rangle - \langle I(t_0) \rangle^2} \quad (3.4)$$

1. Cette quasi-stationnarité se traduit par le fait que toutes les temps d'intérêt pour le calcul de g_2 , et en particulier la durée de moyennage, doivent être faibles devant le temps caractéristique des fluctuations de dynamique de l'échantillon. Dans notre cas, ces fluctuations sont les fluctuations hydrodynamiques, et plus particulièrement celles du taux de dissipation : on pourra ainsi supposer, pour le calcul de la quantité g_2 , que le taux de dissipation est constant. On se référera à la section 3.5.2 pour plus de détails.

Pour décrire analytiquement la dynamique de l'échantillon, il est en fait plus simple de partir de la fonction d'autocorrélation du champ électrique (aussi appelée fonction de corrélation d'ordre 1, ou hétérodyne), notée g_1 , qui s'écrit :

$$g_1(t_0, t) \equiv \frac{\langle \mathbf{E}^*(t_0) \cdot \mathbf{E}(t_0 + t) \rangle}{[\langle |\mathbf{E}(t_0)|^2 \rangle \langle |\mathbf{E}(t_0 + t)|^2 \rangle]^{1/2}} \equiv \frac{\langle \mathbf{E}^*(t_0) \cdot \mathbf{E}(t_0 + t) \rangle}{[\langle I(t_0) \rangle \langle I(t_0 + t) \rangle]^{1/2}} \quad (3.5)$$

où ...* désigne le conjugué. Pour un système quasi-stationnaire, on a simplement :

$$g_1(t) \equiv \frac{\langle \mathbf{E}^*(t_0) \cdot \mathbf{E}(t_0 + t) \rangle}{\langle |\mathbf{E}(t_0)|^2 \rangle} \equiv \frac{\langle \mathbf{E}^*(t_0) \cdot \mathbf{E}(t_0 + t) \rangle}{\langle I(t_0) \rangle} \quad (3.6)$$

Le champ étant une variable aléatoire gaussienne, on peut utiliser la relation de Siegert [51] pour relier les fonctions d'autocorrélation de l'intensité et celle du champ :

$$g_i(t) \equiv \frac{g_2(t) - 1}{\beta} = |g_1(t)|^2 \quad (3.7)$$

Mesurer l'intensité diffusée et en calculer la fonction d'autocorrélation temporelle g_2 ou g_i permet donc de remonter à la fonction d'autocorrélation du champ électrique g_1 , qui traduit elle-même la dynamique des diffuseurs.

3.2.2 Cas de la diffusion simple : DLS

Avant de détailler le cas de la diffusion multiple (DWS), on peut dériver le cas plus simple de la diffusion simple (DLS). On considère un échantillon de taille caractéristique L , présentant une concentration de diffuseur suffisamment faible pour se trouver en régime de diffusion simple ($L \leq l$). Si on place un capteur en \mathbf{r} , en champ lointain ($r \lambda \gg L^2$ et $r \gg L$), et qu'on place l'origine du repère au niveau de l'échantillon, le champ électrique diffusé par une particule est donné par l'expression (2.13). Le champ total au niveau du capteur est alors donné par la somme de tous les champs diffusés une seule fois par l'ensemble des N particules (le nombre N de particules n'a pas d'importance dans la fonction d'autocorrélation, comme le montre la suite du calcul) :

$$\mathbf{E}(\mathbf{t}) = \sum_{j=1}^N \mathbf{f}(\theta_j) E_i \frac{e^{i(kr - \omega t)}}{r} e^{-i\mathbf{q}_j \cdot \mathbf{r}_j(t)} \quad (3.8)$$

où $\mathbf{r}_j(t)$ désigne la position de la particule j à l'instant t et $\mathbf{q}_j = \mathbf{k}_{d,j} - \mathbf{k}_i$ le vecteur de diffusion associé (avec $\mathbf{k}_{d,j}$ le vecteur de l'onde diffusée par la particule j et \mathbf{k}_i le vecteur d'onde incidente). Comme le capteur est en champ lointain, l'angle de diffusion θ_j et donc le vecteur d'onde diffusée sont sensiblement les mêmes pour tous les diffuseurs (figure 3.3) : on les notera simplement θ et \mathbf{k}_d . Le vecteur de diffusion $\mathbf{q}_j = \mathbf{q} \equiv \mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i$

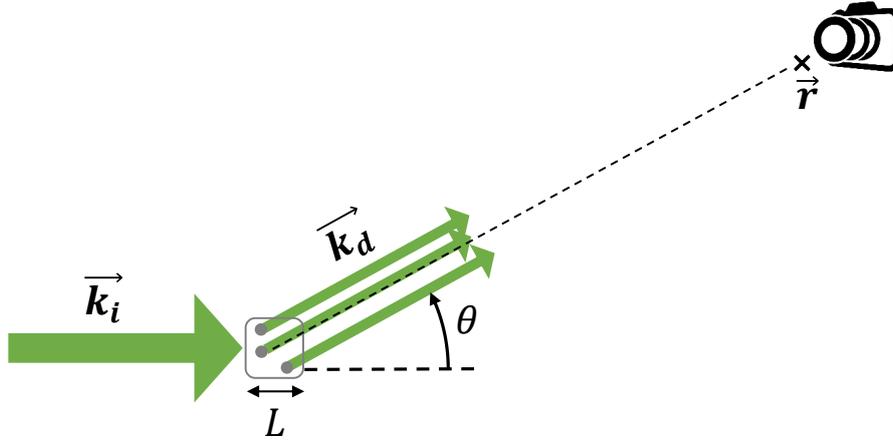


FIGURE 3.3 – Vecteur d’onde de l’onde incidente et de l’onde diffusée par chaque diffuseur. Le capteur étant en champ lointain, la distance à l’échantillon r est très grande devant sa taille caractéristique L . Ainsi, les vecteurs d’onde diffusée par chaque diffuseur sont tous les mêmes $\mathbf{k}_{d,j} = \mathbf{k}_d$ et le vecteur de diffusion est également une constante : $\mathbf{q} \equiv \mathbf{k}_d - \mathbf{k}_i$.

est ainsi également une constante pour tous les diffuseurs, dépendant simplement de l’angle θ entre le capteur et l’onde incidente.

Si on note $\mathbf{E}_0 = \mathbf{f}(\theta) E_i \frac{e^{i(kr - \omega t)}}{r}$, c’est-à-dire le champ au niveau du capteur correspondant à la diffusion par une particule située à l’origine, le champ total s’écrit donc :

$$\mathbf{E}(\mathbf{t}) = \sum_{j=1}^N \mathbf{E}_0 e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j(t)} \quad (3.9)$$

La fonction d’autocorrélation du champ (3.6) s’écrit alors :

$$g_1(t) = \frac{\sum_{j=1}^N \sum_{l=1}^N \langle \exp[-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_l(t_0 + t) - \mathbf{r}_j(t_0))] \rangle}{\sum_{j=1}^N \sum_{l=1}^N \langle \exp[-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_l(t_0) - \mathbf{r}_j(t_0))] \rangle} \quad (3.10)$$

On négligera les interactions potentielles et hydrodynamiques, comme c’est souvent le cas dans les expériences de DLS (la concentration en diffuseurs étant très faible [1]) et on supposera le fluide au repos. On peut alors supposer que les positions des

2. On néglige le déplacement des diffuseurs pendant le trajet de la lumière, la vitesse des diffuseurs étant largement inférieure à celle de la lumière.

différents diffuseurs sont non-corrélés dans le temps. Comme $\langle \exp[-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_l(t_0 + t)] \rangle = \langle \exp[i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_j(t_0)] \rangle = 0$ (pour toute particule j ou l), les termes croisés $j \neq l$ sont nuls. L'équation (3.10) se simplifie pour donner :

$$g_1(t) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \langle \exp[-i\mathbf{q} \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t)] \rangle \quad (3.11)$$

où $\Delta\mathbf{r}_j(t) \equiv \mathbf{r}_j(t_0 + t) - \mathbf{r}_j(t_0)$. Si le mouvement des particules dans le fluide au repos peut être décrit par le mouvement brownien (c'est généralement le cas en raison de leur taille), les $\Delta\mathbf{r}_j(t)$ sont des champs aléatoires gaussiens et identiquement distribués avec :

$$\langle \Delta\mathbf{r}_j(t) \rangle = \mathbf{0} \quad (3.12)$$

$$\langle \Delta\mathbf{r}_j^2(t) \rangle = 6Dt \quad (3.13)$$

où D correspond au coefficient de diffusion des particules dans le milieu. Comme le vecteur de diffusion \mathbf{q} est fixé et constant dans le temps, les variables aléatoires $\mathbf{q} \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t)$ sont également gaussiennes et identiquement distribuées avec :

$$\langle \mathbf{q} \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t) \rangle = 0 \quad (3.14)$$

$$\langle (\mathbf{q} \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t))^2 \rangle = \frac{1}{3}q^2 \langle \Delta\mathbf{r}_j^2(t) \rangle = 2q^2 Dt \quad (3.15)$$

L'expression (3.11) se simplifie donc finalement sous la forme³ :

$$g_1(t) = \exp(-q^2 Dt) \quad (3.16)$$

En conclusion, dans le cas de la diffusion simple, on observe une décroissance exponentielle de la fonction d'autocorrélation du champ et donc de la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité (par la relation de Siegert (3.7)) avec un temps caractéristique $\tau_{B,ds} = 1/(q^2 D)$. On utilisera ainsi la DLS pour déterminer le coefficient de diffusion des diffuseurs dans nos échantillons (voir section 5.3).

3.2.3 Cas de la diffusion multiple : DWS

Dans le cas de la diffusion multiple, écrire le champ total au niveau du capteur comme une somme de champs multiplement diffusés (donnés par des produits de l'expression (2.4)) s'avère extrêmement lourd. Obtenir une expression analytique de la fonction d'autocorrélation de l'intensité diffusée sans approximation est alors illusoire. L'approche de la DWS consiste à se placer dans l'approximation de diffusion : le transport de la lumière dans l'échantillon peut être décrit par une équation de diffusion. Pour simplifier, on se placera généralement d'un point de vue corpusculaire de la lumière pour décrire ce

3. Pour une variable aléatoire gaussienne A , $\langle \exp(iA) \rangle = \exp(i\langle A \rangle - \frac{\langle A^2 \rangle - \langle A \rangle^2}{2})$

transport, en considérant le déplacement des photons dans l'échantillon. En effet, dans l'approximation de diffusion, il n'y a pas de différence entre la diffusion des photons et la diffusion de l'intensité lumineuse ou de l'irradiance Φ . Les effets d'interférence ne sont évidemment pas totalement négligés pour autant (sinon il n'y aurait pas de fluctuations de l'intensité diffusée), mais ils ne sont pris en compte qu'au niveau du capteur et pas à l'intérieur même de l'échantillon. On suivra la démarche de référence décrite par Weitz et Pine dans le chapitre 16 "Diffusing-wave spectroscopy" de l'ouvrage "Dynamic Light Scattering : The Method and Some Applications" (Brown, 1993) [54] pour écrire la fonction d'autocorrélation du champ en fonction de la dynamique des diffuseurs. Dans l'approximation de diffusion, le déplacement des photons dans l'échantillon peut être décrit par une marche aléatoire isotrope avec des pas de longueur moyenne l^* entre les différents diffuseurs. On peut alors écrire pour chaque chemin optique le déphasage, puis le champ total en sommant sur tous les chemins possibles. On moyennera ensuite sur les chemins de même nombre de pas (autrement dit, de même longueur), en les pondérant grâce à l'approximation de diffusion, pour finalement déduire une expression analytique de g_1 .

On considère la marche aléatoire isotrope d'un photon, avec des pas de longueur moyenne l^* entre les diffuseurs, dans un échantillon de taille caractéristique L . On s'intéresse à un chemin optique mettant en jeu N pas (autrement dit N événements de diffusion), chemin auquel on fera référence par l'indice c . Si les diffuseurs sont en champ lointain les uns par rapport aux autres (approximation (2.15)), la phase ϕ_j accumulée entre le diffuseur j et le diffuseur $j + 1$ à l'instant t est donnée par l'expression (2.7) :

$$\phi_j(t) = k|\mathbf{r}_{j+1}(t) - \mathbf{r}_j(t)| \quad (3.17)$$

où k désigne la norme du vecteur d'onde et $\mathbf{r}_j(t)$ la position du diffuseur j à l'instant t ⁴. La phase totale ϕ_c du chemin c à l'instant t correspond à la somme de la phase accumulée entre chaque diffuseur, auquel on doit ajouter celle entre la source et le premier diffuseur et celle entre le dernier diffuseur et le capteur. En notant \mathbf{r}_0 la position de la source et \mathbf{r}_{N+1} celle du capteur, la phase totale est donc donnée par :

$$\phi_c(t) = k|\mathbf{r}_1(t) - \mathbf{r}_0| + \sum_{j=1}^{N-1} \phi_j(t) + k|\mathbf{r}_{N+1} - \mathbf{r}_N(t)| = k \sum_{j=0}^N |\mathbf{r}_{j+1}(t) - \mathbf{r}_j(t)| \quad (3.18)$$

Le champ total au niveau du détecteur correspond à la superposition de tous les champs

4. Comme pour la diffusion simple, on néglige le déplacement du diffuseur pendant que le photon exécute sa marche aléatoire, car le coefficient de diffusion des diffuseurs D est largement inférieur à celui du transport de la lumière D_l . Cela reste évidemment valable lorsqu'un écoulement est à l'oeuvre : le déphasage de l'onde dû au gradient de vitesse pendant le temps de parcours du photon est largement inférieur à λ , comme on le verra plus loin.

correspondant aux différents chemins c possibles de diffusion ⁵ :

$$\mathbf{E}(t) = \sum_c \mathbf{E}_c e^{i\phi_c(t)} \quad (3.19)$$

où \mathbf{E}_c désigne l'amplitude (et la polarisation) au niveau du détecteur du champ correspondant chemin c et $\phi_c(t)$ la phase associée. L'équation (3.19), analogue à l'expression (3.9) pour la diffusion simple, met en évidence la différence entre les deux cas : pour la diffusion multiple, la somme se fait sur tous les chemins possibles, et pour chaque chemin la phase est liée à plusieurs événements de diffusion. La fonction d'autocorrélation du champ (3.6) s'écrit donc :

$$g_1(t) = \frac{1}{\langle I(t_0) \rangle} \left\langle \left(\sum_c E_c^* e^{-i\phi_c(t_0)} \right) \left(\sum_{c'} E_{c'} e^{i\phi_{c'}(t_0+t)} \right) \right\rangle \quad (3.20)$$

En supposant les diffuseurs indépendants, les champs provenant de différents chemins peuvent être considérés non-corrélés [54] et ainsi les termes croisés $c \neq c'$ sont nuls. Si on suppose de plus l'indépendance de l'amplitude (et polarisation) \mathbf{E}_c par rapport à la phase ϕ_c et on obtient :

$$g_1(t) = \sum_c \frac{\langle I_c(t_0) \rangle}{\langle I(t_0) \rangle} \langle e^{i[\phi_c(t_0+t) - \phi_c(t_0)]} \rangle \quad (3.21)$$

où $I_c(t_0) \equiv |\mathbf{E}_c(t_0)|^2$ désigne l'intensité du champ associé au chemin c . Pour commencer, on s'intéresse au terme de phase, on notera $\Delta\phi_c(t)$ la variation de phase du chemin c entre l'instant t_0 et l'instant t_0+t (en gardant implicite la dépendance en t_0). On notera $\mathbf{k}_j(t)$ le vecteur d'onde diffusée par le diffuseur j à l'instant t (qui est donc colinéaire à $\mathbf{r}_{j+1}(t) - \mathbf{r}_j(t)$), avec $\mathbf{k}_0 = \mathbf{k}_i$ le vecteur d'onde incidente :

$$\begin{aligned} \Delta\phi_c(t) &= \phi_c(t_0+t) - \phi_c(t_0) \\ &= k \sum_{j=0}^N |\mathbf{r}_{j+1}(t_0+t) - \mathbf{r}_j(t_0+t)| - |\mathbf{r}_{j+1}(t_0) - \mathbf{r}_j(t_0)| \\ &= \sum_{j=0}^N \mathbf{k}_j(t_0+t) \cdot [\mathbf{r}_{j+1}(t_0+t) - \mathbf{r}_j(t_0+t)] - \mathbf{k}_j(t_0) \cdot [\mathbf{r}_{j+1}(t_0) - \mathbf{r}_j(t_0)] \\ &= \sum_{j=0}^N \Delta\mathbf{k}_j(t) \cdot [\mathbf{r}_{j+1}(t_0) - \mathbf{r}_j(t_0)] + \mathbf{k}_j(t_0+t) \cdot [\Delta\mathbf{r}_{j+1}(t) - \Delta\mathbf{r}_j(t)] \end{aligned}$$

5. On suppose ici que chaque chemin contribue indépendamment à la décorrélation de g_1 : c'est une somme "incohérente". Le rapport entre les termes qui correspondent aux effets cohérents, et cette somme incohérente étant de l'ordre de $1/(k^2 l^* L) \ll 1$ (où L désigne la taille caractéristique de l'échantillon), cette hypothèse est largement justifiée [54].

où $\Delta \mathbf{r}_j(t) \equiv \mathbf{r}_j(t_0 + t) - \mathbf{r}_j(t_0)$ et $\Delta \mathbf{k}_j(t) = \mathbf{k}_j(t_0 + t) - \mathbf{k}_j(t_0)$, en gardant de nouveau implicite la dépendance en t_0 . En notant $\mathbf{q}_j(t_0 + t) \equiv \mathbf{k}_j(t_0 + t) - \mathbf{k}_{j-1}(t_0 + t)$ le vecteur de diffusion de la j -ème diffusion à l'instant $t_0 + t$, et sachant que $\Delta \mathbf{r}_{N+1}(t) = \Delta \mathbf{r}_0(t) = \mathbf{0}$ car la source et le capteur sont fixes, on obtient :

$$\Delta \phi_c(t) = \sum_{j=0}^N \Delta \mathbf{k}_j(t) \cdot [\mathbf{r}_{j+1}(t_0) - \mathbf{r}_j(t_0)] - \sum_{j=1}^N \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta \mathbf{r}_j(t) \quad (3.22)$$

Au premier ordre, $\Delta \mathbf{k}_j(t) \perp [\mathbf{r}_{j+1}(t_0) - \mathbf{r}_j(t_0)]$, et la première somme peut être négligée par rapport à la seconde [54] :

$$\Delta \phi_c(t) = - \sum_{j=1}^N \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta \mathbf{r}_j(t) \quad (3.23)$$

Pour N suffisamment grand, on peut supposer les vecteurs de diffusion $\mathbf{q}_j(t_0 + t)$ indépendants⁶. En supposant une nouvelle fois les déplacements des diffuseurs non corrélés (voir 3.2), le théorème central limite permet d'établir que la variable aléatoire $\Delta \phi_c(t)$ est gaussienne.

L'expression de la fonction d'autocorrélation du champ (3.21) se réécrit donc :

$$g_1(t) = \sum_c \frac{\langle I_c(t_0) \rangle}{\langle I(t_0) \rangle} \exp \left[i \langle \Delta \phi_c(t) \rangle - \frac{\langle \Delta \phi_c^2(t) \rangle - \langle \Delta \phi_c(t) \rangle^2}{2} \right] \quad (3.24)$$

On supposera que la variation de phase $\Delta \phi_c(t)$ ne dépend que du nombre d'étapes de diffusion dans le chemin c (cette hypothèse sera discutée par la suite), on la notera $\Delta \phi_N(t)$. On peut ainsi, dans l'expression (3.24), passer d'une somme sur l'ensemble des chemins, à une somme sur le nombre d'événements de diffusions N , pourvu que la fraction d'intensité due au chemin c $\langle I_c(t_0) \rangle / \langle I(t_0) \rangle$ soit remplacée par la fraction d'intensité $\langle I_N(t_0) \rangle / \langle I(t_0) \rangle$ due aux chemins de N pas, autrement dit la probabilité $P(N)$ que le champ diffusé corresponde à N diffusions :

$$g_1(t) = \sum_N P(N) \exp \left[i \langle \Delta \phi_N(t) \rangle - \frac{\langle \Delta \phi_N^2(t) \rangle - \langle \Delta \phi_N(t) \rangle^2}{2} \right] \quad (3.25)$$

Pour déterminer g_1 , il faut donc déterminer d'une part les moments d'ordre 1 et d'ordre 2 de la variation de phase d'un chemin de N pas, qui caractérisent la dynamique des diffuseurs (mouvement brownien, déformations, écoulement, ...), et d'autre part déterminer la probabilité $P(N)$ d'obtenir un chemin de diffusion de N pas, qui

6. Ce n'est pas le cas pour des chemins avec peu de pas de diffusion, car les vecteurs d'onde incidente et "sortante" sont tous les deux fixés par la position de la source et du capteur par rapport à l'échantillon. Les quelques vecteurs de diffusion sont alors fortement corrélés les uns aux autres.

dépend elle de de la nature du faisceau incident (uniforme, ponctuel, gaussien, ...), de la géométrie utilisée (montage en rétrodiffusion ou en transmission) et des conditions aux limites associées.

3.3 Moments de la variation de phase

Les moments d'ordre 1 et 2 de la variation de phase dépendent de la dynamique des diffuseurs et donc du contexte d'étude. On s'intéressera au cas où les diffuseurs se déplacent dans un fluide, à la fois à cause de l'agitation thermique (mouvement brownien), et sous l'action de l'éventuel écoulement. Hormis leur mouvement brownien, on supposera que les diffuseurs sont des traceurs parfaits, c'est-à-dire que leur trajectoire correspond exactement à celle qu'aurait une particule de fluide. Dans un premier temps, on étudiera les moments de la variation de phase pour une dynamique décrite par un mouvement brownien seul, puis purement par un écoulement seul, avant de considérer le cas général où les deux contributions interviennent.

3.3.1 Cas d'une dynamique de mouvement brownien

Dans le cas d'un déplacement des diffuseurs seulement liée à l'agitation thermique, leur dynamique peut être modélisée par un mouvement brownien : pour chaque diffuseur j dans un chemin, on a $\langle \Delta \mathbf{r}_j(t) \rangle = \mathbf{0}$ et $\langle \Delta \mathbf{r}_j^2(t) \rangle = 6Dt$. On suppose les variations de phases liées à chaque diffusion $\mathbf{q}_j(t_0 + t) \Delta \mathbf{r}_j(t)$ indépendantes⁷, et de même pour les vecteurs de diffusions $\mathbf{q}_j(t_0 + t)$ vis-à-vis des déplacements du diffuseur $\Delta \mathbf{r}_j(t)$. La moyenne de la variation de phase d'un chemin de taille N (expression (3.23)) est donc donnée par :

$$\begin{aligned}
 \langle \Delta \phi_N(t) \rangle &= \left\langle - \sum_{j=1}^N \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta \mathbf{r}_j(t) \right\rangle \\
 &= - \sum_{j=1}^N \langle \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta \mathbf{r}_j(t) \rangle \\
 &= - \sum_{j=1}^N \langle \mathbf{q}_j(t_0 + t) \rangle \cdot \langle \Delta \mathbf{r}_j(t) \rangle \\
 &= 0
 \end{aligned} \tag{3.26}$$

7. Comme pour le caractère gaussien de la variation de phase via l'expression (3.23), la non-corrélation des vecteurs de diffusion ne tient que pour les chemins comprenant de nombreuses diffusions ($N \gg 1$).

La variance de la variation de phase est elle donnée par :

$$\begin{aligned}
\langle \Delta\phi_N^2(t) \rangle &= \left\langle \sum_{j=1}^N \sum_{l=1}^N (\mathbf{q}_j(t_0+t) \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t)) (\mathbf{q}_l(t_0+t) \cdot \Delta\mathbf{r}_l(t)) \right\rangle \\
&= \sum_{j=1}^N \sum_{l=1}^N \langle (\mathbf{q}_j(t_0+t) \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t)) (\mathbf{q}_l(t_0+t) \cdot \Delta\mathbf{r}_l(t)) \rangle \\
&= \sum_{j=1}^N \langle (\mathbf{q}_j(t_0+t) \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t))^2 \rangle \\
&= \sum_{j=1}^N \frac{1}{3} \langle \mathbf{q}_j^2(t_0+t) \rangle \langle \Delta\mathbf{r}_j^2(t) \rangle \\
&= 4Nk^2Dt
\end{aligned} \tag{3.27}$$

où on a utilisé l'expression de la norme du vecteur de diffusion (2.12), qui est en moyenne la même pour tous les diffuseurs, dans le cas isotrope : $\langle \mathbf{q}_j^2(t_0+t) \rangle = \langle 4k^2 \sin^2(\theta/2) \rangle = 2k^2$.

Dans le cas d'une dynamique des diffuseurs due seulement à leur mouvement brownien, l'expression de la fonction d'autocorrélation (3.25) devient donc :

$$g_1(t) = \sum_N P(N) \exp\left(-2\frac{t}{\tau_B}N\right) \tag{3.28}$$

où on a défini le temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B :

$$\tau_B = \frac{1}{k^2D} \tag{3.29}$$

qui correspond à la durée nécessaire pour que deux diffuseurs aient un déplacement relatif d'une distance λ à cause de leur mouvement brownien. L'équation (3.28) s'interprète de la façon suivante : chaque pas étant responsable, en moyenne, d'une diminution d'un facteur $\exp(-2t/\tau_B)$ dans la fonction d'autocorrélation, un chemin de N pas a un temps de corrélation typique (c'est-à-dire le temps qu'il faut pour que le chemin total varie d'une distance d'environ $\lambda/2$) de $\tau_B/(2N)$. Le temps de corrélation des chemins "courts" (N petit) est ainsi élevé, tandis celui des chemins "longs" (N grand) est faible. Il suffit en effet d'un très faible déplacement de chaque diffuseur pour que la longueur totale d'un long chemin varie d'une demi-longueur d'onde.

3.3.2 Cas d'une dynamique d'écoulement

On se place désormais dans le cas où les diffuseurs ne se déplacent qu'à cause de l'écoulement. Afin d'exprimer les moments de la variation de phase en fonction du

tenseur des taux de déformation $\underline{\underline{e}}$, on fera plusieurs hypothèses sur l'écoulement, dont le champ de vitesse sera noté $\mathbf{v}(\mathbf{r}', t')$.

- On supposera l'écoulement stationnaire ou quasi-stationnaire sur des échelles de temps de l'ordre de t pour lesquels la fonction d'autocorrélation et donc la variation de phase est évaluée⁸. En notant Δt_{fluc} le temps caractéristique de fluctuation du champ de vitesse, on suppose donc :

$$t \ll \Delta t_{fluc} \quad (3.30)$$

et on a :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}', t' + t) \approx \mathbf{v}(\mathbf{r}', t') \quad (3.31)$$

- On supposera de plus que la variation du champ de vitesse le long du déplacement d'un diffuseur pendant la durée t est négligeable, autrement dit que la distance parcourue par le diffuseur pendant la durée t est faible devant l'échelle typique de variation du champ de vitesse (ou longueur caractéristique de l'écoulement), notée ξ :

$$\Delta \mathbf{r}_j(t) = \int_{t_0}^{t_0+t} \mathbf{v}(\mathbf{r}_j(t'), t') dt' \ll \xi \quad (3.32)$$

On a donc :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}_j(t' + t), t') \approx \mathbf{v}(\mathbf{r}_j(t'), t') \quad (3.33)$$

Sous ces conditions, le déplacement des diffuseurs peut alors s'écrire grâce à un développement de Taylor à l'ordre 1 en temps :

$$\Delta \mathbf{r}_j(t) \approx t \mathbf{v}(\mathbf{r}_j(t_0), t_0) \quad (3.34)$$

- Enfin, on supposera que le champ de vitesse évolue faiblement sur des distances de l'ordre du libre parcours moyen de transport, autrement dit que :

$$l^* \ll \xi \quad (3.35)$$

Ceci permet de faire un développement de Taylor à l'ordre 1 en espace de la différence de vitesse entre deux diffuseurs, à l'instant t' :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}_{j+1}, t') - \mathbf{v}(\mathbf{r}_j, t') \approx ((\mathbf{r}_{j+1} - \mathbf{r}_j) \cdot \nabla) \mathbf{v}(\mathbf{r}_j, t') \quad (3.36)$$

8. Il est en fait nécessaire que l'écoulement soit quasi-stationnaire sur la durée de moyennage Δt_{moy} pour effectuer des moyennes temporelles dans nos expériences et ainsi utiliser l'expression (3.2). L'écoulement doit donc être quasi-stationnaire sur des échelles de temps largement supérieures au temps de corrélation et à t (voir section 6.3) : $t \ll \Delta t_{moy} \leq \Delta t_{fluc}$.

3.3.2.1 Expression de la variation de phase en fonction du tenseur des taux de déformation

On peut réécrire la variation de phase d'un chemin de N pas en fonction de la différence de déplacement entre deux diffuseurs successifs :

$$\begin{aligned}
\Delta\phi_N(t) &= - \sum_{j=1}^N \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_j(t) \\
&= \mathbf{k}_0(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_1(t) + \sum_{j=1}^{N-1} \mathbf{k}_j(t_0 + t) \cdot [\Delta\mathbf{r}_{j+1}(t) - \Delta\mathbf{r}_j(t)] - \mathbf{k}_N(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_N(t) \\
&\approx \sum_{j=1}^{N-1} \mathbf{k}_j(t_0 + t) \cdot [\Delta\mathbf{r}_{j+1}(t) - \Delta\mathbf{r}_j(t)]
\end{aligned} \tag{3.37}$$

où on a négligé les termes $\mathbf{k}_0(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_1(t)$ et $-\mathbf{k}_N(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_N(t)$. En effet, si le champ de vitesse dans l'écoulement est orthogonal aux vecteurs d'onde incidente et "sortante" (comme pour le régime de Couette de l'écoulement de Taylor-Couette, voir dispositif en section 7.1), ces 2 termes sont identiquement nuls. De manière plus générale, on se placera dans le cas le plus courant expérimentalement : le premier et le dernier diffuseur de la marche aléatoire sont à proximité d'une paroi solide (typiquement à une distance de l'ordre de l^*). La composante de vitesse orthogonale à la paroi au niveau de ces diffuseurs est donc très faible. Comme les vecteurs d'onde incidente et sortante sont eux-mêmes généralement orthogonaux à la paroi, la contribution des produits scalaires $\mathbf{k}_0(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_1(t)$ et $-\mathbf{k}_N(t_0 + t) \cdot \Delta\mathbf{r}_N(t)$ est de ce fait négligeable, en particulier pour $N \gg 1$.

En notant $\hat{\mathbf{u}}_j$ le vecteur unitaire correspondant à la $j^{\text{ème}}$ diffusion ($\hat{\mathbf{u}}_j \equiv \frac{\mathbf{k}_j}{k} \equiv \frac{\mathbf{r}_{j+1} - \mathbf{r}_j}{|\mathbf{r}_{j+1} - \mathbf{r}_j|}$) et en utilisant le développement de Taylor à l'ordre 1 des déplacements des diffuseurs (3.34), la variation de phase s'écrit alors :

$$\Delta\phi_N(t) = kt \sum_{j=1}^{N-1} \hat{\mathbf{u}}_j \cdot (\mathbf{v}(\mathbf{r}_{j+1}) - \mathbf{v}(\mathbf{r}_j)) \tag{3.38}$$

On note Λ_j la distance entre le $j^{\text{ème}}$ et le $j + 1^{\text{ème}}$ diffuseur, ainsi $\mathbf{r}_{j+1} - \mathbf{r}_j = \Lambda_j \hat{\mathbf{u}}_j$. En utilisant le développement de Taylor à l'ordre 1 de la différence de vitesse (3.36) et en introduisant une sommation d'Einstein pour les composantes de l'opérateur gradient (a) et pour les composantes de la vitesse (b), avec $a, b \in \{x, y, z\}$, on obtient :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}_{j+1}) - \mathbf{v}(\mathbf{r}_j) = \Lambda_j (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_a \partial_a) v_b(\mathbf{r}_j) \hat{\mathbf{u}}_b \tag{3.39}$$

En injectant l'expression de la différence de vitesse (3.39) dans celle de la variation de

phase (3.38), celle-ci se réorganise sous la forme :

$$\begin{aligned}\Delta\phi_N(t) &= kt \sum_{j=1}^{N-1} \Lambda_j (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_b) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_a) \partial_a v_b(\mathbf{r}_j) \\ &= kt \sum_{j=1}^{N-1} \Lambda_j A^{ba}(j) \partial_a v_b(\mathbf{r}_j)\end{aligned}\tag{3.40}$$

où on a défini le tenseur $\underline{\mathbf{A}}$, qu'on appellera tenseur de diffusion isotrope (pour la $j^{\text{ème}}$ diffusion), par ses composantes $A^{ba}(j)$:

$$A^{ba}(j) = (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_b) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_a)\tag{3.41}$$

En notant que le tenseur de diffusion isotrope est symétrique ($A^{ba}(j) = A^{ab}(j)$) et en introduisant le tenseur des taux de déformation $\underline{\mathbf{e}}$ (de composantes $e_{ab} = \frac{1}{2}(\partial_a v_b + \partial_b v_a)$), lui aussi symétrique, l'expression (3.40) s'écrit finalement :

$$\Delta\phi_N(t) = kt \sum_{j=1}^{N-1} \Lambda_j A^{ab}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j)\tag{3.42}$$

Dans le cas de diffuseurs entraînés par un écoulement, la variation de phase dépend donc de la partie symétrique du tenseur des gradients de vitesse, autrement dit du tenseur des taux de déformation.

3.3.2.2 Moyenne de la variation de phase

Pour calculer les moments de la variation de phase, on fera des moyennes d'ensemble sur tous les chemins de taille N . Il faut ainsi définir un chemin de taille N , c'est-à-dire la position des N diffuseurs, par un certain nombre de variables aléatoires. Par exemple, on peut définir d'une part une variable aléatoire \mathbf{X}_1 correspondant à la position du premier diffuseur et d'autre part des variables aléatoires correspondant à chaque passage d'un diffuseur au suivant.

Pour passer du $j^{\text{ème}}$ au $j + 1^{\text{ème}}$ diffuseur, on introduit les variables aléatoires suivantes : la distance Λ_j entre les 2 événements de diffusion et la direction $\hat{\mathbf{u}}_j$ du $j^{\text{ème}}$ vers le $j + 1^{\text{ème}}$ diffuseur. Cette dernière s'écrit simplement à l'aide des 2 angles θ_j et φ_j en coordonnées sphériques $\hat{\mathbf{u}}_j = \sin\theta_j \cos\varphi_j \hat{\mathbf{x}} + \sin\theta_j \sin\varphi_j \hat{\mathbf{y}} + \cos\theta_j \hat{\mathbf{z}}$. L'avantage de cette définition est que les variables aléatoires \mathbf{X}_1 , Λ_j et $\hat{\mathbf{u}}_j$ (avec $1 \leq j \leq n$) sont indépendantes les unes des autres. Puisque le photon correspondant à un chemin optique réalise une marche aléatoire isotrope avec des pas de longueur moyenne l^* , les variables Λ_j suivent une loi exponentielle de paramètre l^* , donc de densité de probabilité donnée par :

$$f_{\Lambda_j}(x) = \frac{1}{l^*} \exp\left(-\frac{x}{l^*}\right)\tag{3.43}$$

Les variables $\hat{\mathbf{u}}_j$ suivent une loi isotrope, autrement dit parcourent de manière isotrope la sphère unité. Finalement, la position de la $j^{\text{ème}}$ particule diffusante s'écrit :

$$\mathbf{r}_j = \mathbf{X}_1 + \sum_{j=1}^{j-1} \Lambda_j \hat{\mathbf{u}}_j \quad (3.44)$$

Faire la moyenne sur tous les chemins de taille N signifie donc faire la moyenne sur les variables aléatoires indépendantes \mathbf{X}_1 , Λ_j et $\hat{\mathbf{u}}_j$ (avec $1 \leq i \leq n$). Dans l'expression de la variation de phase (3.42), on remarque que les trois termes dans la somme Λ_j , $A^{ab}(j)$ et $e_{ab}(\mathbf{r}_j)$ sont des fonctions de variables aléatoires différentes, et indépendantes entre chacun des trois termes. En effet, Λ_j est directement une des variables aléatoires, $A^{ab}(j)$ ne dépend que de la variable aléatoire $\hat{\mathbf{u}}_j$ et enfin $e_{ab}(\mathbf{r}_j)$ ne dépend que de $\mathbf{r}_j = \mathbf{X}_1 + \sum_{l=1}^{j-1} \Lambda_l \hat{\mathbf{u}}_l$. Les trois variables aléatoires Λ_j , $A^{ab}(j)$ et $e_{ab}(\mathbf{r}_j)$ sont ainsi indépendantes.

On peut donc factoriser les moyennes dans la somme (3.42) :

$$\begin{aligned} \langle \Delta \phi_N(t) \rangle &= kt \sum_{j=1}^{N-1} \langle \Lambda_j A^{ab}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) \rangle \\ &= kt \sum_{j=1}^{N-1} \langle \Lambda_j \rangle \langle A^{ab}(j) \rangle \langle e_{ab}(\mathbf{r}_j) \rangle \end{aligned}$$

Les variables Λ_j suivant une loi exponentielle de paramètre l^* , on a $\langle \Lambda_j \rangle = l^*$. On peut montrer (voir annexe A) en faisant la moyenne sur la sphère unité que $\langle A^{ab}(j) \rangle = \frac{1}{3} \delta_{ab}$ où δ_{ab} désigne le symbole de Kronecker. Par ailleurs, $\sum_{a=x,y,z} e_{aa} = \nabla \cdot \mathbf{v}$ et ainsi on obtient :

$$\langle \Delta \phi_N(t) \rangle = \frac{1}{3} k t l^* \sum_{j=1}^{N-1} \langle \nabla \cdot \mathbf{v}(\mathbf{r}_j) \rangle \quad (3.45)$$

Pour un fluide incompressible, la moyenne de la variation de phase est donc nulle.

3.3.2.3 Variance de la variation de phase

D'après ce qui précède, dans le cas d'un fluide incompressible, le calcul de la variance de la variation de phase se ramène simplement au calcul de $\langle \Delta \phi_N^2(t) \rangle$. En reprenant l'expression (3.42) de la variation de phase, on a :

$$\Delta \phi_N^2(t) = k^2 t^2 \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{l=1}^{N-1} \Lambda_j \Lambda_l A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(l) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_l) \quad (3.46)$$

où on a toujours une sommation implicite sur les variables $a, b, \alpha, \beta \in \{x, y, z\}$. Pour faire la moyenne de cette quantité, on distingue le cas où $j = l$ et les cas où $j \neq l$:

$$\begin{aligned} \langle \Delta \phi_N^2(t) \rangle = k^2 t^2 & \left(2 \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{l>j}^{N-1} \langle \Lambda_j \Lambda_l A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(l) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_l) \rangle \right. \\ & \left. + \sum_{j=1}^{N-1} \langle \Lambda_j^2 A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_j) \rangle \right) \end{aligned} \quad (3.47)$$

Le calcul pour le cas $i = l$ se simplifie de la même manière que pour la moyenne de la variation de phase. En effet, on peut factoriser la moyenne car Λ_j^2 ne dépend que de Λ_j , $A^{ab}(j)A^{\alpha\beta}(j)$ ne dépend que de la variable aléatoires $\hat{\mathbf{u}}_j$ (autrement dit θ_j et φ_j) et enfin $e_{ab}(\mathbf{r}_j)e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_j)$ ne dépend que de $r_j = \mathbf{X}_1 + \sum_{l=1}^{j-1} \Lambda_l \hat{\mathbf{u}}_l$, autrement dit ni de $\hat{\mathbf{u}}_j$ ni de Λ_j . Les 3 "doubles termes" sont ainsi 3 variables aléatoires indépendantes et on peut écrire :

$$\sum_{j=1}^{N-1} \langle \Lambda_j^2 A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_j) \rangle = \sum_{j=1}^{N-1} \langle \Lambda_j^2 \rangle \langle A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(j) \rangle \langle e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_j) \rangle \quad (3.48)$$

Les Λ_j suivant une loi exponentielle de paramètre l^* , on a $\langle \Lambda_j^2 \rangle = 2l^{*2}$. On peut montrer (voir annexe A) en faisant la moyenne sur la sphère unité que $\langle A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(j) \rangle = \frac{1}{15} (\delta_{a\alpha} \delta_{b\beta} + \delta_{a\beta} \delta_{b\alpha} + \delta_{ab} \delta_{\alpha\beta})$.

Comme le tenseur des taux de déformation $\underline{\underline{e}}$ est symétrique, l'expression (3.48) se réécrit :

$$\begin{aligned} & \sum_{j=1}^{N-1} \langle \Lambda_j^2 \rangle \langle A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(j) \rangle \langle e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_j) \rangle \\ &= \frac{2l^{*2}}{15} \sum_{j=1}^{N-1} \langle 2e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) + e_{aa}(\mathbf{r}_j) e_{bb}(\mathbf{r}_j) \rangle \\ &= \frac{2l^{*2}}{15} \sum_{j=1}^{N-1} \left[2\langle e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) \rangle + \langle (\nabla \cdot \mathbf{v}(\mathbf{r}_j))^2 \rangle \right] \end{aligned} \quad (3.49)$$

Dans le cas où $j \neq l$, on peut seulement factoriser la moyenne des termes Λ_l , $A^{\alpha\beta}(l)$ et $\Lambda_j A^{ab}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_l)$, car la position \mathbf{r}_l dépend des variables aléatoires $\hat{\mathbf{u}}_j$, Λ_j et \mathbf{r}_j .

On a donc :

$$\begin{aligned}
& 2 \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{l>j}^{N-1} \langle \Lambda_j \Lambda_l A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(l) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_l) \rangle \\
&= 2 \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{l>j}^{N-1} \langle \Lambda_l \rangle \langle A^{\alpha\beta}(l) \rangle \langle \Lambda_j A^{ab}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_l) \rangle \\
&= 2 \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{l>j}^{N-1} \frac{l^*}{3} \delta_{\alpha\beta} \langle \Lambda_j A^{ab}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) e_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_l) \rangle \\
&= 2 \sum_{j=1}^{N-1} \sum_{l>j}^{N-1} \frac{l^*}{3} \langle \Lambda_j A^{ab}(j) e_{ab}(\mathbf{r}_j) (\nabla \cdot \mathbf{v}(\mathbf{r}_l)) \rangle
\end{aligned} \tag{3.50}$$

Dans le cas d'un écoulement incompressible, ce terme est donc nul.

Finalement, dans le cas d'un écoulement incompressible, seul le moment d'ordre 2 est non nul et est donné par l'expression (3.49) :

$$\langle \Delta \phi_N^2(t) \rangle = \frac{4(ktl)^2}{15} \sum_{j=1}^{N-1} \langle e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) \rangle \tag{3.51}$$

On notera la différence d'un facteur 2 avec l'équation (20) du premier article de Bicout et al. (1991) [33], corrigée dans leurs articles suivants [4, 34, 47]. L'équation (3.51) correspond par ailleurs à celle utilisée par Wu et al. (1990) [3]. Dans les deux cas, la somme porte néanmoins sur N termes contre $N - 1$ termes ici, ce qui constitue une simplification⁹ qui n'a été ni relevée ni soulignée. On supposera par la suite que la somme porte sur N termes, en ajoutant la contribution au niveau du diffuseur N . Cette approximation n'est évidemment valable que pour $N \gg 1$, comme d'autres faites précédemment :

$$\langle \Delta \phi_N^2(t) \rangle \approx \frac{4(ktl)^2}{15} \sum_{j=1}^N \langle e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) \rangle \tag{3.52}$$

La variance de la variation de phase dépend donc de la quantité $\sum_{j=1}^N \langle e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) \rangle$, qui traduit l'idée générale que les fluctuations dépendent du déplacement relatif des diffuseurs et donc du gradient de vitesse dans l'écoulement. $\langle e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) \rangle$ correspond à la valeur moyenne (sur les chemins de taille N) de la norme au carré du tenseur des taux de déformation au niveau du $j^{\text{ème}}$ diffuseur. En introduisant $P_{N,j}(\mathbf{r})$ la densité de probabilité

9. En effet, même si les cas du premier et du dernier diffuseur sont forcément soumis à des simplifications lorsqu'on calcule la variation de phase, il paraît plus naturel de ne considérer que $N - 1$ contributions du gradient, qui correspondent à $N - 1$ termes de différence de vitesse entre les N diffuseurs.

que le $j^{\text{ème}}$ diffuseur d'une marche aléatoire de N étapes se trouve en \mathbf{r} (à $d\mathbf{r}$ près), cela se réécrit :

$$\langle e_{ab}^2(\mathbf{r}_j) \rangle = \int_V P_{N,j}(\mathbf{r}) e_{ab}^2(\mathbf{r}) d^3r \quad (3.53)$$

où V désigne le volume contenant les diffuseurs. La variance de la variation de phase s'écrit alors :

$$\langle \Delta\phi_N^2(t) \rangle = \frac{4(ktl)^2}{15} \int_V \sum_{j=1}^N P_{N,j}(\mathbf{r}) e_{ab}^2(\mathbf{r}) d^3r \quad (3.54)$$

Si on définit $\rho_N(\mathbf{r}) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N P_{N,j}(\mathbf{r})$, alors $N\rho_N(\mathbf{r})d^3r$ correspond au nombre moyen de passages d'un photon en \mathbf{r} (à $d\mathbf{r}$ près) pour un chemin de taille N . $\rho_N(\mathbf{r})$ est donc la densité de probabilité de passage en \mathbf{r} pour un chemin de taille N . C'est cette quantité qui intervient dans la pondération du tenseur des taux de déformation et qui traduit que l'ordre dans lequel on considère les diffuseurs n'a pas d'impact dans la variation de phase, seule compte la somme totale des $N - 1$ contributions. On peut ainsi introduire la valeur pondérée de Γ sur les chemins de taille N , qu'on notera $\tilde{\Gamma}(N)$, définie par son carré :

$$\tilde{\Gamma}^2(N) = 2 \int_V \rho_N(\mathbf{r}) e_{ab}^2(\mathbf{r}) d^3r \quad (3.55)$$

Finalement, la variance de la variation de phase s'écrit comme :

$$\langle \Delta\phi_N^2(t) \rangle = \frac{2(ktl^*)^2}{15} \tilde{\Gamma}^2(N) N = 4 \frac{t^2}{\tau_G^2(N)} N \quad (3.56)$$

où on a défini le temps de corrélation $\tau_G(N)$ lié au gradient de vitesse dans l'écoulement pour un chemin de taille N :

$$\tau_G(N) = \frac{\sqrt{30}}{kl^*\tilde{\Gamma}(N)} \quad (3.57)$$

$\tau_G(N)$ correspond à la durée moyenne nécessaire pour que deux diffuseurs successifs, initialement distants de l^* , subissent un déplacement relatif d'une distance λ à cause du gradient de vitesse dans l'écoulement. Cette quantité dépend potentiellement de la taille N du chemin considéré, si le tenseur des taux de déformation est inhomogène.

Dans le cas d'une dynamique des diffuseurs due seulement à l'écoulement, l'expression de la fonction d'autocorrélation (3.25) devient donc :

$$g_1(t) = \sum_N P(N) \exp\left(-2 \frac{t^2}{\tau_G^2(N)} N\right) \quad (3.58)$$

Contrairement au cas du mouvement brownien (3.28), la décorrélation d'un chemin de taille N n'est pas en exponentielle du temps t , mais en exponentielle de t^2 . Cela engendre la principale difficulté dans la mise en place d'un dispositif expérimental de DWS pour l'étude des écoulements : pour des valeurs typiques de Γ , le signal d'intensité diffusée se décorrèle très rapidement. Les instruments de mesure de l'intensité diffusée doivent donc avoir une fréquence d'acquisition très élevée (typiquement, de l'ordre de 10^{-5} s) pour que cette décorrélation soit quantifiable. D'autre part, on remarque que la décorrélation d'un chemin de taille N n'est pas forcément proportionnelle à N , si le temps de corrélation $\tau_G(N)$ dépend effectivement de N . Nous reviendrons dans la suite de ce chapitre sur cette subtilité qui complique considérablement les calculs.

3.3.2.4 Cas général

Dans le cas général, les diffuseurs se déplacent à la fois à cause de leur mouvement brownien et à cause de l'écoulement. On supposera les deux contributions indépendantes¹⁰, on peut alors écrire la variation de phase globale comme la somme des deux contributions :

$$\Delta\phi_N(t) = - \sum_{j=1}^N \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta_B \mathbf{r}_j(t) - \sum_{j=1}^N \mathbf{q}_j(t_0 + t) \cdot \Delta_G \mathbf{r}_j(t) \quad (3.59)$$

où $\Delta_B \mathbf{r}_j(t)$ et $\Delta_G \mathbf{r}_j(t)$ désignent respectivement le déplacement du diffuseur j dû au mouvement brownien seul et dû à l'écoulement seul.

La moyenne de la variation de phase (3.59) est donc donnée par la somme des moyennes pour le mouvement brownien (3.26) et pour l'écoulement (3.45) :

$$\langle \Delta\phi_N(t) \rangle = 0 \quad (3.60)$$

Ces moyennes étant nulles, la variance de la variation de phase est directement donnée par la somme des variances pour le mouvement brownien (3.27) et pour l'écoulement (3.56) :

$$\langle \Delta\phi_N^2(t) \rangle = 4 \frac{t}{\tau_B} N + 4 \frac{t^2}{\tau_G^2(N)} N \quad (3.61)$$

Finalement, l'expression de la fonction d'autocorrélation (3.25) devient donc :

$$g_1(t) = \sum_N P(N) \exp \left[-2N \left(\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{\tau_G^2(N)} \right) \right] \quad (3.62)$$

10. On notera que pour Wu et al. (1990) [3] comme pour Bicout et Maret (1994) [4], cette indépendance est liée à la faible dispersion de Taylor, alors que celle-ci n'est pas applicable car le gradient de vitesse est ici déjà pris en compte et décrit par une dynamique balistique et non diffusive. La seule corrélation possible est en fait due à la température, qui pourrait être plus élevée dans les zones de forts gradients de vitesse et donc de forte dissipation, mais qu'on considère homogène dans l'écoulement.

Il faut désormais déterminer la probabilité $P(N)$ d'avoir un chemin de taille N .

3.4 Densité de probabilité de la longueur des chemins : équation de diffusion et résolution

3.4.1 Approximation continue

En posant $s = Nl^*$ la longueur totale moyenne d'un chemin de N pas, on peut réécrire cette somme sur le nombre de pas par une somme sur la longueur des chemins¹¹. En notant cette fois $P(s)$ la densité de probabilité qu'un chemin soit de longueur totale s , et en faisant l'approximation continue, la fonction d'autocorrélation du champ s'écrit finalement :

$$g_1(t) = \int_0^\infty P(s) \exp \left[-2 \frac{s}{l^*} \left(\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{\tau_G^2 (s/l^*)} \right) \right] ds \quad (3.63)$$

où on a remplacé la borne inférieure par 0 au lieu de l^* . Ce serait strictement exact si la densité de probabilité était nulle entre 0 et l^* , on verra plus loin qu'il s'agit surtout d'une approximation destinée à simplifier le calcul de g_1 . L'équation (3.63) constitue la base de la DWS, et traduit le fait qu'un chemin de taille s entraîne une décorrélation avec un temps typique t_s donné par $\frac{s}{l^*} \left(\frac{t_s}{\tau_B} + \frac{t_s^2}{\tau_G^2 (s/l^*)} \right) = 1$. Inversement, la valeur de g_1 au temps t_s traduit essentiellement la décorrélation liés aux chemins de longueur environ s .

On supposera dans la suite de cette section que que le temps de corrélation lié au gradient de vitesse dans l'écoulement ne dépend pas de la taille des chemins, autrement dit que $\tilde{\Gamma}$ ne dépend pas de la taille (ou longueur) des chemins. On le notera ainsi simplement τ_G . C'est par exemple le cas lorsque le gradient de vitesse est homogène dans l'échantillon. Le cas où $\tilde{\Gamma}$ et donc τ_G dépendent de la longueur des chemins est discuté en section 3.5. En effet, dans le cas où τ_G ne dépend pas de s , le problème se simplifie considérablement en remarquant que la fonction d'autocorrélation g_1 correspond en fait à la transformée de Laplace \mathcal{L} de la densité de probabilité de la longueur des chemins P :

11. On notera que cette longueur moyenne ne coïncide réellement avec la longueur du chemin que pour des chemins suffisamment longs. Par exemple, lorsqu'on considère un chemin avec un seul pas de diffusion, si le premier diffuseur est situé à une distance l^* des bords de l'échantillon, la longueur du chemin est alors de $2l^*$. En fait, cette approximation que la longueur d'un chemins s est proportionnelle à son nombre de pas N et l'approximation de diffusion entraînent des erreurs qui se compensent partiellement et permettent à la DWS d'avoir une précision de l'ordre de quelques % [55].

$$g_1(t) = \int_0^\infty P(s) \exp(-ps) ds = \mathcal{L}\{P(s)\}(p) \quad (3.64)$$

où l'argument dans l'exponentielle est donné par la quantité p :

$$p = \frac{2t}{l^* \tau_B} + \frac{2t^2}{l^* \tau_G^2} \quad (3.65)$$

Il suffit donc de déterminer $P(s)$, qui dépend la nature du faisceau incident (uniforme, ponctuel, gaussien, ...), de la géométrie d'intérêt (montage en rétrodiffusion ou en transmission) et des conditions aux limites associées, pour obtenir la forme analytique de la fonction d'autocorrélation g_1 .

3.4.2 Équation de diffusion et condition initiale

Pour obtenir la densité de probabilité de la longueur des chemins de diffusion $P(s)$, Pine et al. (1988) [2] utilisent l'expérience de pensée suivante : une impulsion instantanée de photons correspondant à de la lumière diffusée est "envoyé" dans le milieu, puis le temps mis par ces photons pour sortir du milieu est mesuré. Ce temps étant proportionnel à la distance parcourue dans le milieu par la lumière, on peut en déduire la distribution de longueur des chemins $P(s)$. Si on note $U(\mathbf{r}, t)$ la densité de lumière diffusée (ou la densité de photons correspondant à de la lumière diffusée) au point \mathbf{r} et à l'instant t , celle-ci obéit à l'équation de diffusion (2.33). On écrira l'impulsion instantanée de lumière diffusée comme la condition initiale :

$$U(\mathbf{r}, t = 0) = U_0(\mathbf{r}) \quad (3.66)$$

et comme il n'y a pas de production de photons après l'impulsion instantanée initiale, la source S est supposée nulle en tout point du milieu et à tout instant : $S(\mathbf{r}, t) = 0$. L'équation de diffusion (2.33) s'écrit donc simplement :

$$\frac{\partial U}{\partial t}(\mathbf{r}, t) - D_l \Delta U(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (3.67)$$

où on rappelle que le coefficient de diffusion de la lumière est donné par $D_l = \frac{l^* c}{3n}$.

Dans la suite on ne considérera que le cas 1D selon $\hat{\mathbf{x}}$, en supposant que le milieu est soit un milieu semi-infini avec une paroi plane, correspondant à $x \geq 0$, soit une tranche plane d'épaisseur finie L et d'extensions latérales selon $\hat{\mathbf{y}}$ et $\hat{\mathbf{z}}$ infinies, correspondant donc à $0 \leq x \leq L$. On supposera également que la source de lumière incidente (pas encore diffusée) dans l'expérience de DWS est une onde plane se propageant dans la direction $\hat{\mathbf{x}}$, donc uniforme selon $\hat{\mathbf{y}}$ et $\hat{\mathbf{z}}$, contrairement à une source ponctuelle ou

gaussienne¹². On considérera que cette lumière incidente devient de la lumière diffusée à partir du premier événement de diffusion et que celui-ci a lieu à une distance constante x_0 de la paroi d'incidence, x_0 étant de l'ordre de l^* . En effet, l'amélioration de ce modèle simpliste en utilisant une condition initiale pondérée sur la profondeur x par $\frac{1}{l^*} \exp(-x/l^*)$, n'a quasiment aucun impact sur la solution analytique si ce n'est d'en complexifier l'expression [56]. Autrement dit, on considère la condition initiale suivante¹³ : $U_0(x) = \delta(x - x_0)$. Le problème à une dimension avec condition initiale s'écrit ainsi :

$$\frac{\partial U}{\partial t}(x, t) - D_l \frac{\partial^2 U}{\partial x^2}(x, t) = 0 \quad (3.68)$$

$$U(x, t = 0) = \delta(x - x_0) \quad (3.69)$$

Pour déterminer $P(s)$, il suffit de prendre la part de la densité de lumière diffusée U au point de mesure x_m et à l'instant t correspondant aux chemins de longueur s , c'est-à-dire $t = s \frac{n}{c}$. Il faut ensuite diviser cette part par toute la densité de lumière diffusée qui atteint à un instant quelconque le point de mesure, pour que P soit bien une densité de probabilité :

$$P(s) = \frac{U(x_m, s \frac{n}{c})}{\int_0^\infty U(x_m, s \frac{n}{c}) ds} \quad (3.70)$$

On ne considérera dans la suite que le cas de la rétrodiffusion, c'est-à-dire lorsque la lumière diffusée est mesurée du même côté qu'elle a été envoyée. La raison est la suivante : en transmission, c'est-à-dire lorsque la lumière diffusée est mesurée de l'autre côté de l'échantillon, il faut typiquement $(L/l^*)^2$ pas de diffusions pour traverser l'échantillon. Le poids dans la distribution $P(s)$ est donc largement décalé vers les longs chemins, qui se décorrèlent beaucoup plus vite. Le temps de corrélation typique est donc beaucoup plus faible, trop faible en général pour être estimé avec les appareils de mesures actuels,

12. Une source uniforme (onde plane) ou ponctuelle étant une simplification théorique, il convient d'en discuter la validité [54]. On considère une expérience de DWS pour une tranche d'épaisseur finie L et d'extensions latérales L_s , avec comme source de lumière incidente un faisceau cylindrique uniforme de rayon r_f (ou de largeur de faisceau ω_0 pour un faisceau gaussien), avec $r_f < L_s$. On peut supposer la source ponctuelle :

- si $L_s > L \gg r_f$ en transmission,
- et si $r_f \ll l^*$ en rétrodiffusion.

A l'inverse, on peut supposer la source uniforme :

- si $L_s \gg r_f \gg L$ en transmission,
- et si $r_f \gg l^*$ en rétrodiffusion.

On sera ainsi toujours dans le cas d'une rétrodiffusion avec source uniforme dans nos expériences.

13. On notera qu'on a pris unitaire une grandeur de dimension J/m^2 dans la condition initiale, pour simplifier les notations par la suite. Le problème étant linéaire, U est simplement proportionnelle à cette grandeur, qui n'affecte donc pas P .

en particulier pour des écoulements dans des échantillons épais. Les solutions pour g_1 en l'absence d'écoulement dans une géométrie de transmission sont données dans plusieurs références, suivant les conditions aux limites choisies [2, 54].

On notera qu'en rétrodiffusion, pour un milieu semi-infini occupant l'espace $x \geq 0$, la totalité de la lumière "envoyée" par l'impulsion initiale atteint le point de mesure (si tant est que $x_m < x_0$), alors que ce n'est pas le cas pour une tranche d'épaisseur finie, puisqu'une partie de la lumière est transmise et donc perdue pour le capteur.

3.4.3 Conditions aux limites et solutions pour un milieu semi-infini

Dans cette section, on considère un milieu semi-infini occupant l'espace $x \geq 0$. Cette approximation sera en fait largement valable dans toutes nos expériences car l'épaisseur typique L de notre milieu sera largement supérieure à l^* et on utilisera les solutions en épaisseur finie seulement comme un moyen de mesure de l^* (voir section (3.4.4)). Toutes les solutions aux problèmes de diffusion présentées dans cette partie sont issues (après des calculs simples) du chapitre XIV.2 de l'ouvrage de référence "Conduction of Heat in Solids" de Carslaw et Jaeger (1959) [57].

3.4.3.1 Condition aux limites de paroi absorbante

La condition aux limites de paroi absorbante consiste à supposer que la densité de lumière diffusée est nulle à l'interface $x = 0$ du milieu. Il s'agit d'une condition aux limites de Dirichlet. Si c'est la plus simple et la première à avoir été formulée dans les problèmes de diffusion de la lumière, il est maintenant connu qu'elle donne de moins bons résultats que les conditions aux limites présentées dans la suite [31, 54]. Elle sert surtout d'illustration car les calculs en jeu sont plus simples à résoudre. Pour un milieu semi-infini occupant l'espace $x \geq 0$, les conditions aux limites s'écrivent ainsi :

$$\begin{aligned} U(x = 0, t) &= 0 \\ \lim_{x \rightarrow +\infty} U(x, t) &= 0 \end{aligned} \quad (3.71)$$

La solution du problème (équation de diffusion + condition initiale + conditions aux limites) est alors donnée par la méthode des "sources et puits" [57], avec une source en $x = x_0$ et un puits en $x = -x_0$:

$$U(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D_l t}} \left(\exp \left[-\frac{(x - x_0)^2}{4D_l t} \right] - \exp \left[-\frac{(x + x_0)^2}{4D_l t} \right] \right) \quad (3.72)$$

Par définition, à tout instant t , $U(x = 0, t) = 0$. On comprend donc que dans ce cas, notre point de mesure ne peut être à l'interface, car on aurait $P(s) = 0$ pour toute

longueur de chemin s . Pine et al. (1988) [2] proposent donc que le point de mesure soit situé en $x_m = l^*$, considérant que la lumière est perdue pour la diffusion dès lors qu'elle se situe à une distance inférieure à l^* de la paroi. Ils considèrent par ailleurs que la source de lumière diffusée se situe à une distance $x_0 = \gamma l^*$ de la paroi¹⁴ avec γ de l'ordre de 1, mais strictement supérieur à 1. Le coefficient de normalisation pour la densité de probabilité est donné par (3.70) et vaut ici $1/3$. En remplaçant $D_l t$ par $sl^*/3$, P est alors donnée par :

$$P(s) = \frac{1}{2\sqrt{3\pi sl^*}} \left(\exp \left[-\frac{3(1-\gamma)^2 l^*}{4s} \right] - \exp \left[-\frac{3(1+\gamma)^2 l^*}{4s} \right] \right) \quad (3.73)$$

La fonction d'autocorrélation du champ s'obtient avec (3.64) :

$$g_1(t) = \frac{1}{\sqrt{3l^*p}} \exp \left(-\gamma \sqrt{3l^*p} \right) \sinh \left(\sqrt{3l^*p} \right) \quad (3.74)$$

où on rappelle que p est donné par $p = \frac{2t}{l^* \tau_B} + \frac{2t^2}{l^* \tau_G^2}$.

Dans la limite des temps courts ($p \ll 1$, autrement dit $t \ll \tau_B$ et $t \ll \tau_G$), on trouve un comportement exponentiel de $-\sqrt{p}$ donné par :

$$g_1(t) \approx g_{1,exp}(t) = \exp \left(-\gamma \sqrt{3l^*p} \right) \quad (3.75)$$

qui est en fait la forme systématiquement mesurée expérimentalement dans la littérature (avec une dynamique purement brownienne, donc $p = 2t/\tau_B$), avec une précision à 10^{-3} près [54].

Si on avait calculé directement la densité de probabilité P à partir de l'expression exponentielle (3.75) en utilisant la transformée de Laplace inverse, avec $P(s) = \mathcal{L}^{-1}\{g_1(t)\}$, on aurait obtenu :

$$P_{exp}(s) = \frac{\gamma}{2} \sqrt{\frac{3l^*}{\pi s^3}} \exp \left(-\frac{3\gamma^2 l^*}{4s} \right) \quad (3.76)$$

ce qui correspond à la limite de (3.73) dans la limite des chemins longs ($s \gg l^*$). Ce n'est pas une surprise car l'opération de transformée de Laplace fait que les chemins longs ont du poids essentiellement aux temps courts. En effet, aux temps courts, les chemins courts n'ont pas eu le temps de produire une différence de phase de l'ordre de $\lambda/2$, alors que c'est le cas pour les chemins longs. Inversement, aux temps longs, la décorrélation est principalement le reflet de la différence de phase des chemins courts.

14. On notera que Bicout et al. (1991) [33] proposent l'inverse : $x_m = \gamma l^*$ et $x_0 = l^*$.

Si l'expression (3.74) correspond bien au comportement observé expérimentalement aux temps courts, les conditions aux limites de paroi absorbantes restent peu convaincantes d'un point de vue théorique et ont depuis été abandonnées au profit des conditions aux limites en termes de flux.

3.4.3.2 Condition aux limites de flux net à la paroi : formulation de Robin

La condition aux limites de flux net consiste à considérer non pas la densité de lumière diffusée, mais le flux de lumière diffusée à l'interface du milieu. Ce flux J est donné par [29, 58] :

$$J_-(x, t) = \frac{v}{4}U(x, t) + \frac{D_l}{2} \frac{\partial U}{\partial x}(x, t) \quad (3.77)$$

$$J_+(x, t) = \frac{v}{4}U(x, t) - \frac{D_l}{2} \frac{\partial U}{\partial x}(x, t) \quad (3.78)$$

où J_- désigne le flux dans le sens des x croissants et J_+ le flux dans le sens des x décroissants. Dans un premier temps [35], il a été considéré que le flux de lumière diffusé entrant dans le milieu en $x = 0$ devait être nul. La condition aux limites de flux net dans le milieu semi-infini est donc une condition aux limites de Robin. Les conditions aux limites s'écrivent dans ce cas :

$$\begin{aligned} U(x = 0, t) - \frac{2l^*}{3} \frac{\partial U}{\partial x}(x = 0, t) &= 0 \\ \lim_{x \rightarrow +\infty} U(x, t) &= 0 \end{aligned} \quad (3.79)$$

Il est néanmoins possible que le flux de lumière diffusée entrant dans le milieu soit non nul. C'est notamment le cas si le milieu extérieur n'est pas de même indice puisqu'il y a alors de la réflexion à l'interface. Le plus simple reste de définir un coefficient de réflexion effectif à la paroi noté R_{eff} représentant la part moyenne du flux de lumière diffusée qui est réfléchi. On a alors $J_+ = R_{eff}J_-$ en $x = 0$. On notera x_e la distance définie par :

$$x_e = \frac{2l^*}{3} \frac{1 + R_{eff}}{1 - R_{eff}} \quad (3.80)$$

telle que les conditions aux limites avec réflexion à la paroi s'écrivent :

$$\begin{aligned} U(x = 0, t) - x_e \frac{\partial U}{\partial x}(x = 0, t) &= 0 \\ \lim_{x \rightarrow +\infty} U(x, t) &= 0 \end{aligned} \quad (3.81)$$

La solution du problème est dans ce cas donnée¹⁵ par :

15. Dans ce cas, la méthode d'obtention de U consiste en fait à passer dans le domaine de Laplace. C'est pour cela que le calcul de g_1 ne nécessite pas forcément le calcul de U et de

$$U(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D_l t}} \left(\exp \left[-\frac{(x - x_0)^2}{4D_l t} \right] + \exp \left[-\frac{(x + x_0)^2}{4D_l t} \right] \right) - \frac{1}{x_e} \exp \left(\frac{D_l t}{x_e^2} + \frac{x + x_0}{x_e} \right) \operatorname{erfc} \left(\frac{x + x_0}{\sqrt{4D_l t}} + \frac{\sqrt{D_l t}}{x_e} \right) \quad (3.82)$$

Pour obtenir $P(s)$, il suffit de décider d'un point de mesure. Dans le cas des conditions aux limites de flux, rien ne nous empêche de prendre le point de mesure le plus logique, à savoir la surface ($x_m = 0$). Le coefficient de normalisation défini par (3.70) vaut ici $l^*/(3x_e)$, on a alors :

$$P(s) = \frac{l^*}{3x_e} \exp \left(-\frac{3x_0^2}{4sl^*} \right) \left(\sqrt{\frac{3}{\pi sl^*}} - \frac{1}{x_e} \exp(X^2) \operatorname{erfc}(X) \right) \quad (3.83)$$

où $X = \frac{x_0}{2} \sqrt{\frac{3}{sl^*}} + \frac{1}{x_e} \sqrt{\frac{sl^*}{3}}$. La fonction d'autocorrélation g_1 est alors donnée par :

$$g_1(t) = \frac{\exp \left(-\frac{x_0}{l^*} \sqrt{3l^* p} \right)}{1 + \frac{x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p}} \quad (3.84)$$

Dans la limite des temps courts ($p \ll 1$, autrement dit $t \ll \tau_B$ et $t \ll \tau_G$), on retrouve de nouveau un comportement proche d'une exponentielle de $-\sqrt{p}$:

$$g_1(t) \approx \exp \left(-\frac{x_0 + x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p} \right) \quad (3.85)$$

Dans la limite des temps courts, autrement dit des chemins les plus longs, les conditions aux limites de paroi absorbante et de flux net à la paroi donnent une solution proche, pour peu que l'on choisisse :

$$\gamma = \frac{x_0 + x_e}{l^*} = 1 + \frac{2}{3} \frac{1 + R_{eff}}{1 - R_{eff}} \quad (3.86)$$

3.4.3.3 Condition aux limites de flux net à la paroi : formulation extrapolée de Dirichlet

Cette condition aux limites de flux net peut se réécrire sous la forme d'une condition aux limites de Dirichlet, permettant de simplifier certains calculs en l'extrapolant en $x = -x_e$. Un développement de Taylor à l'ordre 1 de l'équation à la paroi (3.81) donne alors directement les conditions aux limites suivantes :

$$U(x = -x_e, t) = 0 \quad \lim_{x \rightarrow +\infty} U(x, t) = 0 \quad (3.87)$$

P(s) et qu'il n'est pas donné dans certaines références : on obtient g_1 directement à partir de la transformée de Laplace de l'équation de diffusion dont U est solution, avant de normaliser pour avoir $g_1(0) = 1$.

La distance x_e s'interprète donc comme la distance à la paroi, vers le milieu extérieur, pour laquelle la densité de lumière diffusée est nulle : elle est ainsi généralement appelée longueur d'extrapolation. L'équation (3.87) est l'analogie des conditions aux limites pour une paroi absorbante (3.71), décalée dans l'espace. On garde la même source en $x = x_0$ et on décale le puits en $x = -x_0 - 2x_e$, de telle sorte que la solution est nulle en $x = -x_e$. La solution du problème est donc donnée par :

$$U(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D_l t}} \left(\exp \left[-\frac{(x - x_0)^2}{4D_l t} \right] - \exp \left[-\frac{(x + x_0 + 2x_e)^2}{4D_l t} \right] \right) \quad (3.88)$$

De la même manière que dans la formulation de Robin, le point de mesure peut logiquement être choisi à la paroi : $x_m = 0$. Le facteur de normalisation étant dans ce cas de nouveau égal à $l^*/(3x_e)$, $P(s)$ s'écrit :

$$P(s) = \frac{l^*}{2x_e \sqrt{3\pi s l^*}} \left(\exp \left(-\frac{3x_0^2}{4s l^*} \right) - \exp \left[-\frac{3(x_0 + 2x_e)^2}{4s l^*} \right] \right) \quad (3.89)$$

Enfin, la fonction de corrélation g_1 qu'on obtient dans ce cas est la suivante :

$$g_1(t) = \frac{l^*}{x_e \sqrt{3l^* p}} \exp \left(-\frac{x_0 + x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p} \right) \sinh \left(\frac{x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p} \right) \quad (3.90)$$

Dans la limite des temps courts ($p \ll 1$, autrement dit $t \ll \tau_B$ et $t \ll \tau_G$), elle a le même comportement en exponentielle de $-\sqrt{p}$ que pour la formulation de Robin :

$$g_1(t) \approx \exp \left(-\frac{x_0 + x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p} \right) \quad (3.91)$$

3.4.3.4 Comparaison des différentes solutions et limites de l'approximation de diffusion en rétrodiffusion

Le comportement en exponentielle de $-\sqrt{p}$ de la fonction d'autocorrélation du champ g_1 (expression (3.75)) est la forme systématiquement mesurée expérimentalement dans la littérature (avec une dynamique purement brownienne, donc $p = 2t/\tau_B$), avec une précision à 10^{-3} près [54]. On peut donc comparer les solutions théoriques pour la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité $g_i(t) = |g_1(t)|^2$ correspondant aux différentes conditions aux limites à cette référence expérimentale. On supposera dorénavant que dans les conditions aux limites de flux net on a $x_0 = l^*$, c'est-à-dire que la source de lumière diffusée est exactement située en l^* (pour la condition de paroi absorbante, on a toujours $x_0 = \gamma l^*$). Pour comparer ces solutions, on peut se placer dans le cas sans réflexion : $R_{eff} = 0$ et donc $x_e = \frac{2}{3}l^*$ pour les conditions aux limites de flux net (nul ici) à la paroi. La valeur correspondante à la même décorrélation aux temps courts pour la condition aux limites de paroi absorbante est donnée par (3.86)

$\gamma = 5/3$. On observe sur la figure 3.4 que les différentes solutions de g_i sont toutes très proches pour des temps courts (ce qui est normal puisqu'on a imposé cette contrainte), et s'éloignent les unes des autres pour des temps plus longs. Sans surprise, la condition de paroi absorbante offre le moins bon accord aux temps longs. Plus surprenant, la condition de flux net en formulation extrapolée de Dirichlet donne de meilleurs résultats que la formulation non-approximée de Robin, elle est d'ailleurs majoritairement utilisée dans les problèmes de diffusion de la lumière aujourd'hui.

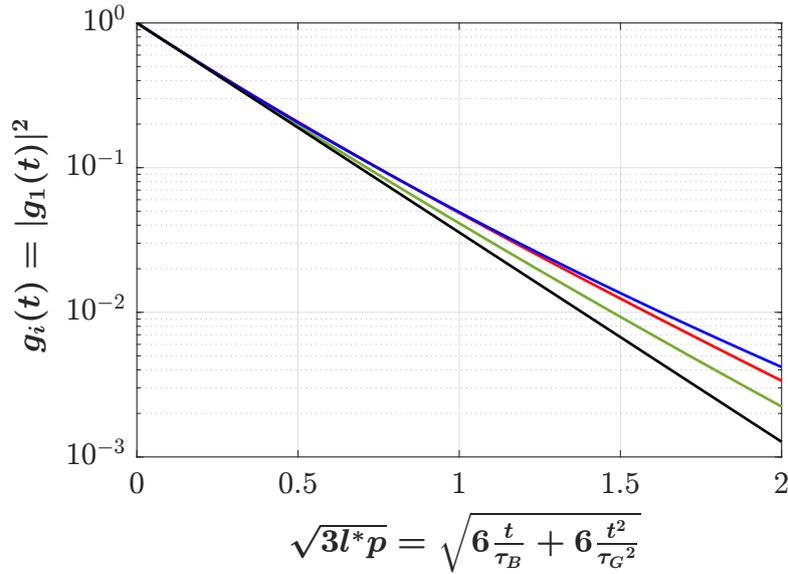


FIGURE 3.4 – Fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité $g_i(t) = |g_1(t)|^2$ pour différentes conditions aux limites dans un milieu semi-infini, en l'absence de réflexion à la paroi : $R_{eff} = 0$ et donc et donc $x_e = \frac{2}{3}l^*$ pour la condition de flux net nul à la paroi, avec la formulation de Robin (3.84) en rouge ou celle extrapolée de Dirichlet (3.90) en vert. Pour avoir la même décorrélation aux temps courts, on fixe la valeur de γ à $(x_0 + x_e)/l^* = 5/3$ pour la condition de paroi absorbante (3.74) en bleu. La référence expérimentale (3.75) en noir correspond à une exponentielle de $-\sqrt{p}$.

Il est également intéressant de comparer les solutions pour la densité de probabilité de longueur des chemins $P(s)$ avec les différentes conditions aux limites (figure 3.5), on observe des différences pour les chemins courts. En particulier, la densité de probabilité de longueur des chemins correspondant à une décorrélation en exponentielle de $-\sqrt{p}$ présente légèrement moins de chemins très courts. Ces chemins, plus présents dans les autres distributions, sont forcément mal décrits par l'expression intégrale (3.64) de g_1 , puisqu'on a supposé à plusieurs reprises dans cette partie théorique $N \gg 1$, autrement

dit $s \gg l^*$. Ce problème connu de l'approximation de diffusion, à savoir qu'elle surestime le poids des chemins très courts [59, 60], est particulièrement marqué en géométrie de rétrodiffusion. En effet, dans cette géométrie, rien n'empêche a priori de mesurer des chemins de diffusion extrêmement courts, possiblement avec un seul pas de diffusion. En revanche, la corrélation étant toujours la même aux temps courts, on a le même comportement pour les chemins longs, en $(s/l^*)^{-3/2}$, quelque soient les conditions aux limites choisies.

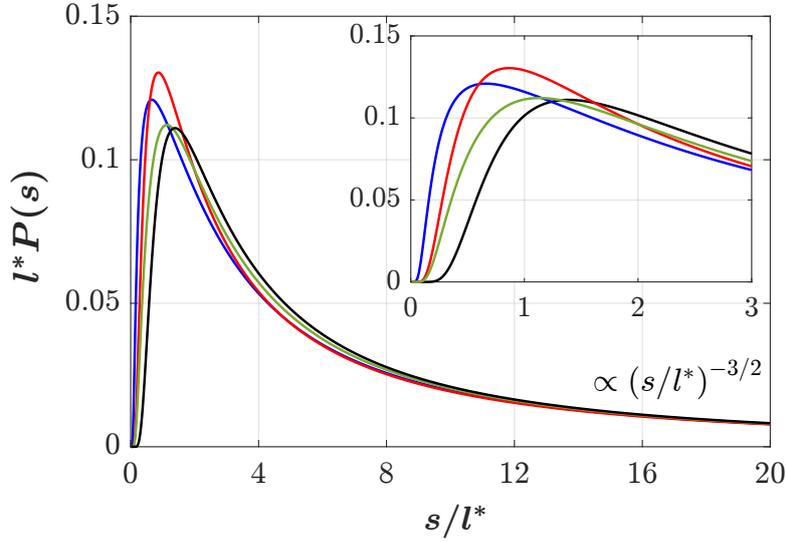


FIGURE 3.5 – Densité de probabilité de longueur des chemins adimensionnée pour un milieu semi-infini pour différentes conditions aux limites : flux net à la paroi avec la formulation de Robin (3.83) en rouge ou la formulation extrapolée de Dirichlet (3.89) en vert, paroi absorbante (3.73) en bleu, et enfin correspondant à la transformée de Laplace inverse d'une exponentielle (3.76) en noir. La valeur de x_e est fixée à $2l^*/3$, soit un cas sans réflexion : $R_{eff} = 0$. Pour avoir le même pré-facteur sur les chemins longs, la valeur de γ est fixée à $(x_0 + x_e)/l^* = 5/3$. L'encadré fait un zoom sur les chemins les plus courts, où l'approximation de diffusion fait nécessairement défaut et où les différences sont marquées, contrairement aux chemins longs pour lesquels on a le même comportement en $(s/l^*)^{-3/2}$.

3.4.3.5 Impact des réflexions à la paroi et de la polarisation

Le poids des chemins courts est néanmoins diminué grâce à deux effets : les réflexions à la paroi et la sélection d'une polarisation du champ diffusé au niveau du capteur¹⁶.

D'une part, la présence d'une différence d'indice entre le milieu de l'échantillon et le milieu extérieur entraîne des réflexions de photons à la paroi, et rallonge donc en moyenne les chemins de diffusions. Cela s'observe facilement en comparant les densités de probabilité de longueur de chemin pour différents coefficients de réflexion R_{eff} . Le coefficient de réflexion effectif R_{eff} peut en effet être calculé simplement à partir des deux indices en jeu : l'indice du milieu extérieur n_{ext} et l'indice du milieu diffusant [31]. Le tableau 3.1 donne, pour différents indices couramment rencontrés expérimentalement, les valeurs de R_{eff} , de la distance adimensionnée $x_e/l^* = \frac{2}{3} \frac{1+R_{eff}}{1-R_{eff}}$, ainsi que du coefficient $\gamma = 1 + x_e/l^*$ correspondant pour avoir le même pré-facteur sur les chemins longs (i.e. la même décorrélation aux temps courts).

Grandeur	$n = n_{ext}$	$n = 1.33$, $n_{ext} = 1$	$n = 1.33$, $n_{ext} = 1.5$
R_{eff}	0	0.431	0.022
x_e/l^*	2/3	1.677	0.697
γ	5/3	2.677	1.697

TABLE 3.1 – Valeur des grandeurs caractérisant la réflexion à la paroi, et donc la densité de probabilité de longueur des chemins ainsi que la fonction d'autocorrélation, pour différents indices du milieu diffusant n et du milieu extérieur n_{ext} .

La figure 3.6 illustre la différence pour la densité de probabilité de longueur des chemins $P(s)$ et pour la fonction d'autocorrélation $g_i(t)$ dans ces différents cas, en utilisant la forme correspondant à une exponentielle en $-\sqrt{p}$. Plus le coefficient de réflexion effectif R_{eff} est élevé, plus la distribution de longueur des chemins penche vers les chemins plus longs, et donc plus la décorrélation est rapide. Les différentes approximations faites dans cette partie théorique, y compris l'approximation de diffusion [31], sont ainsi plus légitimes lorsque le coefficient de réflexion effectif est significatif.

D'autre part, dans toute l'approche de la DWS, l'impact de la polarisation n'est pas décrite. Hors la mémoire de la polarisation initiale du faisceau incident n'est perdue

16. La prise en compte de ces deux effets n'offre pas d'amélioration significative dans l'accord entre les solutions théoriques de g_1 et la décroissance exponentielle observée expérimentalement, mais a le mérite de légitimer l'approximation de diffusion en favorisant les chemins plus longs.

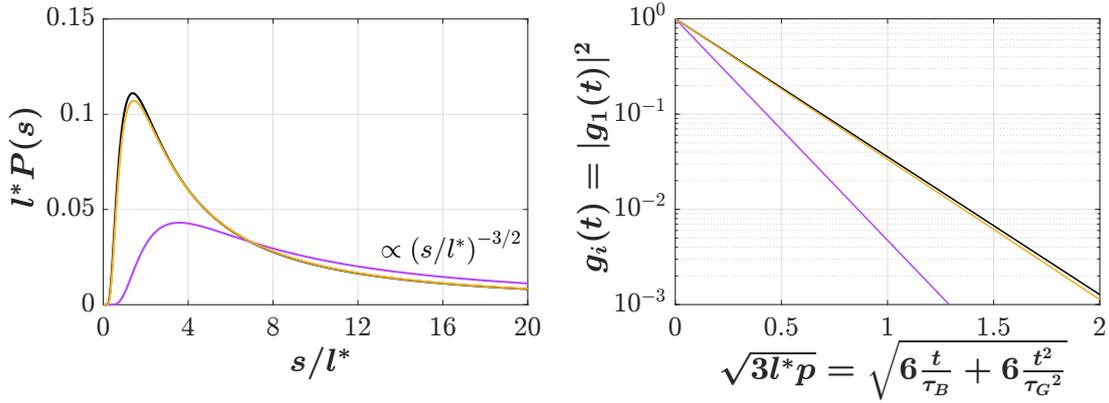


FIGURE 3.6 – Densité de probabilité de la longueur des chemins adimensionnée donnée par l'expression (3.76) et fonction d'autocorrélation de l'intensité $g_i(t) = |g_1(t)|^2$ correspondant à l'expression exponentielle (3.75) pour différentes valeurs d'indices du milieu diffusant n et du milieu extérieur n_{ext} . En noir, le cas $n = n_{ext}$ correspondant à l'absence de réflexion : $R_{eff} = 0$ et donc $x_e/l^* = 2/3$ et $\gamma = 5/3$. En violet, le cas d'un fluide d'indice $n = 1.33$ entouré d'air d'indice $n_{ext} = 1$: $R_{eff} = 0.431$, d'où $x_e/l^* = 1.677$ et $\gamma = 2.677$. Enfin, en jaune, le cas d'un fluide d'indice $n = 1.33$ entouré de verre d'indice $n_{ext} = 1.5$: $R_{eff} = 0.022$, d'où $x_e/l^* = 0.697$ et $\gamma = 1.697$.

qu'après plusieurs événements de diffusion isotrope [54, 60], autrement dit pour des chemins de longueur s plus grande que l^* , contrairement à la direction de propagation, qui est elle rendue aléatoire au bout d'une distance l^* . Expérimentalement, il est souvent bénéfique de placer un polariseur croisé par rapport à la polarisation du faisceau incident pour être certain de ne récupérer que de la lumière diffusée, et pas de la lumière réfléchiée sur les diverses interfaces en jeu.

La présence de ce polariseur a néanmoins un autre impact : puisque la polarisation "incidente" n'est perdue qu'après plusieurs événements de diffusion, les courts chemins de diffusion sont, en proportion, plus supprimés que les chemins longs, qui ont eux rendue totalement aléatoire la polarisation. Ainsi, la présence d'un polariseur en configuration croisée favorise les chemins longs et décale $P(s)$ vers les chemins plus longs, tandis qu'un polariseur en configuration parallèle par rapport à la polarisation incidente aura l'effet inverse. De plus, cet effet se trouve être très simple : il augmente (ou diminue) simplement la valeur de la pente à l'origine dans la fonction d'autocorrélation, autrement dit la valeur de γ (ou de manière équivalente, celle de x_e ou R_{eff}). Ainsi, si on note γ_{nat} , γ_{\perp} et γ_{\parallel} les valeurs de γ correspondantes respectivement à l'absence de polariseur (lumière dite "naturelle"), à la présence d'un polariseur croisé et à celle d'un polariseur

parallèle, on observe qualitativement et quantitativement ¹⁷ [54, 60, 61] :

$$\gamma_{\parallel} < \gamma_{nat} < \gamma_{\perp} \quad (3.92)$$

La présence de réflexion et d'un polariseur croisé favorise donc les chemins plus longs et légitime qualitativement les différentes approximations effectuées dans cette partie. De plus, ces deux effets se traduisent directement dans la valeur de γ , qu'on définira désormais comme l'argument dans la fonction d'autocorrélation sous forme exponentielle (3.75), hors facteur $\sqrt{3l^*p}$. Malgré tous les progrès effectués depuis les débuts de la DWS dans l'interprétation de γ , la prise en compte conjointe des effets de conditions aux limites et de polarisation n'est pas encore validée. Il est ainsi plus sûr de déterminer sa valeur expérimentalement, en réalisant une mesure de DWS dans le fluide diffusant d'intérêt en l'absence d'écoulement ($\tau_G = \infty$), de telle sorte que la fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité $|g_i(t) = g_1(t)|^2$ soit simplement donnée par :

$$g_i(t) = \exp\left(-2\gamma\sqrt{6\frac{t}{\tau_B}}\right) \quad (3.93)$$

Si on connaît τ_B , on peut ainsi déduire la valeur de γ . Dans chacune de nos expériences, on placera un polariseur croisé pour favoriser les chemins longs et ainsi un peu plus justifier l'usage de l'approximation de diffusion, comme dans les expériences de Wu et al. (1990) [3] et contrairement à celle de Bicout et Maret (1994) [4]. On notera ainsi simplement $\gamma = \gamma_{\perp}$.

3.4.4 Conditions aux limites et solutions pour une tranche d'épaisseur finie

On donnera dans cette section les solutions pour la densité de lumière diffusée U , la densité de probabilité de longueur des chemins P et la fonction d'autocorrélation du champ g_1 , dans le cas d'un milieu correspondant à une tranche d'épaisseur L occupant l'espace $0 \leq x \leq L$.

3.4.4.1 Conditions aux limites de parois absorbantes

Les conditions aux limites s'écrivent dans ce cas :

$$\begin{aligned} U(x = 0, t) &= 0 \\ U(x = L, t) &= 0 \end{aligned} \quad (3.94)$$

17. Un bon accord quantitatif entre des résultats expérimentaux, des simulations numériques et un modèle simple basé sur le facteur d'anisotropie g des diffuseurs est présenté dans la référence [61]. Néanmoins, en l'absence de connaissance précise de g dans nos expériences avec la suspension de TiO_2 , nous décrivons ici simplement l'aspect qualitatif, le facteur γ étant de toute manière, in fine, déterminé expérimentalement.

On obtient alors :

$$U(x, t) = \frac{2}{L} \sum_{n=1}^{\infty} \sin\left(\frac{n\pi x}{L}\right) \sin\left(\frac{n\pi x_0}{L}\right) \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D_l t}{L^2}\right) \quad (3.95)$$

$$P(s) = \frac{\pi^2 l^* \sum_{n=1}^{\infty} \sin\left(\frac{n\pi l^*}{L}\right) \sin\left(\frac{n\pi \gamma l^*}{L}\right) \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 l^* s}{3L^2}\right)}{3L^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \sin\left(\frac{n\pi l^*}{L}\right) \sin\left(\frac{n\pi \gamma l^*}{L}\right)} \quad (3.96)$$

$$g_1(t) = \frac{\sinh(\sqrt{3l^*p}) \sinh\left(\frac{L-\gamma l^*}{l^*} \sqrt{3l^*p}\right)}{\left(1 - \frac{\gamma l^*}{L}\right) \sqrt{3l^*p} \sinh\left(\frac{L}{l^*} \sqrt{3l^*p}\right)} \quad (3.97)$$

3.4.4.2 Conditions aux limites de flux net à la paroi : formulation de Robin

Les conditions aux limites s'écrivent dans ce cas :

$$\begin{aligned} U(x=0, t) - x_e \frac{\partial U}{\partial x}(x=0, t) &= 0 \\ U(x=L, t) + x_e \frac{\partial U}{\partial x}(x=L, t) &= 0 \end{aligned} \quad (3.98)$$

On obtient alors :

$$U(x, t) = 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\exp(-\alpha_n^2 D_l t)}{L + 2x_e + \alpha_n^2 x_e^2 L} [\alpha_n x_e \cos(\alpha_n x) + \sin(\alpha_n x)] [\alpha_n x_e \cos(\alpha_n x_0) + \sin(\alpha_n x_0)] \quad (3.99)$$

où α_n est la valeur absolue de la n-ème racine de l'équation en α :

$$\tan(\alpha L) = \frac{2\alpha x_e}{\alpha^2 x_e^2 - 1} \quad (3.100)$$

$$P(s) \propto 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\alpha_n x_e \exp(-\alpha_n^2 s l^* / 3)}{L + 2x_e + \alpha_n^2 x_e^2 L} [\alpha_n x_e \cos(\alpha_n x_0) + \sin(\alpha_n x_0)] \quad (3.101)$$

$$g_1(t) = \frac{L + 2x_e}{L - x_0 + x_e} \frac{\sinh\left(\frac{L-x_0}{l^*} \sqrt{3l^*p}\right) + \frac{x_e}{l^*} \sqrt{3l^*p} \cosh\left(\frac{L-x_0}{l^*} \sqrt{3l^*p}\right)}{\left(1 + \left(\frac{x_e}{l^*}\right)^2 3l^*p\right) \sinh\left(\frac{L}{l^*} \sqrt{3l^*p}\right) + 2\frac{x_e}{l^*} \sqrt{3l^*p} \cosh\left(\frac{L}{l^*} \sqrt{3l^*p}\right)} \quad (3.102)$$

3.4.4.3 Conditions aux limites de flux net à la paroi : formulation extrapolée de Dirichlet

Les conditions aux limites s'écrivent dans ce cas :

$$\begin{aligned} U(x = -x_e, t) &= 0 \\ U(x = L + x_e, t) &= 0 \end{aligned} \quad (3.103)$$

On obtient alors¹⁸ :

$$U(x, t) = \frac{2}{L + 2x_e} \sum_{n=1}^{\infty} \sin\left(\frac{n\pi(x + x_e)}{L + 2x_e}\right) \sin\left(\frac{n\pi(x_0 + x_e)}{L + 2x_e}\right) \exp\left(-\frac{n^2\pi^2 D_l t}{(L + 2x_e)^2}\right) \quad (3.104)$$

$$P(s) = \frac{\pi^2 l^*}{3(L + 2x_e)^2} \frac{\sum_{n=1}^{\infty} \sin\left(\frac{n\pi x_e}{L + 2x_e}\right) \sin\left(\frac{n\pi(x_0 + x_e)}{L + 2x_e}\right) \exp\left(-\frac{n^2\pi^2 l^* s}{3(L + 2x_e)^2}\right)}{\sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \sin\left(\frac{n\pi x_e}{L + 2x_e}\right) \sin\left(\frac{n\pi(x_0 + x_e)}{L + 2x_e}\right)} \quad (3.105)$$

$$g_1(t) = \frac{\sinh\left(\frac{x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p}\right) \sinh\left(\frac{L + x_e - x_0}{l^*} \sqrt{3l^* p}\right)}{\left(1 - \frac{x_0 + x_e}{L + 2x_e}\right) \frac{x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p} \sinh\left(\frac{L + 2x_e}{l^*} \sqrt{3l^* p}\right)} \quad (3.106)$$

3.4.4.4 Comparaison avec les solutions en milieu semi-infini

Toutes les solutions en tranche d'épaisseur finie L dépendent du paramètre L/l^* et convergent vers les solutions en milieu semi-infini lorsque $L/l^* \rightarrow \infty$. La différence pour la densité de probabilité de la longueur des chemins entre le milieu semi-infini et une tranche d'épaisseur finie se comprend de la manière suivante : les longs chemins de diffusion vont avoir tendance à être transmis en $x = L$, et donc perdus pour la rétrodiffusion. La contribution des chemins longs est donc tronquée et $P(s)$ est plus concentrée sur les chemins courts que dans le cas semi-infini. La figure 3.7 illustre cet effet pour $L/l^* = 25$ et $L/l^* = 81$, qui correspondent respectivement aux ratios dans nos expériences de DWS sur l'écoulement de Taylor-Couette, pour les deux fluides utilisés (suspension de TiO_2 et émulsion lipidique). Les expressions correspondent aux conditions aux limites de flux net nul (cas sans réflexion) en formulation extrapolée de Dirichlet (3.105), l'effet restant qualitativement le même quelque soient les conditions aux limites choisies. Le comportement en $(s/l^*)^{-3/2}$ disparaît pour les chemins suffisamment longs, précisément lorsque s/l^* devient de l'ordre de $(L/l^*)^2$. En effet, dans une marche aléatoire, la longueur typique d'un chemin qui atteint la profondeur $x = L$ et donc la paroi opposée est

18. On notera l'erreur dans la formule (A.1) de l'article en annexe C pour la distribution de la longueur des chemins $P(s)$ par rapport à la bonne formule présentée ici.

de L^2/l^* . Le poids de ces longs chemins chute donc d'autant plus "tôt" que L/l^* est faible.

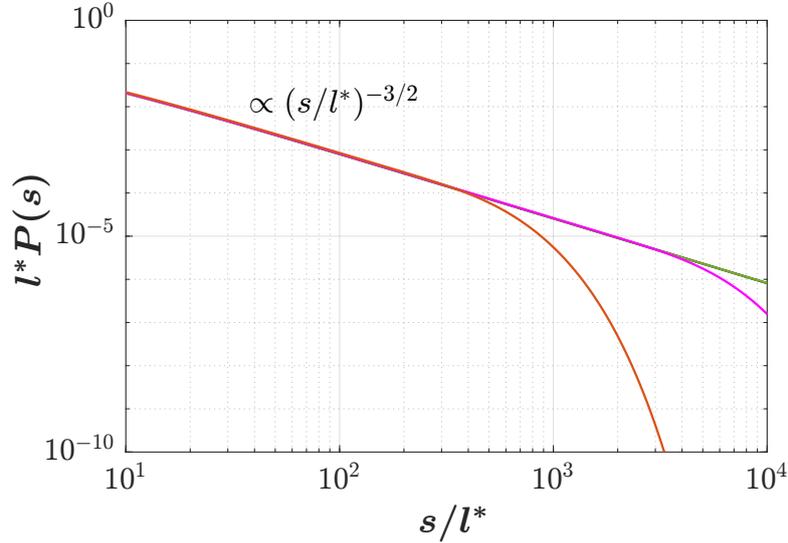


FIGURE 3.7 – Densité de probabilité de longueur des chemins adimensionnée pour une tranche d'épaisseur finie L , pour différents ratios L/l^* . Les conditions aux limites sont celles d'un flux net nul à la paroi (pas de réflexion), avec la formulation extrapolée de Dirichlet. La courbe verte correspond au cas du milieu semi-infini (expression (3.89)) et est indiscernable sur cette figure de l'expression (3.76) obtenue par transformée de Laplace inverse d'une exponentielle. Le cas d'une tranche d'épaisseur finie (expression (3.105)) est illustré avec les courbes magenta ($L/l^* = 81$) et orange ($L/l^* = 25$).

Ces différences se traduisent dans la fonction d'autocorrélation g_i comme le montre la figure 3.8. Aux temps courts, correspondant aux chemins longs, on observe une différence de courbure par rapport au cas du milieu semi-infini, et pour des temps d'autant plus grands que le ratio L/l^* est faible. Précisément, ces effets sont perceptibles pour $\sqrt{3l^*p} \leq l^*/L$. Aux temps longs, la courbure (en log) est la même pour les trois cas de figure, ce qui traduit que les chemins courts ont le même comportement. En effectuant une mesure de DWS sur une tranche d'épaisseur finie, en l'absence d'écoulement, et ajustant la fonction d'autocorrélation à son expression théorique (3.106), on peut donc déterminer le ratio L/l^* (à condition de connaître précédemment γ ou x_e d'une mesure en milieu semi-infini). Réaliser une mesure de DWS en rétrodiffusion sur un échantillon d'épaisseur finie permet ainsi de mesurer l^* , c'est d'ailleurs la technique que nous avons utilisée dans un premier temps (voir section 5.4.1).

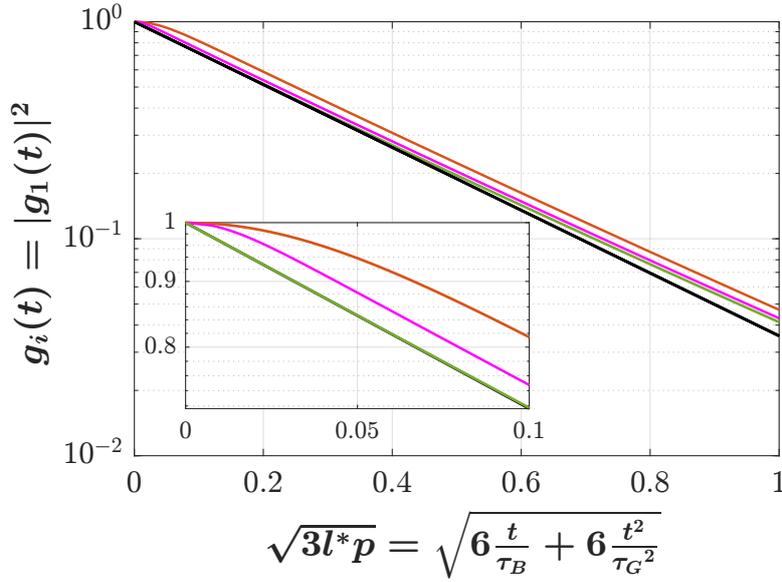


FIGURE 3.8 – Fonction d'autocorrélation normalisée de l'intensité $g_i(t) = |g_1(t)|^2$ pour une tranche d'épaisseur finie L , pour différents ratios L/l^* . Les conditions aux limites sont celles d'un flux net nul à la paroi (pas de réflexion), avec la formulation extrapolée de Dirichlet. Le cas du milieu semi-infini (expression (3.90)) correspond à la courbe verte, les cas d'épaisseur finie (expression (3.106)) aux courbes magenta ($L/l^* = 81$) et orange ($L/l^* = 25$). La référence exponentielle de $-\sqrt{p}$ (3.75) est tracée en noir.

3.4.5 Conclusion sur le choix des conditions aux limites

Dans toutes nos expériences, pour mesurer le taux de dissipation $\eta\Gamma^2$ dans les écoulements, en rétrodiffusion, nous avons choisi d'ajuster nos données à l'expression analytique exponentielle, qui décrit le mieux les données expérimentales :

$$g_i(t) = \exp\left(-2\gamma\sqrt{6\frac{t}{\tau_B} + 6\frac{t^2}{\tau_G^2}}\right) \quad (3.107)$$

où γ est déterminé par une mesure préalable dans les mêmes conditions géométriques et optiques, mais en l'absence d'écoulement. Puisqu'on est intéressé seulement par la dynamique de l'échantillon et pas par les effets de taille finie, il est plus judicieux de s'affranchir des temps courts tels que $\sqrt{6\frac{t}{\tau_B} + 6\frac{t^2}{\tau_G^2}} \leq l^*/L$ en négligeant les premiers points de la fonction d'autocorrélation et en relâchant la contrainte sur la valeur de g_i en $t = 0$. Autrement dit, on n'ajustera que la partie de la courbe qui est une droite (en log) proportionnelle à $-\sqrt{p}$. On se référera au chapitre 6 pour plus de détails sur le traitement des données et le calcul de la fonction d'autocorrélation dans nos expériences.

Par ailleurs, il n’y a pas, à ce jour, d’étude approfondie sur l’influence des conditions aux limites choisies pour la DWS en rétrodiffusion pour une tranche d’épaisseur finie (i.e. pour des rapports L/l^* de l’ordre de 50 ou moins). En utilisant cette méthode, nous avons observé des écarts significatifs dans la mesure de l^* (de l’ordre de 25%) suivant les conditions aux limites choisies. Nous avons alors opté pour les conditions aux limites de flux net en formulation extrapolée de Dirichlet, car ce sont celles qui coïncident le mieux avec le cas du milieu semi-infini. La valeur obtenue s’avère proche (10% d’écart) de celle obtenue par la méthode de la réflectance spatialement résolue, décrite au chapitre 4.

3.5 Cas d’un taux de dissipation inhomogène

3.5.1 Influence sur la fonction d’autocorrélation

Dans toute la section précédente, nous avons supposé que Γ , autrement dit que le taux de dissipation volumique $\eta\Gamma^2$, ne dépendait pas de la longueur des chemins de diffusion s . Sauf dans le cas d’un gradient de vitesse homogène dans l’écoulement (comme un écoulement cisailé de Couette-plan par exemple), ou dans des cas très particuliers de gradient inhomogène qui entraînerait une valeur de Γ homogène, il s’agit d’une approximation. En particulier, le taux de dissipation n’est souvent pas le même à l’interface, qui constitue une couche limite, et plus loin dans le volume. Il dépend alors de la longueur des chemins, puisque les chemins les plus longs ont plus tendance à sonder les diffuseurs loin de l’interface.

Cette dépendance de Γ et donc τ_G avec la longueur des chemins complique considérablement le calcul de la fonction d’autocorrélation g_1 . En effet, comme la variance de la différence de phase (3.61) n’est plus proportionnelle à la longueur des chemins s , g_1 n’est plus simplement la transformée de Laplace de P . Pire encore, la même fonction d’autocorrélation peut correspondre à différentes distributions spatiales de gradient de vitesse et de taux de dissipation [34]. Le problème inverse, à savoir remonter au taux de dissipation moyen (sans même parler de la distribution en volume), est ainsi inaccessible sans hypothèses fortes sur l’écoulement étudié. Bicout et al. (1991,1993) [33, 34] ont pu calculer la fonction d’autocorrélation, ou certains des régimes asymptotiques associés, pour différents types d’écoulement : Poiseuille, cisaillement gaussien, vortex de Rankine, ... On reprendra ici leurs arguments pour légitimer la mesure dans le cas d’écoulements présentant des taux de dissipation inhomogènes. Les nouveaux régimes asymptotiques prédits (par rapport au régime exponentiel) correspondent à des temps très courts, qui sont d’ailleurs difficilement accessibles expérimentalement. En effet, ces temps courts correspondent aux photons ayant parcouru des chemins longs et qui sondent donc des gradients de vitesse sensiblement différents le long de leur parcours. A l’inverse, les temps

suffisamment longs correspondent aux photons ayant parcouru des chemins courts et qui ont donc essentiellement sondé des gradients de vitesse identiques le long de leur parcours. Dans ces cas là, la variance de la différence de phase (3.61) est proportionnelle au (relativement petit) nombre d'événements de diffusion et à la longueur des chemins s . On retrouve ainsi aux temps longs la décorrélation exponentielle obtenue lorsque P et g_1 étaient reliés par la transformation de Laplace. De manière générale, si on note ζ la longueur caractéristique de variation du tenseur des taux de déformation $\underline{\underline{\epsilon}}$ (ζ n'est pas forcément égale à la longueur caractéristique de l'écoulement ξ définie précédemment), les chemins qui sondent un volume plus faible que ζ^3 et donc un gradient de vitesse relativement homogène sont typiquement de longueur s telle que :

$$s \lesssim s_h \equiv \frac{\zeta^2}{l^*} \quad (3.108)$$

Ainsi les temps pour lesquels la fonction d'autocorrélation retrouve une forme proche de l'exponentielle sont typiquement donnés par $2 \frac{s}{l^*} \left(\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{\tau_{G,0}^2} \right) = 1$ où le temps de corrélation $\tau_{G,0}$ est lié à la norme du tenseur des taux de déformation à l'interface Γ_0 par $\tau_{G,0} = \frac{\sqrt{30}}{\Gamma_0 k l^*}$. On supposera, comme c'est généralement le cas expérimentalement, que la décorrélation liée l'écoulement (à l'interface) est beaucoup plus forte que celle liée au mouvement brownien, autrement dit que $\tau_{G,0} \ll \tau_B$. Les temps t tels que la fonction d'autocorrélation est sensiblement exponentielle (de $-t/\tau_{G,0}$) sont ainsi donnés par :

$$t \gtrsim t_h \equiv \frac{l^*}{2\zeta} \tau_{G,0} \quad (3.109)$$

En théorie on pourrait ainsi n'ajuster la fonction d'autocorrélation qu'à partir de $t \geq t_h$, pour avoir une mesure de Γ_0 , c'est-à-dire la valeur de Γ à l'interface (dont on aurait préalablement une estimation...). Néanmoins, cette valeur de t_h ne peut être arbitrairement élevée car le bruit sur les instruments de mesure ne permet pas de mesurer l'autocorrélation avec une précision infinie. De plus, atteindre des t_h arbitrairement élevés reviendrait à s'intéresser à des chemins de diffusion excessivement courts, mal décrits par l'approximation de diffusion. Pour que la mesure de DWS ait toujours un sens dans le cas d'un taux de dissipation inhomogène, on décide arbitrairement du critère $s_h \geq 10 l^*$ qui se traduit par les deux conditions suivantes, équivalentes :

$$\zeta \gtrsim \sqrt{10} l^* \quad (3.110)$$

$$t_h \lesssim \frac{\tau_{G,0}}{2\sqrt{10}} \quad (3.111)$$

En résumé, il faut donc que la longueur caractéristique ζ de variation du tenseur des taux de déformation soit suffisamment grande devant l^* pour que la plupart des chemins de diffusion sondent un gradient relativement identique, et ainsi retrouver un régime de temps suffisamment large où la fonction d'autocorrélation est exponentielle. On pourra alors en déduire la valeur de Γ à l'interface. Plus précisément, si on ajuste

l'autocorrélation à la forme exponentielle (3.107) à partir d'un temps t_{fit} , on sonde Γ , depuis l'interface, sur une profondeur typique Δx de l'ordre de :

$$\Delta x \approx \frac{\tau_{G,0}}{t_{fit}} l^* \quad (3.112)$$

Ces arguments qualitatifs mériteraient une étude approfondie, par exemple grâce à des simulations numériques simulant une marche aléatoire de photons, afin de quantifier ces effets sur la fonction d'autocorrélation. Cela permettrait notamment de déterminer l'incertitude sur les mesures de DWS, que ce soit pour l'étude des écoulements ou pour d'autres applications.

3.5.2 Mesure résolue spatialement et temporellement

Ces arguments sur la longueur des chemins ont un autre intérêt, qui a été exploité à de nombreuses reprises dans d'autres applications de DWS : la possibilité d'une mesure résolue spatialement. En effet, jusqu'à maintenant, nous avons implicitement supposé que le capteur mesurait l'intensité loin du fluide diffusant, comme en DLS. C'est le cas lorsqu'on utilise par exemple un tube photomultiplicateur, qui mesure l'intensité d'une tache de speckle, en champ lointain (voir figure 3.9).

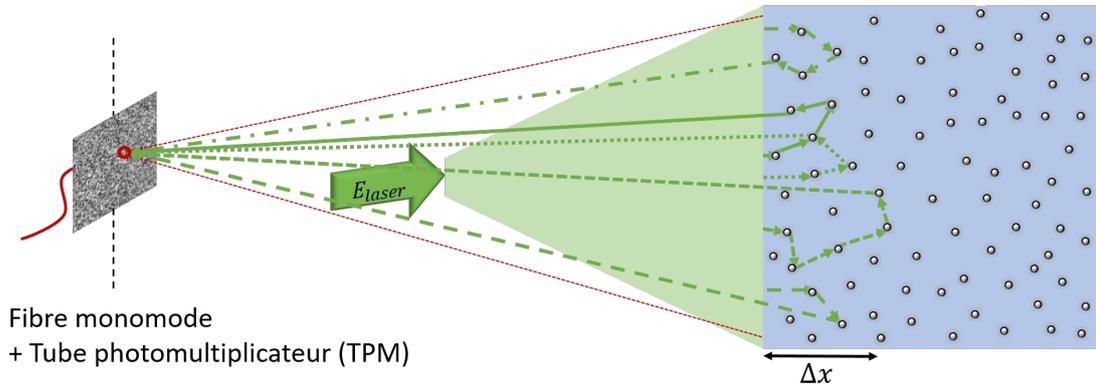


FIGURE 3.9 – Principe d'une mesure de DWS globale. L'intensité diffusée est mesurée par un tube photomultiplicateur (TPM). L'angle solide d'où provient la lumière est déterminé par l'ouverture numérique (pointillés rouge) de la fibre monomode reliée au TPM, qui sélectionne un speckle en champ lointain. Les fluctuations de cette tache de speckle correspondant à des chemins divers le long de la surface associée, elles traduisent le déplacement relatif des diffuseurs sur toute cette surface. La mesure de DWS permet ainsi d'obtenir la valeur moyenne du taux de dissipation dans un volume délimité par cette surface et par la profondeur Δx .

Les fluctuations de cette tache de speckle traduisent le déplacement relatif des diffuseurs (et donc Γ dans notre cas) sur toute la surface associée au speckle, cette surface étant déterminée par l'ouverture numérique de la fibre reliée au tube photomultiplicateur. Dans ce cas, la valeur mesurée par la DWS correspond à la valeur de Γ moyennée sur la surface de mesure (et sur la profondeur Δx définie précédemment) : il s'agit d'une mesure globale, à l'interface.

Néanmoins, rien n'empêche de mesurer l'intensité en un point proche de l'interface. Dans ce cas, l'essentiel des chemins de diffusion "récoltés" présentent des événements de diffusion aux environs de ce point, dans un volume typique de quelques l^3 [5]. En ajoutant l'argument exposé précédemment sur le temps typique à partir duquel la fonction d'autocorrélation est ajustée à la forme exponentielle, le volume caractéristique sondé par une mesure en un point de l'interface est en fait donné par Δx^3 . La valeur de Γ mesurée correspond ainsi à la valeur de Γ dans ce volume : il s'agit d'une mesure locale. Ainsi, la fonction d'autocorrélation associée traduit la valeur moyenne de Γ dans ce volume. Si on considère désormais non pas un point, mais un ensemble de points constituant une surface S_{mes} , avec $S_{mes} \gg l^* \times l^*$, les photons sondent typiquement un volume correspondant à $(S_{mes} + \Delta x^2)\Delta x \approx S_{mes}\Delta x$. Ainsi, la valeur de Γ mesurée correspond à la valeur à l'interface, moyennée sur la surface S_{mes} (et sur la profondeur Δx). Expérimentalement, en utilisant une caméra dont la mise au point est effectuée à l'interface, chaque pixel (ou groupe de pixel, on parle alors de métapixel) permet ainsi de mesurer la valeur local de Γ , on peut donc obtenir une mesure résolue spatialement¹⁹ (voir figure 3.10). Cette version de la DWS, apparue à la fin des années 2000, a depuis été utilisée à plusieurs reprises pour l'étude de la dynamique des déformations plastiques et de la fracture [5, 7, 8] ou celle des milieux granulaires [6, 9]. Dans notre cas, à savoir l'étude du taux de dissipation dans les écoulements, des caméras très haute vitesse sont nécessaires, car le temps de corrélation τ_G est beaucoup plus faible (typiquement 10^{-4} s contre environ 1 s dans les exemples précédents).

Enfin, on peut également mesurer l'évolution temporelle du taux de dissipation. En effet, si celui-ci ne fluctue pas trop vite au niveau de la surface de mesure, l'opération de moyennage temporel peut avoir lieu sur un temps suffisamment faible pour que le système soit considéré comme quasi-stationnaire. L'intégralité de ce qui a été présenté dans cette section reste alors valable. En répétant cette opération dans le temps, on

19. Erpelding et al. (2008) [5] donnent l'exemple suivant : la moitié des photons "récoltés" en un point de l'interface sont entrés dans l'échantillon à une distance inférieure ou égale à $2.7l^*$ (sans précision sur la longueur du chemin à l'intérieur de l'échantillon) et estiment que la mesure de DWS résolue spatialement est quantitative à un facteur 2 près environ. L'argument sur le temps à partir duquel la fonction d'autocorrélation est ajustée, ainsi que le fait que la surface de mesure associée à un pixel ou un métapixel soit bien plus grande que $l^* \times l^*$ permet –mais cela mériterait d'être quantifié– d'être bien plus précis.

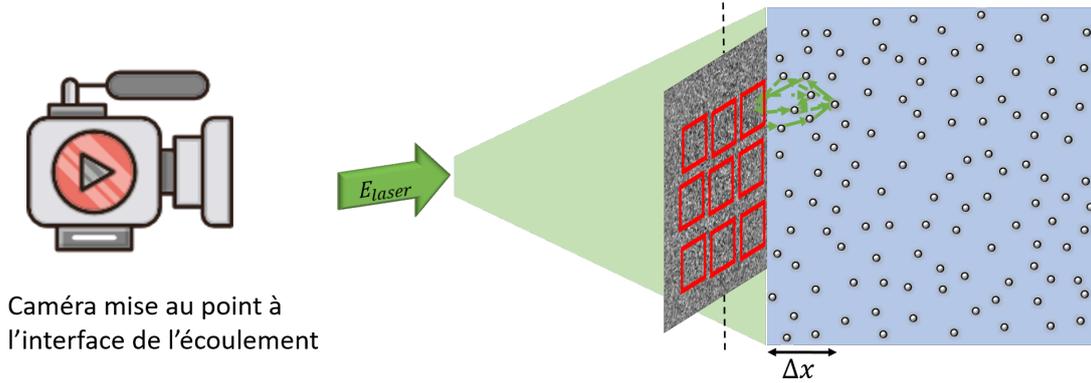


FIGURE 3.10 – Principe d'une mesure de DWS résolue spatialement. L'intensité diffusée est mesurée par une caméra, dont la mise au point est effectuée à l'interface de l'écoulement. Chaque pixel (carré rouge, de surface $S_{mes} \gg l^* \times l^*$) correspond alors à un groupe de speckle. Les fluctuations de ce groupe de speckle étant dues à des chemins ayant typiquement sondés la surface S_{mes} , elles traduisent le déplacement relatif des diffuseurs sur toute cette surface. La mesure de DWS permet ainsi d'obtenir, pour chaque pixel, la valeur moyenne du taux de dissipation dans un volume délimité par cette surface S_{mes} et par la profondeur Δx , soit une mesure locale. En cartographiant cette valeur avec chaque pixel, on obtient donc la résolution spatiale du taux de dissipation.

obtient ainsi la résolution temporelle du taux de dissipation à l'interface de l'écoulement. Si on note Δt_{moy} la durée de moyennage (que l'on choisit), Δt_{conv} la durée de moyennage nécessaire pour que la fonction d'autocorrélation converge et Δt_{fluc} le temps caractéristique d'instationnarité de l'écoulement, autrement dit le temps caractéristique des fluctuations du taux de dissipation, une mesure temporellement résolue est permise par :

$$\Delta t_{conv} \leq \Delta t_{moy} < \Delta t_{fluc} \quad (3.113)$$

En utilisant une caméra et sous la condition (3.113), la DWS permet ainsi d'obtenir la résolution spatio-temporelle du taux de dissipation à l'interface d'un écoulement.

3.6 Récapitulatif

Pour conclure cette partie théorique, on résumera les conditions et approximations pour obtenir, par une mesure de DWS, la résolution spatio-temporelle du taux de dissipation à l'interface d'un écoulement. Il faut pour cela :

- que le libre parcours moyen soit grand devant la longueur d'onde (approximation de faible diffusion : $\lambda \ll l$) et très faible devant la longueur d'atténuation par absorption et l'épaisseur de fluide (approximation de diffusion pour décrire le transport de la lumière : $l \ll l_a, L$), et que les diffuseurs soient en champ lointain les uns vis-à-vis des autres (approximation de champ lointain : $l \gg ka^2$),
- que l'écoulement soit quasi-stationnaire, autrement dit que le temps caractéristique des fluctuations du taux de dissipation (ou du champ de vitesse) soit très grand devant celui du calcul de la fonction d'autocorrélation t (approximation de vitesse stationnaire : $t \ll \Delta t_{fluc}$) et devant la durée de moyennage, elle-même plus longue que la durée nécessaire à la convergence de la fonction d'autocorrélation (condition de convergence plus rapide que l'instationnarité : $\Delta t_{conv} \leq \Delta t_{moy} < \Delta t_{fluc}$),
- que le libre parcours moyen de transport soit faible devant la longueur caractéristique de variation du champ de vitesse (approximation de vitesse linéaire : $l^* \ll \xi$), devant la longueur caractéristique de variation du tenseur des taux de déformation (approximation de dissipation quasi-homogène : $l^* \ll \zeta$),
- que chaque surface de mesure soit plus grande que $l^* \times l^*$ (condition pour avoir une mesure locale, moyennée sur cette surface : $l^* \times l^* \ll S_{mes}$),
- enfin, que le temps à partir duquel la fonction d'autocorrélation est ajustée à la forme exponentielle soit plus grand que le temps minimal tel que les chemins sondent une dissipation relativement homogène (approximation de restriction aux chemins suffisamment courts : $t_{fit} \geq t_h$).

Sous ces conditions, les étapes à suivre pour déterminer le taux de dissipation sont simplement les suivantes :

- déterminer les propriétés hydrodynamiques des diffuseurs, en particulier le temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B ,
- déterminer également les propriétés optiques du fluide diffusant, en particulier le libre parcours moyen de transport l^* ,
- effectuer une mesure de DWS en l'absence d'écoulement, afin d'obtenir le paramètre d'ajustement γ ,
- et enfin effectuer une mesure de DWS, et ajuster sur un intervalle de temps adapté la fonction d'autocorrélation pour mesurer le temps de corrélation lié à l'écoulement à l'interface $\tau_{G,0}$ et en déduire la valeur de Γ à l'interface : $\Gamma_0 = \frac{\sqrt{30}}{kl^* \tau_{G,0}}$. Pour simplifier, on omettra par la suite l'indice 0 et on se contentera des notations τ_G et Γ pour désigner directement les valeurs à l'interface.

Chapitre 4

Réflectance spatialement résolue

La validité de la DWS repose, entre autres facteurs, sur l'homogénéité du fluide diffusant et la connaissance du libre parcours moyen de transport l^* . Certains fluides turbides sont stabilisés, assurant à la fois homogénéité et stabilité dans le temps, mais présentent alors d'autres défauts (voir chapitre 5). Dans le cas contraire, il peut être nécessaire de vérifier l'homogénéité et de connaître l^* en temps réel, pour que la DWS soit correctement interprétée.

Pour cela, nous avons en particulier utilisé la technique de la réflectance spatialement résolue (*spatially resolved reflectance* en anglais), basée sur la théorie du transfert radiatif présentée en section 2.3. Cette technique consiste à analyser de la tache de diffusion à une interface du fluide lorsqu'on y envoie un faisceau de lumière cohérente, en régime stationnaire. Dans ce chapitre, on présentera succinctement la théorie permettant d'obtenir l'expression analytique de la réflectance, c'est-à-dire l'intensité reçue par un capteur (oeil, caméra, ...) situé du même côté que la source de lumière. En comparant cette mesure à l'expression analytique, on peut vérifier en temps réel l'homogénéité du fluide diffusant et, le cas échéant, en déduire l^* .

Ce chapitre ne présente pas de résultats nouveaux par rapport à la littérature, même si l'expression intégrale de la réflectance pour un faisceau gaussien (équation (4.12)) ne semble pas avoir été donnée précédemment.

4.1 Réflectance pour un faisceau ponctuel

On considère un milieu semi-infini d'indice de réfraction n pour $x \geq 0$, d'extension latérale infinie selon y et z . En l'absence d'absorption, l'irradiance diffusée¹ Φ (c'est-à-dire la puissance lumineuse par unité de surface, en W/m^2) obéit à l'équation de diffusion :

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t}(\mathbf{r}, t) - D_l \nabla^2 \Phi(\mathbf{r}, t) = \frac{c}{n} S(\mathbf{r}, t) \quad (4.1)$$

où $S(\mathbf{r}, t)$ désigne la source volumique de puissance lumineuse diffusée et $D_l = \frac{l^*c}{3n}$ le coefficient de diffusion de la lumière dans le milieu. On considère une source ponctuelle stationnaire située en $(x = l^*, y = 0, z = 0)$ donnée par² : $S(x, y, z, t) = \frac{n}{c} \delta(x - l^*) \delta(y) \delta(z)$. Le problème est donc axisymétrique autour de l'axe (Ox) et on note d_c la distance à l'axe : $d_c = \sqrt{y^2 + z^2}$. Si on considère le problème stationnaire avec conditions aux limites extrapolées (de telle sorte que Φ s'annule en $x = -x_e = -\frac{2l^*}{3} \frac{1+R_{eff}}{1-R_{eff}}$, voir section 3.4.3), l'irradiance est donnée par [62] :

$$\Phi(x, d_c) = \frac{3}{4\pi l^*} \left(\frac{1}{((x - l^*)^2 + d_c^2)^{1/2}} - \frac{1}{((x + l^* + 2x_e)^2 + d_c^2)^{1/2}} \right) \quad (4.2)$$

Le signal mesuré en $x < 0$ est donné par la réflectance I_{ref} , exprimée en photons par mètre carré [31] :

$$I_{ref}(d_c) = \int_{\Omega_{x < 0}} \frac{1 - R_{Fresnel}(\theta)}{4\pi} \left(\Phi(x = 0, d_c) + l^* \frac{\partial \Phi}{\partial x}(x = 0, d_c) \cos(\theta) \right) \cos(\theta) d\Omega \quad (4.3)$$

où $\Omega_{x < 0}$ correspond à l'angle solide qui intercepte le demi-espace $x < 0$ et $R_{Fresnel}(\theta)$ est le coefficient de réflexion de Fresnel non polarisé. Si on note n_{ext} l'indice du milieu extérieur ($x < 0$) et θ' l'angle de réfraction, défini par $n_{ext} \sin(\theta') = n \sin(\theta)$, $R_{Fresnel}(\theta)$ est donné par [31] :

$$R_{Fresnel}(\theta) = \begin{cases} \frac{1}{2} \left(\frac{n \cos(\theta') - n_{ext} \cos(\theta)}{n \cos(\theta') + n_{ext} \cos(\theta)} \right)^2 + \frac{1}{2} \left(\frac{n \cos(\theta) - n_{ext} \cos(\theta')}{n \cos(\theta) + n_{ext} \cos(\theta')} \right)^2 & \text{pour } 0 \leq \theta \leq \theta_c \\ 1 & \text{pour } \theta_c \leq \theta \leq \frac{\pi}{2} \end{cases} \quad (4.4)$$

1. On ne considérera que l'irradiance "diffusée" et la source volumique de puissance lumineuse "diffusée", qui correspond au champ électrique après la première diffusion, comme dans la section 3.4.2. Expérimentalement, on ne mesurera pas l'irradiance "incidente" car on se placera loin de la source.

2. On notera qu'on a prise unitaire une grandeur de dimension $\text{W} \cdot \text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ dans le terme source, pour simplifier les notations par la suite. Le problème étant linéaire, Φ et I_{ref} sont simplement proportionnels à cette grandeur.

où θ_c est l'angle de réflexion totale s'il existe ($n \sin(\theta_c) = n_{ext}$). Comme $d\Omega = \sin(\theta)d\theta d\varphi$ et $\Omega_{x<0}$ correspond à $0 \leq \theta \leq \pi$ et $\frac{\pi}{2} \leq \varphi \leq \frac{3\pi}{2}$, on obtient :

$$I_{ref}(d_c) = \frac{1}{l^{*2}} \left(\frac{a}{\left(1 + \left(\frac{d_c}{l^*}\right)^2\right)^{1/2}} - \frac{a}{\left(\alpha^2 + \left(\frac{d_c}{l^*}\right)^2\right)^{1/2}} + \frac{b}{\left(1 + \left(\frac{d_c}{l^*}\right)^2\right)^{3/2}} + \frac{\alpha b}{\left(\alpha^2 + \left(\frac{d_c}{l^*}\right)^2\right)^{3/2}} \right) \quad (4.5)$$

où

$$a = \frac{3}{8\pi} \int_0^{\theta_c} (1 - R_{Fresnel}(\theta)) \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (4.6)$$

$$\alpha = 1 + \frac{2x_e}{l^*} = 1 + \frac{4}{3} \frac{1 + R_{eff}}{1 - R_{eff}} \quad (4.7)$$

$$b = \frac{3}{8\pi} \int_0^{\theta_c} (1 - R_{Fresnel}(\theta)) \cos^2(\theta) \sin(\theta) d\theta \quad (4.8)$$

La réflectance peut donc être renormalisée quelque soit la valeur de l^* , de telle sorte que $l^{*2}I_{ref}$ ne dépende que de d_c/l^* . Le tableau 4.1 donne quelques valeurs des variables a , α et b pour des indices couramment rencontrés expérimentalement :

Variables	$n = n_{ext}$	$n = 1.33$, $n_{ext} = 1$
a	0.0597	0.0315
α	2.3333	4.3538
b	0.0398	0.0267

TABLE 4.1 – Valeur des constantes apparaissant dans la formule de la réflectance pour différents indices.

Pour $\varepsilon = \left(\frac{l^*}{d_c}\right)^2 \ll 1$ (plus précisément $\alpha^2\varepsilon \ll 1$), autrement dit pour les grandes distances à l'axe d_c , l'expression de la réflectance peut se simplifier par un développement limité à l'ordre 1 en ε (après factorisation par $\varepsilon^{1/2}$) :

$$\begin{aligned}
I_{ref}(d_c) &= \frac{1}{l^{*2}} \left(a\varepsilon^{1/2} (1 + \varepsilon)^{-1/2} - a\varepsilon^{1/2} (1 + \alpha^2\varepsilon)^{-1/2} \right. \\
&\quad \left. + b\varepsilon^{3/2} (1 + \varepsilon)^{-3/2} + \alpha b\varepsilon^{3/2} (1 + \alpha^2\varepsilon)^{-3/2} \right) \\
I_{ref}(d_c) &\approx \frac{1}{l^{*2}} \left(a\frac{\alpha^2 - 1}{2} + (1 + \alpha)b \right) \varepsilon^{3/2} = \left(a\frac{\alpha^2 - 1}{2} + (1 + \alpha)b \right) l^* d_c^{-3} \quad (4.9)
\end{aligned}$$

La réflectance renormalisée $l^{*2}I_{ref}$ varie alors comme $\left(\frac{d_c}{l^*}\right)^{-3}$.

4.2 Réflectance pour un faisceau gaussien

Puisque l'irradiance est solution de l'équation de diffusion qui est linéaire, l'expression (4.2) est en fait la solution de Green du problème. On considère désormais une source gaussienne 2D stationnaire selon y et z centrée en $(y = 0, z = 0)$:

$$S(x, y, z, t) = \frac{n}{c} \frac{2}{\pi\omega_0^2} \delta(x - l^*) \exp\left(\frac{-2(y^2 + z^2)}{\omega_0^2}\right) \quad (4.10)$$

où w_0 est la largeur (rayon) de faisceau et correspond à la distance au centre de la source où l'intensité du faisceau est divisée par e^2 . l'irradiance est alors donnée par le produit de convolution de la fonction de Green (4.2) par la source (4.10) :

$$\begin{aligned}
\Phi(x, y, z) &= \frac{3}{2\pi^2\omega_0^2 l^*} \iint \exp\left(\frac{-2(y_0^2 + z_0^2)}{\omega_0^2}\right) \left(\frac{1}{((x - l^*)^2 + (y - y_0)^2 + (z - z_0)^2)^{1/2}} \right. \\
&\quad \left. - \frac{1}{((x + l^* + 2x_e)^2 + (y - y_0)^2 + (z - z_0)^2)^{1/2}} \right) dy_0 dz_0 \quad (4.11)
\end{aligned}$$

On note de nouveau d_c la distance au centre de la source, la réflectance ne dépend alors que de $d_c = \sqrt{y^2 + z^2}$ (à ω_0 et l^* fixés) :

$$\begin{aligned}
I_{ref}\left(d_c = \sqrt{y^2 + z^2}\right) &= \frac{2}{\pi\omega_0^2 l^{*2}} \iint \exp\left(\frac{-2(y_0^2 + z_0^2)}{\omega_0^2}\right) \left(\frac{a}{\left(1 + \frac{(y-y_0)^2 + (z-z_0)^2}{l^{*2}}\right)^{1/2}} \right. \\
&\quad - \frac{a}{\left(\alpha^2 + \frac{(y-y_0)^2 + (z-z_0)^2}{l^{*2}}\right)^{1/2}} + \frac{b}{\left(1 + \frac{(y-y_0)^2 + (z-z_0)^2}{l^{*2}}\right)^{3/2}} \\
&\quad \left. + \frac{\alpha b}{\left(\alpha^2 + \frac{(y-y_0)^2 + (z-z_0)^2}{l^{*2}}\right)^{3/2}} \right) dy_0 dz_0 \quad (4.12)
\end{aligned}$$

Même si on garde la symétrie cylindrique, la réflectance ne reste une fonction de d_c/l^* (et permet donc la renormalisation $l^{*2}I_{ref}$ en fonction de d_c/l^* , quelque soit la valeur de l^*) qu'à condition de fixer ω_0/l^* . On peut néanmoins se contenter de mesurer la réflectance aux grandes distances par rapport à la largeur du faisceau ($d_c \gg \omega_0$), où on retrouve exactement l'expression (4.5), et pour $d_c \gg l^*$, l'expression simplifiée (4.9). La figure 4.1 illustre la différence entre la réflectance renormalisée issue d'un faisceau ponctuel et son approximation à grande distance, ainsi que celle issue d'un faisceau gaussien pour différentes tailles de faisceau w_0/l^* .

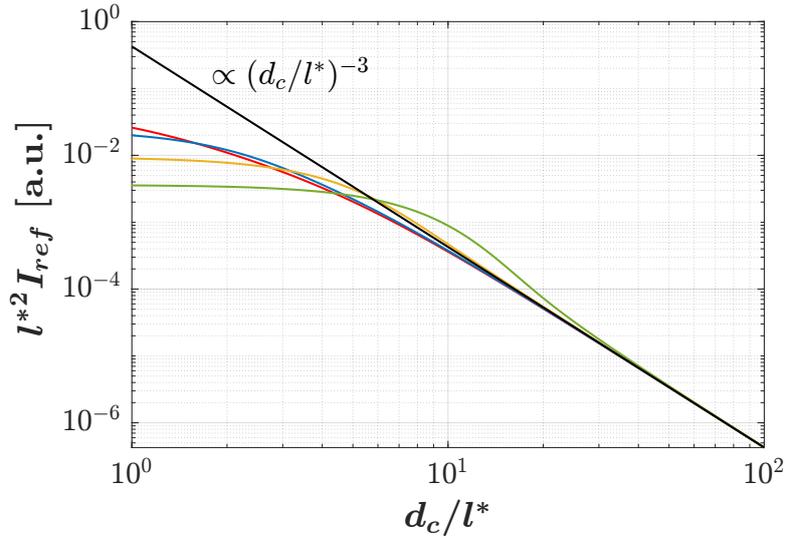


FIGURE 4.1 – Réflectance renormalisée en fonction de la distance au centre du faisceau adimensionnée pour différentes sources unitaires. La courbe rouge correspond à un faisceau ponctuel (expression (4.5)) et la noire à l'approximation aux grandes distances $d_c \gg l^*$ (expression (4.9)). Les courbes bleue, jaune et verte correspondent à des faisceaux gaussiens (expression 4.12) de taille respective $w_0 = 2l^*$ (typique de notre dispositif expérimental la suspension de TiO_2 , voir section 5.4), $w_0 = 5l^*$ (typique de avec l'Intralipide 20%) et $w_0 = 10l^*$.

On utilisera cette approximation aux grandes distances pour facilement mesurer l^* au cours de nos expériences de DWS dans l'écoulement turbulent, après calibration avec un fluide dont le libre parcours moyen de transport est connu.

Troisième partie

Expériences

Chapitre 5

Caractérisation des fluides diffusants

Les expériences de DWS nécessitent l'utilisation, dans l'écoulement d'étude, d'un fluide homogène et stable diffusant la lumière, dont les propriétés sont bien connues. En effet, pour interpréter les résultats des expériences de DWS, il faut déterminer la taille des diffuseurs (pour en déduire le temps de corrélation τ_B lié au mouvement brownien), les viscosités dynamique et cinématique et la masse volumique (pour calculer les nombres de Taylor ou de Reynolds associés) et enfin le libre parcours moyen de transport l^* . Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé deux fluides diffusants. Le premier est une émulsion lipidique, commercialisé sous le nom d'Intralipide 20% et utilisé dans de nombreuses expériences de diffusion multiple de la lumière pour sa forte diffusion de la lumière, son homogénéité et sa stabilité dans le temps [63]. Nous avons donc utilisé cette émulsion comme référence pour les expériences de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette. Elle est néanmoins chère (environ 200€ pour 100 mL), et donc inadaptée pour l'étude d'écoulements nécessitant un volume de fluide important comme notre écoulement turbulent. De plus, sa stabilité étant due à la présence de tensioactifs, sa tension de surface diffère de celle de l'eau pure, rendant plus délicate l'étude de certains écoulements de surface. C'est pourquoi nous avons également utilisé une suspension de dioxyde de titane (TiO_2), peu chère (environ 10 centimes par litre de suspension) et sans tensioactifs, mais dont l'homogénéité et la stabilité dans le temps ont besoin d'être contrôlées. Nous avons validé l'utilisation de cette suspension pour la DWS via l'écoulement de Taylor-Couette, avant de l'utiliser pour l'expérience dans l'écoulement turbulent.

5.1 Description et préparation

Les 2 fluides diffusants sont des suspensions dites colloïdales, c'est-à-dire des dispersions de molécules ou particules polymoléculaires, de taille comprise entre 1 nm et 1 μm , dans un liquide.

L'Intralipide 20% est une émulsion lipidique stabilisée constituée de gouttelettes d'huile de soja en suspension dans l'eau, avec une concentration massique de 20%. Ce sont ces gouttelettes d'huile de soja qui diffusent la lumière et qui se comportent comme des grosses particules en mouvement dans le fluide environnant, l'eau. Les fluctuations de position des gouttelettes dans l'eau au repos, dues à la température, sont donc décrites par leur mouvement brownien. L'émulsion est prête à l'emploi, la seule précaution à prendre étant de la thermaliser à température ambiante avant utilisation puisqu'elle doit être conservée entre 2 et 8°C. Après thermalisation, grâce à la présence de glycérine (concentration massique d'environ 2%) et de phospholipides (environ 1%) qui agissent comme tensioactifs, les gouttelettes ne s'agglomèrent ni ne sédimentent avant quelques jours, à l'issue desquels l'émulsion finit par coaguler. Cela garantit la stabilité de l'émulsion pendant la durée de nos expériences (moins de 48h). Se référer par exemple à [64] pour une description plus précise de l'émulsion et sa stabilité.

Pour la suspension de dioxyde de titane, nous avons utilisé des pigments Kronos 1002 (forme anatase du TiO_2 , de densité environ 3.8) fournis par Kronos Worldwide, Inc. Ces pigments sont dispersés dans de l'eau déionisée, de résistivité 18 $\text{M}\Omega\text{-cm}$, afin de limiter la floculation, phénomène d'agglomération des particules qui forment alors des amas appelés floes [65]. Cette floculation, par l'augmentation de la taille effective des diffuseurs, a 3 effets néfastes que l'on souhaite éviter : une modification des propriétés optiques (en particulier du libre parcours moyen de transport), une diminution du coefficient de diffusion, qui intervient dans le temps de corrélation lié au mouvement brownien (voir section 5.3) et enfin une sédimentation plus rapide, rendant le fluide inhomogène. Pour l'expérience de Taylor-Couette, nous avons de plus soumis la suspension à un bain ultra-sonique pendant 5 minutes (qui semblait être le temps optimal, voir section 5.3) pour briser les éventuels floes. Pour l'expérience dans l'écoulement turbulent, le volume de fluide étant très important, nous avons plutôt contrôlé directement le libre parcours moyen de transport (voir section 5.4). Dans les deux cas, les résultats présentés correspondent à une concentration massique de référence $c_0 = 10 \text{ g/L}$.

5.2 Viscosités et masse volumique

Pour obtenir la viscosité dynamique η des 2 fluides diffusants, nous avons utilisé l'écoulement de Taylor-Couette décrit à la section 1.2, qui constitue un viscosimètre (ou rhéomètre) usuel dans le régime de Couette. En effet, en négligeant les effets de bords (cylindre de longueur h suffisamment grande devant la distance inter-cylindre) et en conservant les notations de la section 1.2, le couple exercé par le fluide sur le cylindre intérieur est donné par [10] :

$$T_i = 4\pi\eta h\Omega R_e^2 R_i^2 / (R_e^2 - R_i^2) \quad (5.1)$$

Dans notre cas, le cylindre intérieur est mis en rotation par une tête de mesure de rhéomètre (modèle DSR301 chez Anton Paar) qui nous donne directement la mesure du couple exercé par le fluide (voir description du dispositif en section 7.1). En faisant varier la vitesse de rotation, on peut comparer l'expression (5.1) à la mesure de couple et en déduire η (figure 5.1).

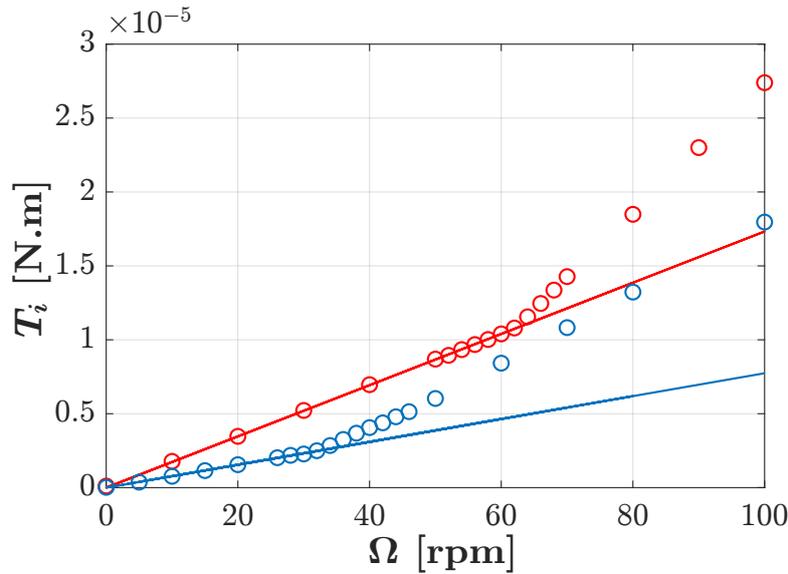


FIGURE 5.1 – Couple exercé par le fluide sur le cylindre intérieur (cercles) et fit linéaire avec l'équation (5.1) (traits pleins) en fonction de la vitesse de rotation du cylindre intérieur. Les courbes rouges correspondent à l'Intralipide 20%, les bleues à la suspension de TiO_2 . Le fit est valable pour $\Omega \leq \Omega_c$ dont la valeur est déterminée a posteriori et dépend du fluide et de la configuration utilisée (voir section 7.1).

La dépendance linéaire du couple avec le taux de rotation, en dessous de la valeur critique Ω_c , nous donne deux informations. Cela confirme premièrement que, dans ce

régime de cisaillement, les 2 fluides se comportent bien comme des fluides newtoniens : la contrainte de cisaillement (proportionnelle au couple) est bien proportionnelle au gradient de vitesse radial (proportionnel à la vitesse de rotation du cylindre intérieur). On en déduit deuxièmement la valeur de la viscosité dynamique pour chacun des fluides à 24°C : $\eta = 2.6 \times 10^{-3}$ Pa·s pour l'Intralipide 20%, ce qui correspond à la littérature existante [66] et $\eta = 0.9 \times 10^{-3}$ Pa·s pour la suspension de TiO₂. Cette dernière valeur correspond à la valeur prédite par la relation d'Einstein $\eta = \eta_0(1 + 2.5\Phi)$ où η_0 désigne à nouveau la viscosité dynamique du fluide environnant (l'eau) et Φ la fraction volumique des particules de TiO₂ dans la suspension. A la concentration de 10 g/L, la fraction volumique est en fait très faible : $\Phi \approx 0.0026$, ce qui explique que l'on trouve $\eta \approx \eta_0 \approx 0.9 \times 10^{-3}$ Pa·s. La viscosité de l'eau étant plus proche de 1.0×10^{-3} Pa·s à 21°C, on prendra cette valeur pour les expériences dans l'écoulement turbulent.

La masse volumique de chacun des fluides est égale (à la précision près de nos mesures) à celle de l'eau à la même température de 24°C : $\rho = 997$ kg/m³. On en déduit des viscosités cinématiques de $\nu = 2.6 \times 10^{-6}$ m²/s pour l'Intralipide 20% et $\nu = 0.9 \times 10^{-6}$ m²/s pour la suspension de TiO₂. La masse volumique de l'eau étant de 998 kg/m³ à 21°C, on prendra la valeur de $\nu = 1.0 \times 10^{-6}$ m²/s pour la suspension de TiO₂ pour l'expérience dans l'écoulement turbulent.

5.3 Rayon hydrodynamique des diffuseurs

Pour déterminer le temps de corrélation lié au mouvement brownien $\tau_B = 1/(k^2D)$, il faut connaître le coefficient de diffusion D des diffuseurs dans le fluide environnant, donné par la formule de Stokes-Einstein : $D = \frac{k_B T}{6\pi\eta_0 R_H}$ où k_B est la constante de Boltzmann, T la température, η_0 la viscosité dynamique du fluide environnant (l'eau dans notre cas) et R_H le rayon hydrodynamique des particules diffusantes. On doit donc déterminer ce rayon hydrodynamique, qui correspond au rayon d'une sphère théorique qui aurait le même coefficient de diffusion que la particule considérée.

La méthode la plus simple consiste à effectuer une mesure de diffusion dynamique de la lumière (DLS, pour *dynamic light scattering* en anglais). En mesurant l'autocorrélation temporelle de l'intensité diffusée par un échantillon de suspension très fortement diluée, de sorte que l'on se trouve dans le régime de diffusion simple, on détermine le temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B et donc le rayon hydrodynamique (voir section 3.2.2). Nous avons utilisé le Zetasizer (Ver. 7.03) de Malvern Panalytical, qui donne la distribution du rayon hydrodynamique, pour chacune des deux suspensions. L'Intralipide 20% présente une distribution proche d'une loi log-normale, extrêmement reproductible, avec un rayon hydrodynamique moyen $R_H = 0.14$ µm (voir en annexe B le diamètre hydrodynamique moyen "Z-Average").

Dans le cas de la suspension de dioxyde de titane, nous avons testé plusieurs paramètres (type d'eau, pH, temps d'exposition aux ultrasons, ...) pour obtenir la distribution de rayon hydrodynamique la plus proche d'une loi log-normale et la plus reproductible possible. En effet, si aucune précaution n'est prise dans la préparation de la suspension (en utilisant de l'eau seulement distillée et non déionisée par exemple), on observe non pas un mais deux pics dans la distribution, le premier correspondant au rayon hydrodynamique d'une particule de TiO_2 et le second au rayon hydrodynamique des floes (voir un exemple en annexe B). Les meilleurs résultats ont été obtenus pour de l'eau déionisée, avec un pH neutre, et pour un temps d'exposition au bain ultrasonique de 5 minutes. Ce protocole de préparation garantit un minimum de floes, mais la distribution de rayons hydrodynamiques reste bien moins reproductible qu'avec l'Intralipide 20%, donnant des rayons hydrodynamiques moyen entre 0.35 et 0.45 μm suivant les échantillons (voir un exemple en annexe B). Nous avons ainsi pris comme valeur moyenne $R_H = 0.2 \mu\text{m}$.

Les expériences dans l'écoulement de Taylor-Couette ayant été effectuées avec des fluides à 24°C, on peut en déduire la valeur du coefficient de diffusion D . Sachant que la longueur d'onde du laser est de $\lambda = 532 \text{ nm}$, la norme du vecteur d'onde dans l'eau (d'indice $n = 1.33$) vaut $k = 1.57 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ et on obtient les temps de corrélation lié au mouvement brownien suivants : $\tau_B = 3.39 \times 10^{-3} \text{ s}$ pour la suspension de TiO_2 et $\tau_B = 2.37 \times 10^{-3} \text{ s}$ pour l'Intralipide 20%. Pour l'écoulement turbulent, la température de la suspension de TiO_2 étant de 21°C, on a $\tau_B = 3.68 \times 10^{-3} \text{ s}$.

Par ailleurs, la connaissance du rayon hydrodynamique nous permet de déterminer le nombre de Stokes St , qui traduit à quel point les particules suivent les lignes de champ. Nos écoulements étant engendrés par rotation, son expression est donnée par $St = (2R_H)^2 \rho_p \Omega / (18\eta_0)$ où ρ_p la masse volumique des particules. Dans nos expériences, Ω est typiquement de l'ordre de 1 Hz : on obtient ainsi des valeurs de St de l'ordre de 10^{-7} , ce qui justifie de considérer les particules diffusantes comme des traceurs parfaits de l'écoulement [67].

5.4 Libre parcours moyen de transport

Les propriétés optiques de l'Intralipide 20% sont connues (voir par exemple [64]). A la longueur d'onde de $\lambda = 532 \text{ nm}$, le coefficient d'atténuation par diffusion μ_s vaut environ 110 mm^{-1} , soit un libre parcours moyen $l = 9.1 \mu\text{m}$. Le coefficient d'anisotropie $g = \langle \cos \theta \rangle$ étant estimé à 0.74, on peut en déduire la valeur du libre parcours moyen de transport : $l^* = l / (1 - g) \approx 35 \mu\text{m}$. Le coefficient d'atténuation par absorption μ_a étant de l'ordre de 10^{-4} mm^{-1} , l'absorption est négligeable par rapport à la diffusion

($1/\mu_a = l_a \gg l^*$), ce qui justifie le formalisme utilisé dans la partie théorique de ce manuscrit. En ce qui concerne la suspension de TiO_2 , l'absorption est également connue pour être négligeable devant la diffusion dans le visible [68-70]. Cependant, il n'existe pas, à ce jour, de référence pour le libre parcours moyen de transport d'une suspension de TiO_2 Kronos 1002 aux concentrations et longueurs d'onde qui nous intéressent, c'est pourquoi nous l'avons mesuré expérimentalement.

5.4.1 Mesure par DWS en épaisseur finie

Nous avons dans un premier temps effectué des mesures de DWS en rétrodiffusion dans une tranche d'épaisseur finie. En l'absence d'écoulement, la décorrélation du champ est uniquement due au mouvement brownien des diffuseurs et est donnée par l'expression (3.106) si on choisit les conditions aux limites extrapolées. Lorsque le rapport entre l'épaisseur de la tranche L et l^* diminue, un effet de bords lié à la coupure des longs chemins de diffusion apparaît (voir section 3.4.4), ce qui peut être exploité pour déterminer L/l^* . La concentration de référence $c_0 = 10 \text{ g/L}$ entraîne néanmoins une valeur de l^* trop faible pour que cet effet soit quantifiable facilement (cela demanderait une tranche d'épaisseur inférieure au mm, indisponible en verrerie usuelle). En utilisant une tranche d'épaisseur $L = 2 \text{ mm}$ et en faisant varier la concentration c entre 0.5 g/L et 5 g/L , on obtient une dépendance quasi-linéaire entre la concentration et le libre parcours moyen de transport (figure 5.2).

Le fit linéaire peut alors être extrapolé à la concentration de référence, donnant la valeur de $l^* = 82 \mu\text{m}$ pour une suspension à 10 g/L . C'est cette valeur qui a été utilisée pour les expériences de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette. Bien que les résultats obtenus soient cohérents, cette méthode reste nouvelle et mal caractérisée. En particulier, nous avons observé des écarts non négligeables (de l'ordre de 25%) de l^* suivant les conditions aux limites et donc la fonction à ajuster (voir section 3.4.4, équations (3.97), (3.102) ou (3.106)). Si nous avons systématiquement privilégié les conditions aux limites de flux net en formulation extrapolée de Dirichlet, cette dépendance mériterait une étude plus approfondie. D'autre part, l'extrapolation à la concentration de référence reste sujette à questions, puisque la relation inversement proportionnel entre le libre parcours moyen de transport et la concentration n'est pas toujours valide (voir section 3.2.3). Enfin, il ne s'agit pas d'une mesure directe in situ : l'épaisseur de la tranche devant être fixe à une valeur très faible, cette mesure ne peut pas être réalisée dans le même dispositif que celui utilisé normalement pour les mesures de dissipation. Ainsi, cette méthode ne permet pas de repérer une évolution de l^* en temps réel.

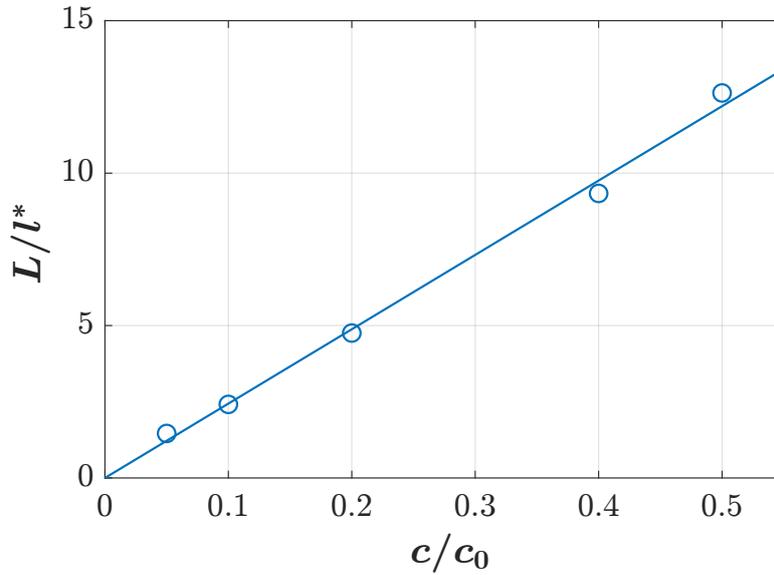


FIGURE 5.2 – Mesure par DWS (cercles) et fit linéaire (traits pleins) du rapport entre l'épaisseur de la tranche L et le libre parcours moyen de transport l^* en fonction de la concentration en TiO_2 de la suspension ($c_0 = 10 \text{ g/L}$). Le fit linéaire correspond à $l^* = 82 \mu\text{m}$ à la concentration c_0 .

5.4.2 Mesure par réflectance spatialement résolue

C'est pourquoi nous avons par la suite privilégié une autre technique : la mesure par réflectance spatialement résolue, décrite au chapitre 4 et utilisée à plusieurs reprises dans la littérature [71-73], y compris pour l'Intralipide 20% [64]. Cette méthode permet d'abord de vérifier en temps réel l'homogénéité de la suspension à la surface ou à une interface, en vérifiant que la réflectance est bien axisymétrique par rapport au centre du faisceau utilisé. Puis, le cas échéant, on peut en déduire le libre parcours moyen de transport. C'est ainsi que nous avons pu vérifier la stabilité de la suspension dans la grande cuve utilisée pour l'expérience de DWS en écoulement turbulent (chapitre 8). Nous avons pour cela utilisé un laser Spectra-Physics (Excelsior 532 Single Mode) de longueur d'onde 532 nm, de largeur de faisceau $\omega_0 = 0.16 \text{ mm}$ et de puissance 50 mW, et une caméra CMOS Point Grey - Teledyne FLIR (FL3-U3-13Y3M) (voir dispositif en figure 5.4). En capturant 100 images, à une fréquence de 20 images par seconde, puis en les moyennant pour éliminer les fluctuations de speckle (liées au caractère cohérent de la source laser), on obtient une mesure de la réflectance moyenne (stationnaire). En utilisant comme référence l'Intralipide 20%, dont on connaît le libre parcours moyen de transport, on détermine la constante de proportionnalité entre la réflectance $I_{ref}(d_c)$ et $l^*d_c^{-3}$ pour une distance au centre du faisceau d_c grande devant la taille du faisceau

et devant l^* (équation (4.9)). On peut ensuite effectuer la mesure de $I_{ref}(d_c)$ pour la suspension de TiO_2 et en déduire l^* en temps réel pendant une expérience de DWS.

Dans un premier temps, nous avons effectué ces mesures de réflectance spatialement résolue à la surface libre de l'écoulement. Cette mesure en surface sera amenée à être utilisée dans le futur, la DWS présentant le potentiel pour l'étude de la dissipation à la surface d'écoulements en surface libre (étude qui ne sera pas présentée dans ce manuscrit). Nos mesures ont mis en évidence l'augmentation de l^* à la surface de la suspension de TiO_2 , lorsque celle-ci reste au repos. En fait, la concentration présente rapidement un gradient vertical à cause de la sédimentation, peu visible à l'oeil nu, et ce malgré les précautions prises pendant la préparation. On observe cet effet même en diminuant la concentration massique de la suspension (figure 5.3) et on note d'ailleurs que cette variation est linéaire, de l'ordre de $3.5 \mu\text{m}/\text{min}$, quelque soit la concentration initiale. Pour notre concentration de référence $c_0 = 10 \text{ g/L}$, cela correspond à une augmentation de l^* de l'ordre de 40% en 10 minutes.

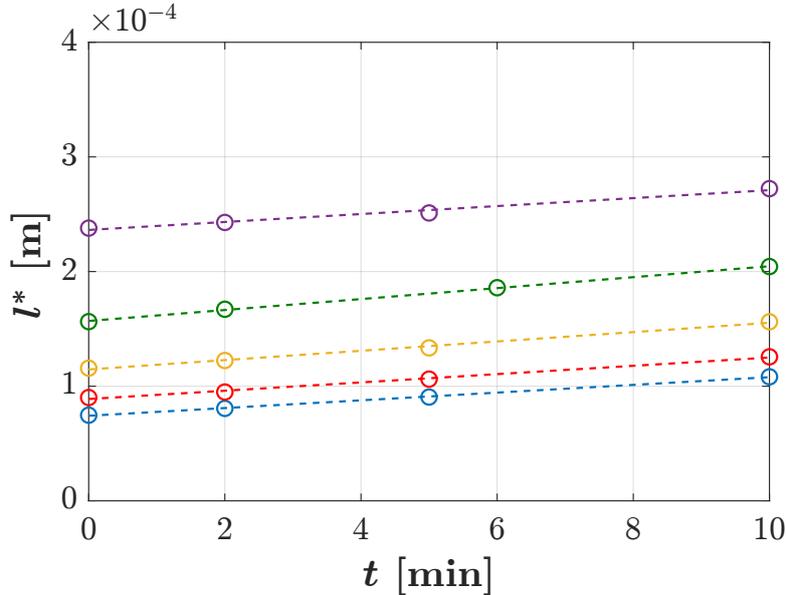


FIGURE 5.3 – Mesure par réflectance spatialement résolue (cercles) et fit linéaire (tirets) de l'évolution temporelle du libre parcours moyen de transport à la surface de la suspension de TiO_2 , au repos. Les couleurs correspondent à différentes concentrations massiques initiales : violet 2 g/L, vert 4 g/L, jaune 6 g/L, rouge 8 g/L et bleu 10 g/L.

Même si cet effet tend à disparaître lorsque le fluide est mélangé par l'écoulement et donc homogénéisé, nous avons préféré éviter ce problème et mesurer le libre parcours moyen de transport là où se fait la mesure de dissipation par DWS. Nous avons donc

mis en place ce dispositif à la même hauteur que la mesure de dissipation par DWS, sur une autre face de la cuve en verre (voir figure 5.4 et section 8.1). Dans cette configuration, la réflectance est mesurée en présence de 2 interfaces : l'interface fluide-verre et l'interface verre-air. Elle ne correspond alors plus à l'expression (4.12) ou à l'approximation (4.9) pour les grandes distances au centre du faisceau. En effet, il peut y avoir réflexion aux interfaces fluide-verre et verre-air, ce qui impacte la réflectance observée. Nous avons observé expérimentalement la présence d'anneaux d'interférence (semblable à ceux observés avec un interféromètre de Fabry-Perot) qui se superposent au phénomène de diffusion (figure 5.4). Nous n'avons pas cherché à quantifier ce phénomène ni à résoudre le problème analytiquement, mais simplement constaté qu'entre 2 anneaux d'interférence et pour une distance radiale d_c suffisamment grande, on retrouvait pour le même régime qu'avec une interface simple, en $l^*d_c^{-3}$. Nous avons donc pu déterminer le libre parcours moyen de transport l^* en ajustant nos données à l'expression (4.9), sur une certaine gamme de d_c (figure 5.5).

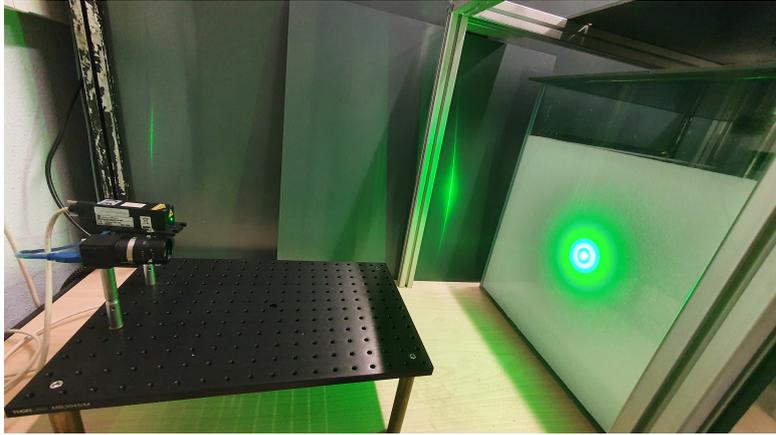


FIGURE 5.4 – Dispositif de mesure de réflectance spatialement résolue pour l'expérience de DWS dans un écoulement turbulent. La réflectance présente un motif correspondant à la superposition d'anneaux d'interférence et du comportement lié à la diffusion.

In fine, la suspension s'avère très stable grâce au mélange dû à l'écoulement et au fait que l'on mesure non pas à la surface mais sur un côté de la cuve. Aucune inhomogénéité (autrement dit aucun écart à un profil de réflectance axisymétrique) n'a été relevée. Nous avons observé des fluctuations du libre parcours moyen de transport de l'ordre de 3% maximum en 48h, pour peu que l'hélice soit en rotation continue et la cuve protégée par un couvercle. La valeur de l^* obtenue par cette méthode, $74 \mu\text{m}$, s'avère être proche mais tout de même 10% différente de celle obtenue par les mesures par DWS en épaisseur finie ($82 \mu\text{m}$). Pour l'expérience de DWS dans l'écoulement turbulent, on prendra donc

la valeur $l^* = 74 \mu\text{m}$ comme constante au vu de ses très faibles fluctuations.

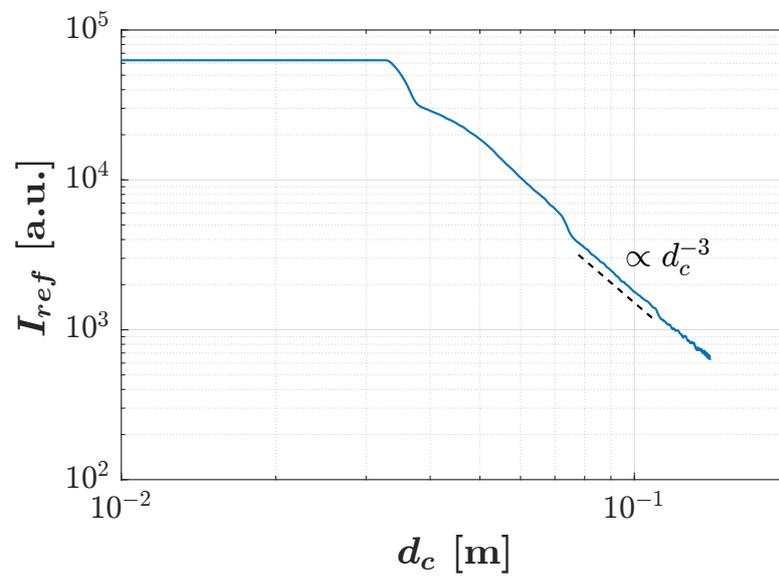


FIGURE 5.5 – Réflectance en fonction de la distance au centre du faisceau en présence d'une double interface air/verre/fluide. Le plateau pour $d_c \leq 3.3$ cm est lié à la saturation de la caméra. L'intervalle où l'on retrouve le régime en $l^* d_c^{-3}$, indiqué par les tirets noirs, permet d'obtenir la valeur de l^* en temps réel.

5.5 Tableau récapitulatif des grandeurs clés

Le tableau suivant résume les fluides diffusants (émulsion ou suspension) utilisés pour chaque expérience de DWS, leur température T , la viscosité dynamique du fluide environnant (l'eau) η_0 , la viscosité dynamique η et cinématique ν du fluide diffusant en tant que tel, le rayon hydrodynamique moyen des diffuseurs R_H , le temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B , ainsi que le libre parcours moyen de transport l^* :

Expérience	Taylor-Couette		Écoulement turbulent
	Intralipide 20%	Suspension de TiO ₂	Suspension de TiO ₂
T	24°C	24°C	21°C
η_0	$0.9 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$	$0.9 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$	$1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$
η	$2.6 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$	$0.9 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$	$1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$
ν	$2.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	$0.9 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	$1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$
R_H	0.14 μm	0.2 μm	0.2 μm
τ_B	$2.37 \times 10^{-3} \text{ s}$	$3.39 \times 10^{-3} \text{ s}$	$3.68 \times 10^{-3} \text{ s}$
l^*	35 μm	82 μm	74 μm

TABLE 5.1 – Valeur des grandeurs clés pour chaque fluide lors des expériences de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette et dans l'écoulement turbulent.

Chapitre 6

Traitement des données

L'objectif de ce chapitre est de présenter le traitement des données issues de nos expériences de DWS. Dans ces expériences, l'intensité est mesurée par deux types de capteurs : un tube photomultiplicateur relié à un corrélateur d'une part, et une caméra ultra-rapide d'autre part. On explicitera d'abord le calcul des fonctions d'autocorrélation à partir des mesures brutes obtenues par ces deux appareils. On précisera ensuite les conditions d'ajustement à l'expression théorique attendue, avant de détailler les contraintes liées à la convergence des fonctions d'autocorrélation pour obtenir des mesures de dissipation résolues en temps et en espace.

On notera que ce chapitre et les deux suivants, qui détaillent à la fois les dispositifs expérimentaux et les résultats obtenus par DWS sur les écoulements de Taylor-Couette et de turbulence de paroi, sont inter-dépendants. En effet, les paramètres à utiliser pour les fonctions d'autocorrélation dépendent parfois de la géométrie du dispositif expérimental ou de mesures intermédiaires.

6.1 Données brutes et autocorrélation temporelle

6.1.1 Cas du tube photomultiplicateur et corrélateur

Le tube photomultiplicateur (TPM), relié au corrélateur, collecte la lumière via une fibre optique monomode. L'ouverture numérique de la fibre (entre 0.1 et 0.14 dans notre cas) définit l'angle solide d'où provient la lumière collectée. Cet angle solide permet de remonter à la surface sondée à l'interface de l'écoulement : un disque dont le rayon dépend de la distance entre l'ouverture de la fibre et l'interface. L'interface graphique du corrélateur nous permet de récupérer 2 signaux :

- d'une part, l'intensité mesurée par le TPM avec une fréquence d'acquisition $f_{acq} \equiv 1/\Delta t$, un temps dit d'exposition (autrement dit la durée pendant laquelle la lumière est collectée) $\Delta t_{expo} = \Delta t$, pendant une durée totale de mesure $N\Delta t$, N étant le nombre total de points de mesure,
- et d'autre part, directement la fonction d'autocorrélation temporelle de l'intensité $g_2(m\Delta t)$, calculée sur un certain nombre de points M ($0 \leq m \leq M - 1$), avec le même pas de temps Δt que le signal d'intensité, et moyennée sur la durée totale $N\Delta t$.

Dans les deux cas, en notant $I(t)$ l'intensité mesurée entre les instants t et $t + \Delta t$, l'autocorrélation temporelle de l'intensité moyennée sur N_{moy} pas de temps (soit sur une durée de moyennage totale $\Delta t_{moy} \equiv N_{moy}\Delta t$), est donnée par :

$$g_2(m\Delta t) = \frac{\frac{1}{N_{moy-m}} \sum_{j=0}^{N_{moy}-1-m} I(j\Delta t)I((j+m)\Delta t)}{\left(\frac{1}{N_{moy}} \sum_{j=0}^{N_{moy}-1} I(j\Delta t)\right)^2} \quad (6.1)$$

où $0 \leq m \leq M - 1$. Calculer a posteriori la fonction de corrélation à partir des données brutes d'intensité permet d'ajuster N_{moy} à la valeur de notre choix, contrairement au calcul direct par le corrélateur qui impose $N_{moy} = N$. La durée totale de mesure $N\Delta t$ peut être ajustée entre 10s et 10min.

6.1.2 Cas de la caméra

La mise au point de l'objectif de la caméra est faite à l'interface avec le fluide. L'intensité mesurée par chaque pixel correspond donc à l'intensité diffusée sortant du

fluide diffusant sur une surface carrée, de taille définie par le niveau de zoom. L'intensité est mesurée avec une fréquence d'acquisition $1/\Delta t$, et avec un temps d'exposition $\Delta t_{expo} < \Delta t$, pendant une durée totale de mesure $N\Delta t$.

Si on note $I_p(t)$ l'intensité mesurée par le pixel p entre les instants t et $t + \Delta t_{expo}$ et $g_{2,p}$ l'autocorrélation de l'intensité du pixel p moyennée sur N_{moy} pas de temps (soit sur une durée de moyennage totale $\Delta t_{moy} \equiv N_{moy}\Delta t$), est donnée par :

$$g_{2,p}(m\Delta t) = \frac{\frac{1}{N_{moy}-m} \sum_{j=0}^{N_{moy}-1-m} I_p(j\Delta t) I_p((j+m)\Delta t)}{\left(\frac{1}{N_{moy}} \sum_{j=0}^{N_{moy}-1} I_p(j\Delta t) \right)^2} \quad (6.2)$$

où $0 \leq m \leq M-1$. On notera que le moyennage est réalisé pour chaque pixel indépendamment et que l'on n'introduit pas de métapixels (c'est-à-dire un ensemble de pixels sur lequel serait effectué un moyennage d'ensemble), comme dans la plupart des autres expériences de DWS résolues spatialement [5-9]. En effet, dans nos expériences de DWS, que ce soit sur l'écoulement de Taylor-Couette ou sur l'écoulement de turbulence de paroi, la surface (dans l'espace objet) correspondante à un pixel est significativement plus grande que $l^* \times l^*$, chacun des pixels correspond donc à une zone sondée significativement différente. La décorrélation étant propre à cette zone sondée, elle est potentiellement différente pour chaque pixel et faire une moyenne d'ensemble n'est donc pas possible. Il faudrait pour cela réduire le niveau de zoom ou augmenter le nombre de pixels, mais ces deux aspects sont déjà limités respectivement par la taille des structures de dissipation dans nos écoulements, et par la fréquence d'acquisition minimale nécessaire.

On notera que pour chacun des capteurs, la fonction d'autocorrélation mesurée expérimentalement diffère légèrement de celle présentée théoriquement, de part la nature discrète du signal d'intensité. En effet, l'expression théorique de l'autocorrélation prévoit une mesure de l'intensité sur une durée infinitésimale, ou du moins très faible devant n'importe quel autre temps caractéristique du problème, en particulier les temps de corrélation τ_B et τ_G . Cela n'est pas nécessairement le cas expérimentalement, en particulier lorsque le taux de dissipation est important et donc τ_G faible : le temps d'exposition, c'est-à-dire la durée pendant laquelle l'intensité est mesurée pour obtenir un point de mesure, peut alors être de l'ordre de grandeur de τ_G .

Que ce soit pour l'un ou l'autre des dispositifs de mesure, le choix de Δt est crucial. En effet, il faut que le temps d'acquisition soit suffisamment court pour que le signal d'intensité et donc sa fonction d'autocorrélation soit bien résolu en temps, afin de déduire correctement le temps de corrélation τ_G . Cela doit aussi permettre d'éviter la saturation du tube photomultiplicateur, qui risque de recevoir trop d'intensité. A l'inverse, pour le

cas de la caméra, il ne doit pas être trop court pour permettre un temps d'exposition suffisamment élevé, et donc une mesure d'intensité au-dessus du niveau de bruit. Dans d'autres applications de la DWS (dynamique de la déformation plastique, de la fracture ou des mousses par exemple), il faut éviter que ce temps d'acquisition soit trop court devant le temps de corrélation, ce qui demanderait un nombre de points trop important pour le moyennage de l'autocorrélation et engendrerait donc un stockage inutile voire impossible de données. Dans notre cas, à savoir la mesure du taux de dissipation, cela n'est jamais un problème car le temps de corrélation est très court (typiquement 10^{-4} s contre environ 1 s dans les exemples précédents).

6.2 Ajustement à la prédiction théorique

6.2.1 Intervalle d'ajustement

On rappelle que les fonctions d'autocorrélation de l'intensité homodyne g_2 et normalisée g_i sont reliées par la relation : $g_2 \equiv 1 + \beta g_i$ où β est le contraste du capteur (pixel ou PMT) défini par l'expression (3.3) et donc par $\beta = g_2(0) - 1$.

Comme détaillé dans les sections 3.4.5 et 3.5.1, on doit ajuster g_i à son expression théorique (3.107) en éliminant les premiers points correspondants à des chemins trop longs. En effet, ces chemins peuvent être coupés à cause de l'épaisseur finie de l'échantillon ou peuvent sonder des taux de dissipation inhomogènes. Ainsi, on doit ajuster g_2 à son expression théorique :

$$g_{2,th}(t) = 1 + \beta \exp\left(-2\gamma\sqrt{6\frac{t}{\tau_B} + 6\frac{t^2}{\tau_G^2}}\right) \quad (6.3)$$

en éliminant les premiers points et on peut laisser le contraste β libre, autrement dit en faire un paramètre ajustable.

6.2.1.1 Pour l'écoulement de Taylor-Couette

Pour l'écoulement de Taylor-Couette, la longueur caractéristique de variation du tenseur des taux de déformation ζ est exactement la profondeur L (i.e. la distance entre les deux cylindres). Les deux effets (épaisseur finie et taux de dissipation inhomogène) sont donc imperceptibles pour les mêmes chemins de longueur s telle que $s \lesssim s_h \equiv L^2/l^*$. Ces chemins correspondent dans la fonction d'autocorrélation à des temps typiques donnés par $2\frac{s}{l^*}\left(\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{\tau_G^2}\right) = 1$. Ainsi, éviter ces effets revient à ajuster la fonction d'autocorrélation à l'expression théorique (6.3) pour les temps t donné par :

$$\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{\tau_G^2} = \frac{l^*}{2s} \gtrsim \frac{l^*}{2s_h} \equiv \frac{1}{2} \left(\frac{l^*}{L} \right)^2 \quad (6.4)$$

Un critère suffisant, que ce soit en la présence ou en l'absence d'écoulement, est donc donné par :

$$t \gtrsim \frac{\tau_B}{2} \left(\frac{l^*}{L} \right)^2 \quad (6.5)$$

Si on note t_{fit} le temps à partir duquel sont ajustées les données d'autocorrélation à sa forme théorique (6.3), on obtient les valeurs suivantes : $t_{fit} \gtrsim 0.179 \mu\text{s}$ pour la configuration avec l'Intralipide 20% et $t_{fit} \gtrsim 2.58 \mu\text{s}$ pour la configuration avec la suspension de TiO_2 .

Dans nos expériences sur cet écoulement, on utilise une période d'échantillonnage Δt de $1.28 \mu\text{s}$ pour le TPM et de $2.5 \mu\text{s}$ pour la caméra et ses pixels. Ces valeurs sont suffisamment faibles pour bien mesurer la décorrélation, et dans le cas de la caméra, elle est également suffisamment élevée pour que le temps d'exposition et donc l'intensité reçue par le capteur soit significativement au dessus du niveau de bruit. En éliminant simplement les deux premiers points ($m = 0$ et $m = 1$) pour le TPM et le premier point ($m = 0$) pour la caméra, on respecte alors (environ) les contraintes imposées ci-dessus car $t_{fit} = 2.56 \mu\text{s}$ pour le TPM et $t_{fit} = 2.5 \mu\text{s}$ pour les pixels. L'ajustement est réalisé de $t = t_{fit}$ jusqu'à $t_{max} = 250 \mu\text{s}$ (soit $m = 100$ pour le TPM et $m = 195$ pour les pixels). Il s'avère que pour les temps élevés de l'ordre de t_{max} , la valeur de g_2 est très faible par rapport aux valeurs initiales, et n'a donc quasiment pas d'influence dans l'ajustement. Les valeurs de γ et τ_G obtenues dépendent ainsi fortement des premiers points tels que $t \gtrsim t_{fit}$ et très peu des derniers points tels que $t \lesssim t_{max}$: on obtient les mêmes valeurs avec un intervalle plus long de 50, 100 ou 200 points.

La figure 6.1 illustre le très bon accord entre les données expérimentales et l'expression théorique (6.3) que ce soit en l'absence ou en présence de l'écoulement, avec chacun des instruments de mesure. Le coefficient de détermination R^2 lié à l'ajustement à l'expression théorique (6.3) est systématiquement supérieur à 0.995 dans le cas du TPM et à 0.99 dans le cas des pixels de la caméra.

6.2.1.2 Pour l'écoulement turbulent

Pour l'écoulement turbulent, l'effet d'épaisseur finie est absolument imperceptible avec nos capteurs (sauf éventuellement sur le premier point de la fonction d'autocorrélation $g_2(0)$), à cause du très grand rapport L/l^* , de l'ordre de 8×10^3 . Le seul effet à éviter dans l'ajustement concerne donc les chemins sondant des taux de dissipation

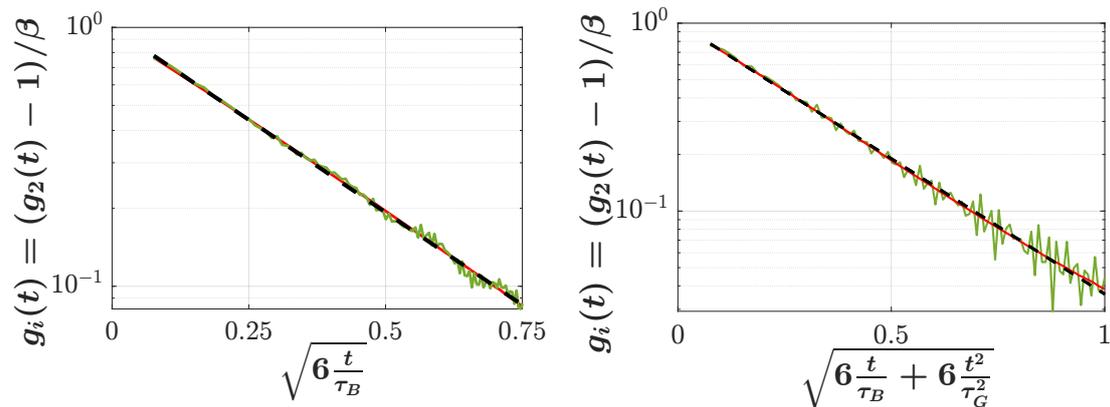


FIGURE 6.1 – Autocorrélation normalisée de l’intensité $g_i = (g_2 - 1)/\beta$ mesurée dans l’écoulement de Taylor-Couette. La courbe rouge correspond à une mesure par le tube photomultiplicateur et la verte à une mesure par un pixel de caméra, tandis que celle en tirets noirs désigne l’ajustement par l’expression théorique (6.3). À gauche, en l’absence d’écoulement ($1/\tau_G = 0\text{ s}^{-1}$) et à droite, en présence d’un cisaillement uniforme ($\Omega = 30\text{ rpm}$, $Ta = 424$, voir chapitre 7).

potentiellement inhomogènes.

On considérera que la longueur caractéristique ζ de variation du tenseur des taux de déformation est de l’ordre de la taille δ de la couche limite, que l’on estimera dans notre configuration (voir chapitre 7) par $\delta \approx L Re_L^{-1/2}$. Éviter de sonder des gradients inhomogènes (autrement dit ne sonder que Γ à la paroi) revient à ajuster la fonction d’autocorrélation à l’expression théorique (6.3) pour les temps t donné par :

$$\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{\tau_G^2} = \frac{l^*}{2s} \gtrsim \frac{l^*}{2s_h} \equiv \frac{1}{2} \left(\frac{l^*}{L Re_L^{-1/2}} \right)^2 \quad (6.6)$$

Le critère (6.5) utilisé pour l’écoulement de Taylor-Couette est ici trop contraignant, en particulier aux hautes valeurs de Re_L : cela reviendrait à des temps t trop élevés, tels que $g_2(t) \leq 10^{-3}$, autrement dit des valeurs trop faibles pour un ajustement de qualité, à cause du bruit sur la mesure. On cherche donc à satisfaire l’expression (6.6) directement et il faut pour cela estimer a priori l’ordre de grandeur de τ_G^2 et donc de $\Gamma^2 \equiv \varepsilon/\nu$ à la paroi de l’écoulement. Pour cela, on peut par exemple mesurer la puissance injectée dans l’écoulement (à l’aide d’un couplomètre, voir section 8.3.1), qui est égale à la puissance dissipée par la viscosité dans tout le volume V de fluide. Cette puissance dissipée est donnée par $\rho V \bar{\varepsilon}$ où $\bar{\varepsilon} = \nu \bar{\Gamma}^2$ désigne la moyenne du taux de dissipation dans tout le volume V . De cette mesure (voir section 8.3), on déduit : $\bar{\varepsilon} \approx c \nu Re_L^3$ et donc $\bar{\Gamma}^2 \approx c Re_L^3$ où c est une constante de l’ordre de 10^{-12} s^{-1} . On considérera qu’à la paroi,

pour nos capteurs (pixels ou TPM), le taux de dissipation est de l'ordre¹ de $\bar{\varepsilon}$. Le temps de corrélation au carré τ_G^2 est alors donné par $\tau_G^2 = \frac{30}{(\Gamma k l^*)^2} \approx 10^7 Re_L^{-3}$, et on obtient le critère suivant :

$$\frac{t}{\tau_B} + \frac{t^2}{10^7 Re_L^{-3}} \gtrsim \frac{1}{2} \left(\frac{l^*}{L Re_L^{-1/2}} \right)^2 \quad (6.7)$$

Comme dans nos expériences sur cet écoulement on a $l^*/L = 1.23 \times 10^{-4}$, $\tau_B = 3.68 \times 10^{-3}$ s et $10^4 \leq Re_L \leq 6.15 \times 10^5$, on obtient finalement le critère : $t \geq 0.45 \mu\text{s}$. En prenant une période d'échantillonnage Δt de $0.32 \mu\text{s}$ pour le TPM et de $2.33 \mu\text{s}$ pour la caméra², il suffit, comme dans l'écoulement de Taylor-Couette d'éliminer le premier point ($m = 0$) pour la caméra et les deux premiers points ($m = 0$ et $m = 1$) pour respecter le critère ci-dessus : $t_{fit} \geq 0.45 \mu\text{s}$. L'ajustement est réalisé de $t = t_{fit}$ jusqu'à $t_{max} \approx 100 \mu\text{s}$ ($m = 312$ pour le TPM et $m = 43$ pour les pixels), sachant que t_{max} a de nouveau peu d'importance.

La qualité d'ajustement est globalement moins bonne pour l'écoulement turbulent que pour l'écoulement de Taylor-Couette, en particulier aux plus hauts nombres de Reynolds avec la caméra. Nous avons identifié deux raisons probables à cela :

- d'une part, le temps de corrélation devient très faible à haut Reynolds, car la norme du tenseur des taux de déformation peut alors localement être très importante. Cet effet est évidemment plus critique dans le cas d'un pixel, qui sonde sur Γ sur une surface très faible comparée à celle du TPM, qui donne une mesure plus globale et donc moyennée. De plus, la période d'échantillonnage est largement plus élevée avec les pixels qu'avec le TPM ($2.33 \mu\text{s}$ contre $0.32 \mu\text{s}$), ce qui fait que les valeurs de g_2 sont vite très faibles (typiquement on peut avoir $g_2(m\Delta t) \leq 10^{-1}$ pour $m \approx 5$), réduisant la qualité de l'ajustement à l'expression théorique. Enfin, le temps d'exposition Δt_{expo} peut être seulement 1 ordre de grandeur plus faible, voire du même ordre de grandeur, que le temps de corrélation τ_G . Le problème suivant se pose alors : au lieu d'être mesurée sur une durée infinitésimale, la valeur $I(m\Delta t)$ correspond en fait à la moyenne sur la durée Δt_{expo} : $\frac{1}{\Delta t_{expo}} \int_{t=m\Delta t}^{m\Delta t + \Delta t_{expo}} I(t) dt$, autrement dit les fluctuations de l'intensité sont lissées sur un temps qui devient significatif. g_2 n'est ainsi plus strictement une exponentielle.
- D'autre part, le temps caractéristique des fluctuations du taux de dissipation Δt_{fluc} diminue avec le Reynolds. Pour une durée de moyennage identique, les

1. Cette hypothèse s'avèrera a posteriori relativement discutable, puisque la densité de probabilité de ε suit une loi log-normale (voir section 8.3.3) et on peut donc avoir des valeurs de ε bien plus faibles que $\bar{\varepsilon}$.

2. Plus précisément, on choisit la fréquence d'acquisition maximale $1/\Delta t = 430\,000$ Hz pour une résolution de 128×128 pixels.

fonctions d'autocorrélation seront donc moins bien convergées à haut Reynolds. Comme l'effet précédemment soulevé, celui-ci est plus critique pour les pixels, qui sondent une surface faible. Le taux de dissipation associé fluctue donc potentiellement plus dans le temps que celui sondé par une mesure globale du TPM.

En conséquence, pour les pixels de la caméra, le coefficient de détermination R^2 n'est systématiquement supérieur à 0.99 qu'en l'absence d'écoulement ou aux Reynolds les plus faibles, et peut descendre jusqu'à 0.9 aux Reynolds les plus élevés (la moyenne sur tous les pixels étant tout de même de l'ordre de 0.97). Pour la mesure faite par le TPM, R^2 reste supérieur à 0.985 en allant à des Reynolds plus élevés qu'avec la caméra, voire à 0.99 si on se restreint aux mêmes Reynolds que la caméra.

6.2.2 Détermination du paramètre γ

Comme précisé dans la section 3.4.3.5, pour chaque expérience de DWS, on détermine le paramètre d'ajustement γ à l'aide d'une mesure préliminaire en l'absence d'écoulement, en ajustant g_2 à sa forme théorique dérivée de l'expression (3.93) :

$$g_2(t) = 1 + \beta \exp\left(-2\gamma\sqrt{6\frac{t}{\tau_B}}\right) \quad (6.8)$$

où le contraste β est un paramètre ajustable, l'intervalle d'ajustement est tel que décrit précédemment et le temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B est désormais connu (voir section 5.3).

Pour l'écoulement de Taylor-Couette, on obtient les valeurs de γ suivantes : 2.27 avec la caméra et 2.31 avec le TPM pour la configuration avec la suspension de TiO_2 contre 1.63 avec la caméra et 1.66 avec le TPM pour la configuration avec l'Intralipide 20%. Comme décrit à la section, la différence significative entre les deux configurations s'explique par les différents matériaux (et donc indices de réfraction) et formes expérimentales utilisés (voir section 7.1).

Pour l'écoulement turbulent, on obtient les valeurs de γ suivantes : 2.32 avec la caméra et 2.45 avec le TPM. Ici, la différence est liée au fait que la surface sondée par le TPM est significativement plus grande que celle sondée par la caméra, et que l'effet du faisceau gaussien commence à devenir perceptible. En effet, une partie significative de l'intensité reçue par le TPM au bord de la surface sondée correspond en fait à de la lumière qui était incidente au centre de cette surface, car l'intensité incidente est plus élevée au centre de part la nature gaussienne du faisceau incident. Le champ "sortant" au bord de la surface correspond donc à des chemins plus longs, en moyenne, que si l'intensité incidente était purement uniforme. Comme décrit précédemment, ces chemins

plus longs entraînent une décorrélation plus rapide et donc une valeur de γ plus élevée.

On soulignera que pour les deux écoulements, la valeur de γ est en fait légèrement différente pour chaque pixel. Il s'agit typiquement d'une distribution gaussienne avec un coefficient de variation (rapport écart-type sur valeur moyenne) de l'ordre de 5%. Nous avons choisi, pour chacun des pixels, d'utiliser la valeur moyenne de γ et pas la valeur exacte obtenue directement.

6.3 Convergence des fonctions d'autocorrélation

Dans la section précédente, il y a deux paramètres reliés dont nous n'avons pas discuté l'importance et la valeur : le nombre de pas de temps N_{moy} et la durée de moyennage totale $\Delta t_{moy} = N_{moy}\Delta t$. Ceux-ci conditionnent la convergence des fonctions d'autocorrélation g_2 ou g_i . Pour évaluer et quantifier cette convergence, on distingue deux types de mesure :

- d'une part, le cas où le taux de dissipation sondé par le capteur (TPM ou pixel) est constant dans le temps, on parlera alors de dissipation stationnaire,
- et d'autre part, le cas où le taux de dissipation fluctue dans le temps, on parlera alors de dissipation instationnaire.

Dans le premier cas, sans surprise, la convergence de la fonction d'autocorrélation vers sa forme théorique est d'autant meilleure que le durée de moyennage est importante. Plus précisément, si on s'intéresse au coefficient de détermination R^2 qui décrit la qualité de l'ajustement de l'autocorrélation mesurée à son expression théorique (6.3), celui-ci varie alors de manière attendue³ comme $R^2 = 1 - C/\Delta t_{moy}$ où C est une constante (voir figure 6.2).

Dans le second cas, une durée de moyennage plus élevée ne signifie pas forcément une meilleure convergence. En effet, si Γ et donc τ_G fluctuent dans le temps, la fonction d'autocorrélation garde sa forme exponentielle mais avec un argument différent. Si la durée de moyennage est trop importante, la fonction d'autocorrélation devient donc une moyenne d'exponentielles d'arguments différents, hors cette moyenne d'exponentielles

3. En effet, $1 - R^2 = \sum_m (y_m - \hat{y}_m)^2 / \sum_m (y_m - \bar{y})^2$ où $y_m = g_2(m\Delta t)$ est la valeur mesurée au point m , $\hat{y}_m = g_{2,th}(m\Delta t)$ est la valeur attendue au point m , \bar{y} est la valeur moyenne mesurée et m parcourt l'intervalle d'ajustement. Ainsi, $1 - R^2$ est proportionnel à la variance sur chacun des points m , variance qui d'après le théorème centrale limite, est inversement proportionnelle au nombre de points dans la moyenne de chaque valeur $g_2(m\Delta t)$, c'est-à-dire $N_{moy} - m \approx N_{moy} \equiv \Delta t_{moy}/\Delta t$. Pour une valeur fixe de Δt , comme c'est notre cas, on a donc $1 - R^2 \propto 1/\Delta t_{moy}$.

n'est plus une exponentielle, d'où un moins bon ajustement à l'expression théorique. Ainsi, choisir une durée de moyennage trop élevée entraîne non seulement la perte de la résolution temporelle, mais ne permet pas non plus de remonter correctement au Γ moyen⁴. Il y a donc un compromis à trouver : la durée de moyennage doit être suffisamment importante pour permettre la convergence à un niveau raisonnable, mais rester suffisamment faible devant le temps caractéristique des fluctuations de dissipation, sachant que ce temps dépend de la zone sondée et donc du capteur (pixel ou TPM). Cette condition est donc la même que la condition (3.113) pour avoir une mesure résolue temporellement du taux de dissipation : $\Delta t_{conv} \leq \Delta t_{moy} < \Delta t_{fluc}$. La figure 6.2 illustre ces deux effets dans le cas du TPM. Dans ce cas, la durée de moyennage optimale est de l'ordre de 0.5 s. Une figure similaire, avec des temps caractéristiques différents, serait obtenue avec la mesure par un pixel de caméra.

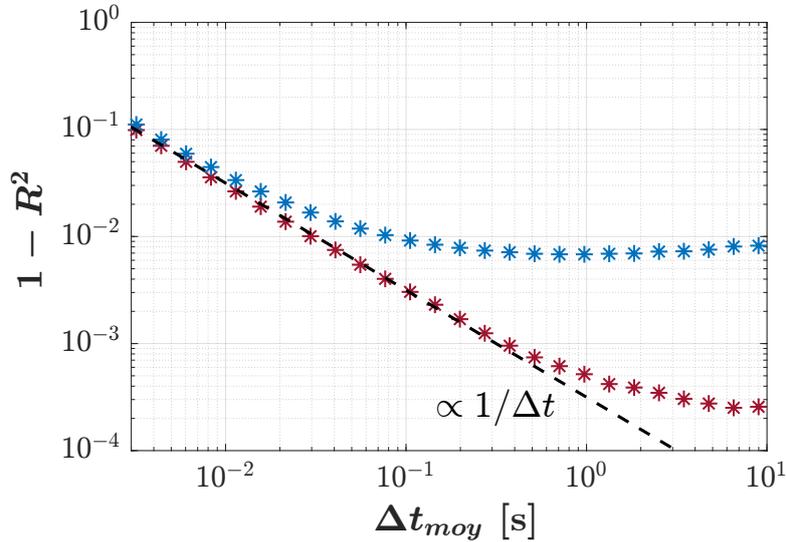


FIGURE 6.2 – Exemple de qualité de l'ajustement entre la fonction d'autocorrélation mesurée et l'expression théorique (6.3) en fonction de la durée de moyennage Δt_{moy} . Plus le coefficient de détermination R^2 est proche de 1, et donc le paramètre $1 - R^2$ proche de 0, plus l'ajustement est bon. Les étoiles rouges correspondent à un taux de dissipation stationnaire et les bleus à un taux de dissipation instationnaire, sondés dans les deux cas par le TPM. La durée de moyennage optimale est d'environ 0.5 s pour ce cas de figure.

Les valeurs choisies pour la durée de moyennage dépendent ainsi du temps caracté-

4. Si on ajustait une fonction d'autocorrélation trop moyennée à l'expression théorique (6.3), le coefficient de détermination serait non seulement moins bon mais la valeur moyenne de Γ serait également sous-estimée, car la fonction $t \rightarrow g_2(t)$ est strictement convexe sur \mathbb{R}^+ .

téristique des fluctuations du tenseur des taux de déformation Δt_{fluc} et sont données dans le tableau 6.1. Les durées de moyennage sont systématiquement plus faibles avec la caméra. En effet, le temps caractéristique des fluctuations de la dissipation sondée par chaque pixel est largement plus faible que le temps caractéristique des fluctuations de la dissipation moyenne sondée par le TPM.

6.4 Valeurs des paramètres utilisés

Le tableau 6.1 donne la valeur des paramètres d'intérêt pour le calcul des fonctions d'autocorrélation : la fréquence d'acquisition f_{acq} et la période d'échantillonnage associée $\Delta t \equiv 1/f_{acq}$, le temps d'exposition Δt_{expo} , l'intervalle d'ajustement à l'expression théorique, la durée de moyennage Δt_{moy} , correspondant à un nombre de points $N_{moy} \equiv \Delta t_{moy}/\Delta t$ et enfin le paramètre γ .

Expérience	Taylor-Couette		Écoulement turbulent	
	Camera	TPM	Camera	TPM
f_{acq}	400 000 Hz	781 250 Hz	430 000 Hz	3 125 000 Hz
Δt	2.5 μ s	1.28 μ s	2.33 μ s	0.32 μ s
Δt_{expo}	2 μ s	1.28 μ s	1.8 μ s	0.32 μ s
Points ajustés	$1 \leq m \leq 100$	$2 \leq m \leq 195$	$1 \leq m \leq 43$	$2 \leq m \leq 312$
N_{moy}	100 000 ou ⁴ 25 000	46 875 000 ⁵	25 000	1 562 500
Δt_{moy}	0.25 s ou ⁴ 0.0625 s	60 s ⁵	0.058 s	0.5 s
γ	2.27 ⁶ ou 1.63 ⁷	2.31 ⁶ ou 1.66 ⁷	2.32	2.45

TABLE 6.1 – Valeur des paramètres utilisés pour la mesure de l'intensité diffusée et le calcul des fonctions d'autocorrélation.

4. Dans le régime de Couette ou celui des rouleaux de Taylor, c'est-à-dire lorsque l'écoulement est stationnaire, on favorise une meilleure convergence des fonction d'autocorrélation en choisissant une durée de moyennage plus importante ($N_{moy} = 100\,000$) que lorsque l'écoulement est instationnaire, c'est-à-dire dans le régime des rouleaux oscillants, où on cherche à avoir la résolution temporelle ($N_{moy} = 25\,000$).

5. Le taux de dissipation sondé par le TPM est stationnaire y compris dans le régime des rouleaux oscillants, à cause de la surface de mesure importante, qui correspond à une dizaine de rouleaux (voir chapitre 7).

6. Pour la configuration avec suspension de TiO_2 .

7. Pour la configuration avec l'Intralipide 20%.

Chapitre 7

Mesures de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette

La DWS a déjà été appliquée une première fois à l'écoulement de Taylor-Couette en 1994 par Bicout et Maret [4]. Dans ce travail précurseur, les auteurs ont effectué des mesures de DWS globales (avec un faisceau étendu) ainsi que des mesures ponctuelles (avec un faisceau de largeur 1 mm), en utilisant un tube photomultiplicateur et un corrélateur. Ils ont ainsi confirmé la capacité de la DWS à déterminer la norme du tenseur des taux de déformation et donc le taux de dissipation dans un écoulement, comme démontré la première fois par Wu et al.(1990) [3].

Ici, l'objectif est d'aller plus loin en validant l'utilisation pour la DWS d'une caméra haute vitesse, afin d'obtenir une carte dépendante du temps de cette norme, autrement dit la résolution spatio-temporelle de la dissipation à l'interface d'un écoulement. Les résultats obtenus avec la suspension de TiO_2 permettent également de confirmer qu'il s'agit d'un fluide pertinent pour les expériences de DWS, par comparaison avec les résultats obtenus grâce à l'Intralipide 20%, qui constitue une référence pour les expériences de diffusion de la lumière.

7.1 Dispositif

7.1.1 Écoulement

Notre écoulement de Taylor-Couette (TC) est généré dans deux cellules différentes, adaptées à la viscosité de chacun des deux fluides utilisés (voir chapitre 5). Elles sont conçues de manière à ce qu'un régime linéaire (pour Γ , autrement dit le régime de Couette) et les premières instabilités puissent être observés dans notre plage de paramètres accessibles. Toutes deux sont constituées de deux cylindres coaxiaux en PMMA d'une hauteur de $H = 10$ cm, le cylindre extérieur étant creux en son centre. Le fluide diffusant se trouve dans le volume entre ces deux cylindres, appelé entrefer. La première cellule, utilisée pour la suspension de TiO_2 , a un rayon intérieur $R_1 = 12.9$ mm, un rayon extérieur $R_2 = 15$ mm, l'entrefer a donc une épaisseur $L = 2.1$ mm. L'extérieur du cylindre externe est en fait plan, pour limiter les aberrations optiques. La deuxième cellule, utilisée pour l'Intralipide 20%, est légèrement plus grande car sa viscosité est plus élevée (voir section 5.2) : $R_1 = 12.9$ mm, $R_2 = 15.75$ mm et $L = 2.85$ mm. Dans ce cas, le cylindre externe est immergé dans un réservoir carré rempli d'eau claire, également afin de réduire les aberrations optiques¹. Pour les deux cellules, le cylindre externe est fixe et le cylindre interne est entraîné à une vitesse de rotation donnée par une tête de rhéomètre (Anton Paar SDR301). Le rhéomètre donne par ailleurs une mesure précise du couple appliqué au cylindre interne, ce qui nous permet de déterminer la viscosité du fluide (voir section 5.2).

7.1.2 Agencement optique et appareils de mesure

L'agencement optique, représenté sur la figure 7.1, comprend une source laser continue polarisée linéairement (CNI MSL-R-532-2000) d'une puissance de 2 W et de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm. Le faisceau laser est agrandi par une lentille de microscope et allongé verticalement par une lentille cylindrique afin d'illuminer uniformément l'ensemble du cylindre. La lumière rétrodiffusée est reçue par 2 appareils de mesure : un tube photomultiplicateur (TPM) associé à un corrélateur, ainsi qu'une caméra haute vitesse.

Le tube photomultiplicateur (Hamamatsu PMT H9305-04) collecte la lumière à travers une fibre optique monomode, afin d'assurer la sélection d'un petit nombre de speckles [53]. Son ouverture numérique est de 0.12 ± 0.02 et elle est située à 20 cm de

1. Cette différence dans les dispositifs entraîne des facteurs de réflexion à l'interface différents, et donc des valeurs du paramètre γ différentes (voir section 6.2.2). En théorie, la longueur des chemins et donc la profondeur sondée étant plus faible en l'absence de réflexion, ceci peut entraîner une différence dans la valeur de Γ mesurée, Γ étant fonction de la profondeur. Nous avons vérifié numériquement que cet effet est, dans le cas présent, négligeable.

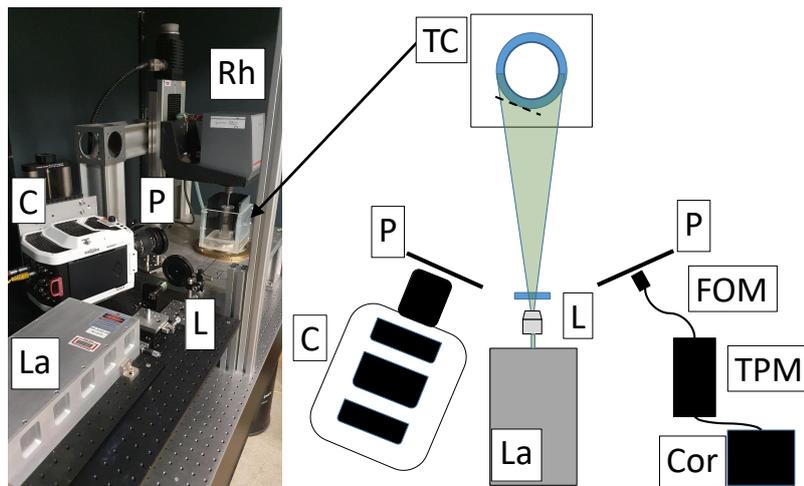


FIGURE 7.1 – Photo (vue de côté) et schéma (vue du dessus) du dispositif expérimental. Un faisceau cohérent produit par le laser (La) est agrandi par une lentille de microscope et allongé verticalement par une lentille cylindrique (L) afin d'illuminer entièrement la face avant d'une cellule de Taylor-Couette (TC) remplie d'un des fluides diffusants. La lumière rétrodiffusée est collectée à travers un polariseur (P) par la caméra haute vitesse (C) dont la mise au point est effectuée à l'interface entre l'entrefer où se trouve le fluide et le cylindre extérieur (tirets noirs). Un speckle de lumière rétrodiffusée en champ lointain est également sélectionné à travers un polariseur (P) par une fibre optique monomode (FOM) reliée à un tube photomultiplicateur (TPM) et à un corrélateur (Cor) (non visibles sur la photo). Le cylindre intérieur de la cellule de Taylor-Couette est entraîné à vitesse de rotation constante par une tête de rhéomètre (Rh) (non représentée dans le schéma).

l'interface entre le fluide et le cylindre extérieur. Par conséquent, la surface de mesure est un disque de rayon de 2.4 ± 0.4 cm (voir figure 7.2). Un corrélateur (FLEX02-01D) est connecté au TPM pour récupérer le signal d'intensité ou calculer directement son autocorrélation, avec une période d'acquisition Δt de $1.28 \mu\text{s}$. Cette partie du dispositif nous permet de retrouver les résultats précédemment obtenus par Bicout et Maret [4].

La mise au point de la caméra haute vitesse (Phantom V2011) est effectuée à l'interface entre le cylindre extérieur et le fluide pour mesurer l'intensité rétrodiffusée directement à la sortie de l'entrefer. Un pixel correspond alors à plusieurs speckles, l'intensité de ces speckles fluctuant suivant le taux de dissipation local. Un pixel correspond, dans l'espace objet, à une surface carrée de côté environ $250 \mu\text{m}$. On notera que la surface as-

sociée à chaque pixel est nettement supérieure à $l^* \times l^*$ (l^* vaut $35 \mu\text{m}$ pour l’Intralipide 20%, et $82 \mu\text{m}$ pour la suspension de TiO_2), ce qui permet d’avoir une mesure locale de Γ , moyennée sur la surface associée au pixel. On peut ainsi obtenir une carte de Γ de 64×128 pixels (Largeur \times Hauteur), avec une surface de mesure totale d’environ $1.6 \text{ cm} \times 3.2 \text{ cm}$ (voir figure 7.2).

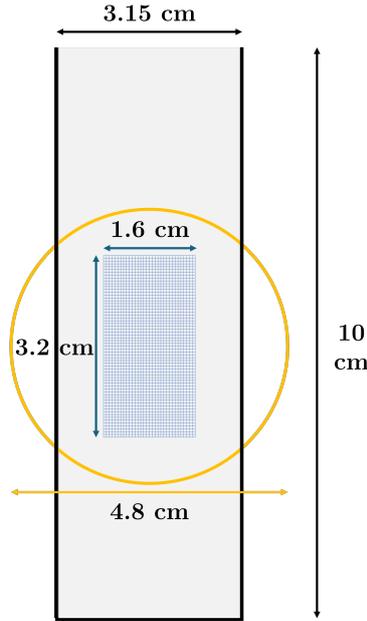


FIGURE 7.2 – Vue de face de la surface pour laquelle l’intensité rétrodiffusée est mesurée. Pour le tube photomultiplicateur, l’intensité étant récoltée via une fibre optique monomode, la surface de mesure est un disque (délimité par le cercle orange). Pour la caméra, il s’agit d’un rectangle de 64×128 pixels (en bleu), chaque pixel correspondant à une surface carrée de $250 \mu\text{m}$ de côté. Le diamètre extérieur de l’entrefer étant suffisamment grand (3.15 cm pour la configuration avec l’Intralipide 20%, 3 cm pour la configuration avec la suspension de TiO_2) par rapport à la taille horizontale sondée par la caméra, les effets liés à la courbure de l’interface sont négligeables.

Ce choix de 64×128 pixels est contraint d’une part par le format de l’écoulement (dont la structure est verticale) et d’autre part par la fréquence d’acquisition de la caméra. En effet, la fréquence d’acquisition de ce modèle peut atteindre 22 000 images par seconde (ips) en résolution complète (1280×800) mais nous avons réduit la résolution à 64×128 pour atteindre 400 000 ips, correspondant à une période d’acquisition $\Delta t = 2.5 \mu\text{s}$. Cette période d’acquisition permet de mesurer des valeurs de Γ jusqu’à plus

de 200 s^{-1} . En effet, lorsque la décroissance la fonction d'autocorrélation g_2 (expression (6.3)) est dominée par la dissipation dans l'écoulement, autrement dit lorsque $\tau_G \ll \tau_B$, le temps de décroissance caractéristique mesuré τ_{mes} est donné par :

$$\tau_{mes} = \tau_G / (\sqrt{6}\gamma) = \sqrt{5}/(\gamma kl^* \Gamma) \approx 2 \times 10^{-3} / \Gamma \quad (7.1)$$

pour la suspension de TiO_2 (le cas le plus contraignant). Ainsi, la caméra est assez rapide tant que Γ n'est pas trop élevé : si $\Gamma \leq 200 \text{ s}^{-1}$, alors $\tau_{mes} \geq 10 \mu\text{s} = 4\Delta t$, ce qui est suffisant pour ajuster correctement la fonction d'autocorrélation et en déduire Γ . On notera que Γ peut localement être sensiblement plus grand que l'estimation linéaire ($\Gamma = \Omega R_1/L$) dès l'apparition des rouleaux de Taylor. C'est pourquoi nous avons pu effectuer l'expérience jusqu'à une vitesse de rotation maximale² de 100 rpm.

À cette fréquence d'acquisition, l'intensité lumineuse sur le capteur CMOS de la caméra peut être problématique car très faible³. C'est pourquoi nous n'utilisons pas de diaphragme pour augmenter la taille des speckles au niveau des pixels (et donc diminuer leur nombre par pixel), ce qui permettrait en théorie d'augmenter le contraste β puisque celui-ci évolue comme l'inverse du nombre de speckles (voir section 3.2.1). En effet, l'ajout d'un diaphragme entraîne une diminution de l'intensité lumineuse au niveau du capteur CMOS, intensité qui devient alors faible devant la sensibilité du capteur. Typiquement, l'intensité mesurée au niveau d'un pixel donné présente un contraste d'environ 0.8%, ce qui est faible (les fluctuations d'intensité ne sont pas très marquées à l'oeil nu), mais en fait largement suffisant pour obtenir la bonne fonction de corrélation (voir la figure 6.1 du chapitre précédent.).

Enfin, deux polariseurs, croisés par rapport à la polarisation du laser, sont placés respectivement devant la caméra et devant l'ouverture de la fibre optique reliée au TPM. Ceci permet d'éliminer les réflexions spéculaires, c'est-à-dire la lumière directement réfléchi aux interfaces et qui n'a pas été diffusée par le fluide. Ces polariseurs entraînent une augmentation de la valeur du paramètre γ lié au dispositif expérimental, sans conséquence sur l'interprétation des données. On se référera aux sections 3.4.3.5 et 6.2.2 pour le détail de l'impact de ces polariseurs sur la fonction d'autocorrélation.

2. Comme le montrent nos mesures sur l'écoulement turbulent (chapitre 8), il est en fait raisonnable d'aller jusqu'à des valeurs plus élevées de Γ , typiquement $\Gamma = 400 \text{ s}^{-1}$. Néanmoins, dans notre cellule de Taylor-Couette, le problème principal, avant même d'attendre ces valeurs de Γ , est l'instationnarité du taux de dissipation à l'échelle d'un pixel : la durée de convergence des fonctions d'autocorrélation devient supérieure au temps caractéristique des fluctuations de la dissipation.

3. C'est d'ailleurs pour cette raison que la fréquence d'acquisition de la caméra n'est pas poussée à son maximum à la résolution 64×128 . En effet, celle-ci entraînerait un temps d'exposition très faible, et une intensité trop faible au niveau du capteur CMOS.

7.2 Procédure expérimentale

L'expérience se déroule comme suit :

- Nous préparons le fluide diffusant comme décrit dans le chapitre 5, avant d'en remplir l'entrefer de la cellule de Taylor-Couette. Le moteur et donc le cylindre interne sont ensuite mis en route à une vitesse de rotation $\Omega = 100$ rpm pendant 3 minutes, afin d'obtenir une concentration uniforme des diffuseurs et donc un libre parcours moyen de transport uniforme dans le fluide.
- Après avoir imposé une vitesse de rotation nulle et attendu 2 minutes pour éviter toute vitesse résiduelle du fluide, nous procédons à une mesure en l'absence d'écoulement ($\Omega = 0$ rpm) afin de déterminer le paramètre γ (voir section 6.2.2).
- Ensuite, nous alternons des vitesses de rotation élevées et faibles pour assurer un bon mélange tout au long de l'expérience et éviter l'inhomogénéité et l'agglomération des particules de TiO_2 . Toutes les mesures commencent 1 minute après que la vitesse de rotation ait été modifiée afin d'assurer un régime stationnaire et non transitoire. Le couple est enregistré par le rhéomètre 1 fois par seconde. L'intensité d'un speckle en champ lointain est mesurée par le TPM et son autocorrélation est calculée par le corrélateur en temps réel. La période d'échantillonnage du corrélateur est de $1.28 \mu\text{s}$ et la fonction de corrélation est moyennée sur 60 s. Simultanément, l'intensité des speckles à l'interface entre le cylindre extérieur et l'entrefer est enregistrée par la caméra haute vitesse. La période d'échantillonnage de la caméra est de $2.5 \mu\text{s}$. Pour les régimes stationnaires, c'est-à-dire le régime de Couette et le régime des rouleaux de Taylor, la fonction de corrélation est moyennée sur 100 000 images, soit 0.25 s. Pour le régime instationnaire des rouleaux oscillants (*wavy vortex flow* en anglais), la moyenne est effectuée sur seulement 25 000 images, soit 0.0625 s, beaucoup moins que la période de rotation, pour obtenir la résolution temporelle⁴. La durée de la mesure complète par la caméra est alors de 2 s, soit 800 000 images. La résolution temporelle de la carte de 64×128 pixels de Γ est donc de $1/16^{\text{ème}}$ de seconde. En fin de compte, la durée totale de la mesure pour une vitesse de rotation donnée est d'environ 3 min.
- Nous terminons la série de mesures par une deuxième mesure en l'absence d'écoulement ($\Omega = 0$ rpm) pour nous assurer que la valeur de γ n'a pas changé. En effet, une évolution de la valeur de γ indiquerait un changement de la valeur du temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B et donc du rayon hydrodynamique des particules (par agglomération notamment).

4. Le taux de dissipation sondé par le TPM est stationnaire y compris dans le régime des rouleaux oscillants, à cause de la surface de mesure importante, qui correspond à une dizaine de rouleaux. Il n'y a donc pas de différence dans la durée de moyennage entre les différents régimes de l'écoulement.

7.3 Résultats

7.3.1 Mesures globales

La première étape pour valider l'utilisation de la technique consiste à comparer les mesures expérimentales de Γ par DWS à la valeur théorique attendue, à savoir l'expression (1.11) évaluée en $r = R_2$:

$$\Gamma_{th}(R_2) = \frac{2\Omega R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} \quad (7.2)$$

On peut voir sur la figure 7.3 l'excellent accord, dans le régime de Couette, entre la prédiction théorique et la mesure de DWS, que ce soit avec le TPM (comme cela avait été fait par Bicout et Maret dans [4]) ou avec la caméra, où la valeur correspond à la moyenne de Γ sur tous les pixels.

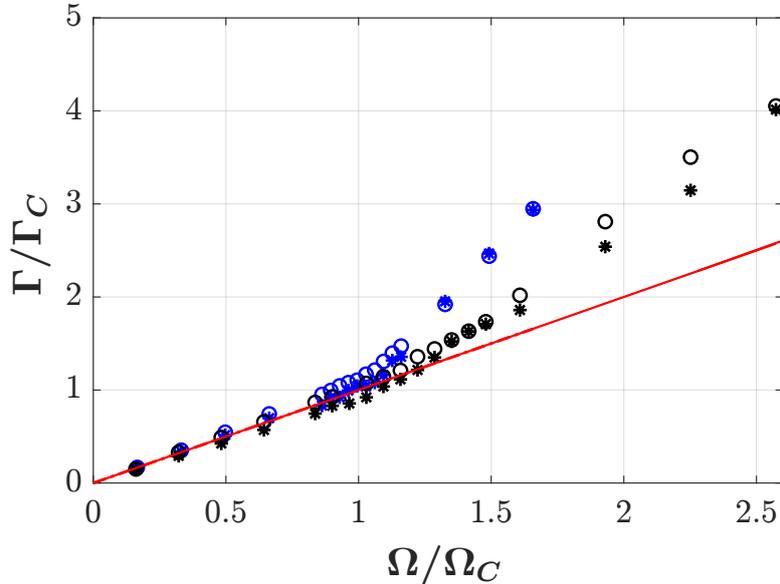


FIGURE 7.3 – Γ/Γ_c à l'interface entre l'entrefer et le cylindre extérieur ($r = R_2$), mesuré par DWS avec le tube photomultiplicateur (cercles) et avec la caméra (étoiles), en fonction de la vitesse de rotation adimensionnée Ω/Ω_c . Les données en bleu correspondent à l'Intralipide 20% ($\Omega_c = 60.3$ rpm, $\Gamma_c = 25.7$ s⁻¹), celles en noir à la suspension de TiO₂ ($\Omega_c = 31.1$ rpm, $\Gamma_c = 18.5$ s⁻¹). La droite rouge correspond à la prédiction théorique pour le régime de Couette (expression (7.2)).

L'écart à la valeur théorique apparaît, comme attendu, au Taylor critique $Ta_c = 1712$, correspondant à l'apparition de la première instabilité (régime des rouleaux de

Taylor). Cela correspond à une valeur critique de la vitesse de rotation $\Omega_c = 60.3$ rpm pour l'Intralipide 20% et $\Omega_c = 31.1$ rpm pour la suspension de TiO_2 . Les valeurs critiques de Γ , données par $\Gamma_c = 2\Omega_c R_1^2 / (R_2^2 - R_1^2)$, sont donc respectivement $\Gamma_c = 25.7 \text{ s}^{-1}$ pour l'Intralipide 20% et $\Gamma_c = 18.5 \text{ s}^{-1}$ pour la suspension de TiO_2 . On notera qu'on n'attend pas que les mesures de Γ soient les mêmes pour le TPM et pour la caméra au-delà du seuil, ce serait en revanche le cas pour le taux de dissipation ε si les surfaces sondées étaient strictement les mêmes. En effet, c'est la quantité $\Gamma^2 \equiv \varepsilon/\nu$ et non directement Γ qui est pondérée spatialement dans la mesure de DWS (expressions (3.55) et (3.56)).

7.3.2 Mesures spatio-temporelles

7.3.2.1 Mesures locales : résolution spatiale

En faisant la mise au point de la caméra sur l'interface cylindre extérieur – entrefer (où se trouve le fluide), on obtient une mesure résolue spatialement de Γ à l'interface. Des cartes de Γ à différentes vitesses de rotation sont présentées en figure 7.4.

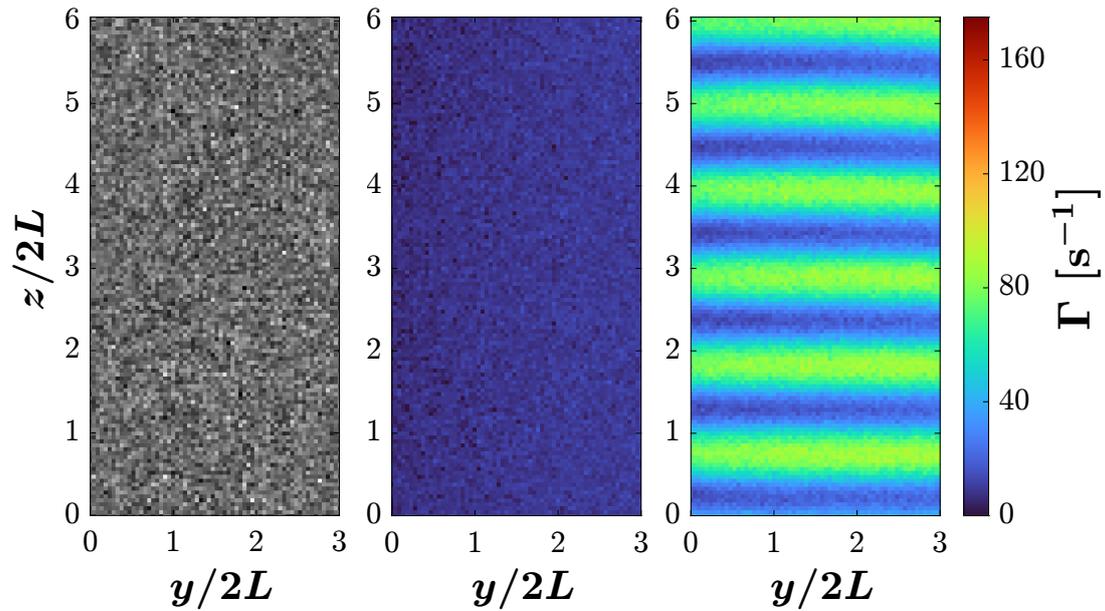


FIGURE 7.4 – À gauche, image de la figure de speckle directement mesurée par la caméra (unité d'intensité arbitraire). Au milieu, carte spatialement résolue de Γ dans le régime de Couette ($\Omega = 20$ rpm, $Ta = 188 < 1712 = Ta_c$). À droite, carte spatialement résolue de Γ dans le régime des rouleaux de Taylor ($\Omega = 80$ rpm, $Ta = 3012 > Ta_c$), dont le motif spatial présente une longueur d'onde d'environ $2L$. Le maximum de la colorbar (175 s^{-1}) correspond au Γ maximum mesuré durant l'expérience, pour $\Omega = 100$ rpm (voir figure 7.5).

On notera qu'il aurait pu être plus simple de présenter des cartes de ε , dans la mesure où il suffit de faire la moyenne de ε sur chaque pixel pour avoir la valeur moyenne de ε , ce qui n'est pas le cas avec Γ . Les cartes de ε sont néanmoins d'amplitude trop importantes pour être correctement représentées avec une barre de couleur linéaire, plus intuitive.

Ces cartes proviennent de la configuration avec l'Intralipide 20%. On obtient des cartes de qualité identique pour la configuration avec la suspension de TiO_2 . La région de mesure étant limitée horizontalement à environ 1.6 cm, pour un diamètre extérieur de l'entrefer bien supérieur (3.15 cm pour la configuration avec l'Intralipide 20%, 3 cm pour la configuration avec la suspension de TiO_2), les effets liés à la courbure de l'interface sont négligeables. Grâce à ces mesures résolues spatialement, on peut observer le régime de dissipation homogène à l'interface (régime de Couette : $Ta < Ta_C$) puis de dissipation inhomogène (régime des rouleaux de Taylor et au-delà : $Ta \geq Ta_C$). Dans le régime des rouleaux de Taylor, Γ présente alors un motif périodique attendu [4] de longueur d'onde environ $2L$.

7.3.2.2 Mesures locales dans le temps : résolution spatio-temporelle

Pour obtenir la résolution spatio-temporelle, on moyenne sur 25 000 images la fonction d'autocorrélation et on répète cette opération sur les 800 000 images, soit 32 fois. On obtient ainsi une carte de la dissipation avec une résolution temporelle de 0.0625 s soit $1/16^{\text{ème}}$ de seconde. On peut alors observer l'oscillation des rouleaux dans le régime des rouleaux oscillants. La figure 7.5 illustre cette résolution spatio-temporelle à $\Omega = 100$ rpm ($Ta = 4706$) pour la configuration avec l'Intralipide 20% (de nouveau, on obtient des résultats de même qualité dans la configuration avec la suspension de TiO_2). En haut, 3 cartes de Γ , à 0.125 s d'intervalle, permettent d'observer différentes phases de l'oscillation des rouleaux. En bas, un diagramme spatio-temporel permet d'extraire la période d'oscillation (environ 0.52 s). Sachant qu'il y a 4 ondes azimutales, on en déduit que la vitesse d'oscillation est d'environ 0.29Ω , ce qui correspond aux valeurs habituellement observées pour nos paramètres [26]. Une animation vidéo de la mesure complète, d'une durée totale de 2 s, est disponible dans les "Supplementary material" de l'article en annexe C.

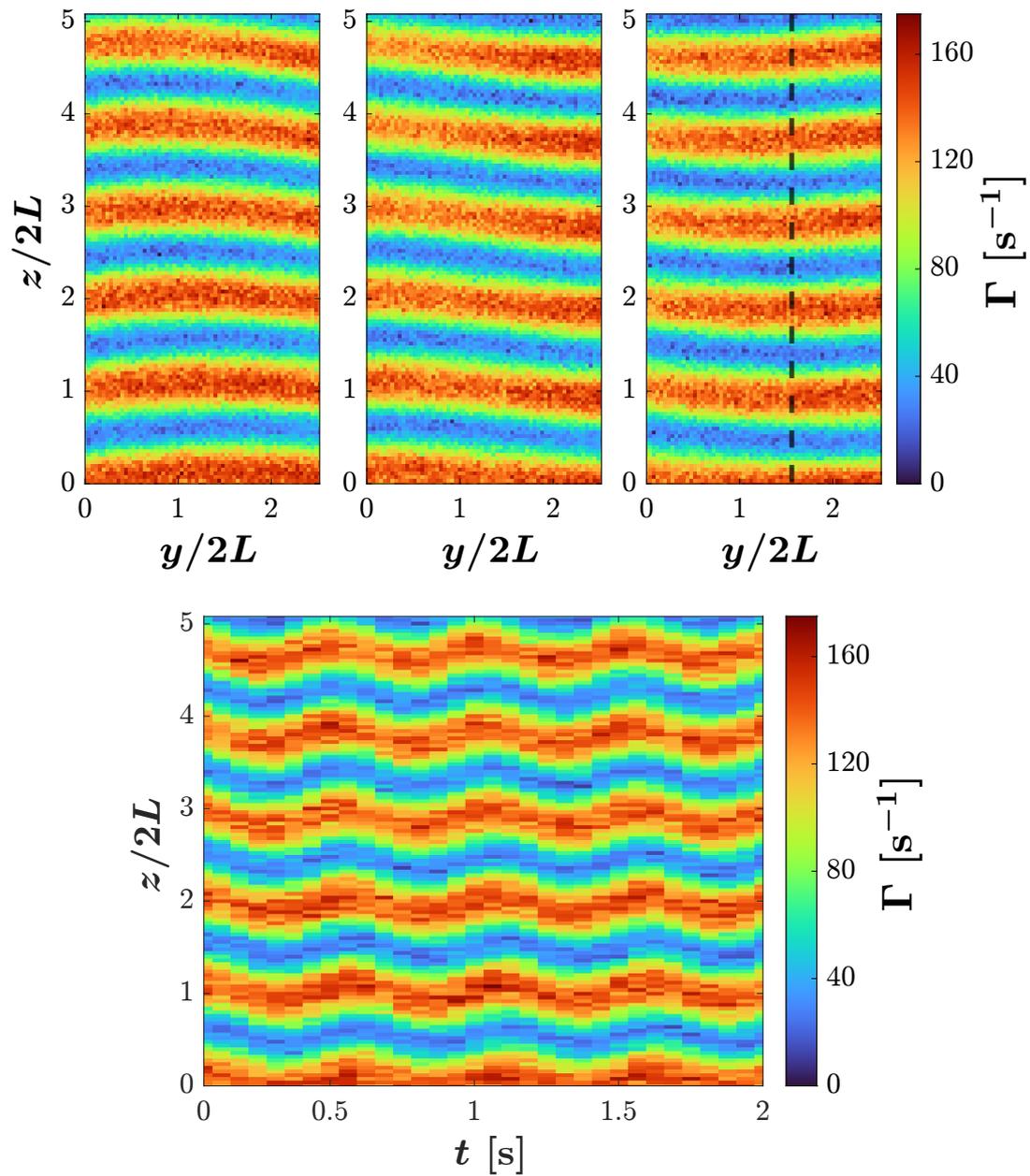


FIGURE 7.5 – En haut, trois cartes spatialement résolues de Γ , à 0.125 s d'intervalle, dans le régime des rouleaux oscillants (*wavy vortex flow*) : $\Omega = 100$ rpm, $Ta = 4706$. En bas, diagramme spatio-temporel de Γ pour la colonne de pixel correspondant aux tirets noirs sur la carte en haut à droite. La période d'oscillation vaut environ 0.52 s.

7.4 Conclusion

Les mesures que nous avons effectuées sur l'écoulement de Taylor-Couette confirment que l'utilisation d'une caméra haute vitesse en DWS permet d'obtenir la résolution spatiale du taux de dissipation à l'interface d'un écoulement. En effet, comme attendu, chaque pixel sonde le taux de dissipation quasi-essentiellement sur sa surface dans l'espace objet, ce qui permet d'obtenir une résolution au pixel près. Le très bon accord entre la mesure globale par un tube photomultiplicateur, la mesure spatialement résolue par la caméra et les valeurs connues dans le régime de Couette prouvent également le caractère quantitatif de la mesure. En retrouvant la période et la vitesse d'oscillation attendue dans le régime des rouleaux oscillants, nous avons également validé le fait qu'en moyennant la fonction d'autocorrélation sur une durée inférieure au temps caractéristique des fluctuations du taux de dissipation, on obtient la résolution temporelle de ε . La DWS permet donc d'obtenir des mesures quantitatives résolues en temps et en espace du taux de dissipation ε à l'interface d'un écoulement.

Par ailleurs, les mêmes résultats (à paramètres de dispositif égaux) ayant été obtenus avec l'Intralipide 20% et avec la suspension de TiO_2 , ces expériences ont également permis de confirmer que cette dernière constitue un fluide pertinent pour les expériences de DWS.

Chapitre 8

Mesures de DWS dans un écoulement turbulent

L'objectif de ce chapitre est d'illustrer le potentiel de la DWS pour l'étude d'écoulements turbulents. En effet, avec la DWS, la mesure du taux de dissipation est possible à des nombres de Reynolds élevés, grâce à la très faible longueur (égale au libre parcours moyen de transport) sur laquelle sont sondées les différences de vitesse.

La mesure de DWS s'effectuant à une interface, sur une épaisseur de l'ordre de quelques l^* , il est naturel de s'intéresser à la dissipation en paroi, même si des mesures en surface libre sont également à envisager. Pour démontrer son intérêt, nous utilisons ici un écoulement turbulent à des nombres de Reynolds de l'ordre de 1.5×10^4 à 6.15×10^5 , engendré par une hélice en rotation dans une grande cuve.

Après présentation du dispositif et de la procédure expérimentale, nous nous intéresserons à la valeur moyenne $\bar{\epsilon}$ du taux de dissipation, mais également à ses fluctuations spatio-temporelles.

8.1 Dispositif

8.1.1 Écoulement

Le dispositif d'écoulement, en photo sur la figure 8.1, comprend une cuve cubique en verre, de côté $L = 60$ cm, sans compter l'épaisseur des faces (1 cm). Cette cuve est remplie jusqu'à une hauteur de 48 cm de suspension de TiO_2 , pour un volume total d'environ 170 L. Une hélice circulaire plate à 4 pales droites, de hauteur 4.8 cm et de rayon $R = 20$ cm, située au centre de la cuve et à une hauteur de 26.1 cm, permet de générer l'écoulement. Elle est mise en rotation à vitesse angulaire constante Ω par un arbre relié à un moteur pas à pas (McLennan 34HT18C340) et un réducteur à 20:1 (Wittenstein NP035S-MF2-20-1C1-1S). Un couplomètre (ETH-messtechnik DRVL-II) placé entre l'hélice et le réducteur permet de mesurer le couple appliqué à l'hélice (ou plus précisément à l'ensemble arbre-hélice) pour assurer sa rotation. L'intégralité de ces éléments mécaniques (moteur, réducteur, couplomètre, arbre et hélice) repose sur une structure en profilés afin d'éviter toute vibration au niveau de la cuve.

8.1.2 Agencement optique et appareils de mesure pour la DWS

L'agencement optique, présenté sur la figure 8.1, est essentiellement le même que pour les expériences de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette. Il comprend une source laser polarisée linéairement (CNI MSL-R-532-2000) d'une puissance de 2 W et de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm. Le faisceau laser est agrandi par une lentille de microscope afin d'illuminer la face avant de la cuve. La lumière rétrodiffusée est reçue par 2 appareils de mesure : un tube photomultiplicateur (TPM) associé à un corrélateur, ainsi qu'une caméra haute vitesse.

Le tube photomultiplicateur (Hamamatsu PMT H9305-04) collecte la lumière à travers une fibre optique monomode, afin d'assurer la sélection d'un petit nombre de speckles [53]. Son ouverture numérique est d'environ 0.12 ± 0.02 et elle est située à 50 cm de l'interface entre le fluide et la cuve. Par conséquent, la surface de mesure est un disque de rayon de 6 ± 1 cm (voir figure 8.2). Un corrélateur (FLEX02-01D) est connecté au TPM pour récupérer le signal d'intensité, avec une période d'acquisition Δt de 0.32 μs .

La mise au point de la caméra haute vitesse (Phantom V2011) est effectuée à l'interface entre la cuve et le fluide. Un pixel correspond alors à plusieurs speckles, l'intensité de ces speckles fluctuant suivant le taux de dissipation local. Afin de mesurer des structures de dissipation résolues spatialement, tout en ayant une fréquence d'acquisition suffisamment élevée, on choisit une résolution de 128×128 pixels. Ceci nous permet



FIGURE 8.1 – Photo de côté (à gauche) et de face (à droite) du dispositif expérimental. Un faisceau cohérent produit par le laser (La) est agrandi par une lentille de microscope pour illuminer la face avant d’une cuve cubique remplie de suspension de TiO_2 (absente ici). La lumière rétrodiffusée est collectée à travers un polariseur (P) par la caméra haute vitesse (C) dont la mise au point est effectuée à l’interface entre le fluide et la cuve. Un speckle de lumière rétrodiffusée en champ lointain est également sélectionné à travers un polariseur (P) par une fibre optique monomode (FOM) reliée à un tube photomultiplicateur et à un corrélateur (non visibles ici). Dans la cuve, une hélice (H) circulaire à 4 pales droites est mise en rotation par un moteur (M) relié à un réducteur 20:1 (R). Un couplomètre (Co) permet de mesurer le couple appliqué à l’arbre et à l’hélice.

d’atteindre une fréquence d’acquisition de 430 000 ips, soit une période d’acquisition d’environ $\Delta t = 2.33 \mu\text{s}$. Le niveau de zoom est ensuite réglé de telle manière qu’on observe plusieurs structures de dissipation dans la fenêtre, tout en garantissant que celles-ci soient suffisamment bien résolues. Nous avons donc choisi un niveau de zoom tel qu’un pixel corresponde (dans l’espace objet) à une surface carrée de $400 \mu\text{m}$ de côté, ce qui donne une surface totale de mesure de $5.1 \text{ cm} \times 5.1 \text{ cm}$ (voir figure 8.2).

La période d’acquisition permet alors de mesurer correctement des valeurs de Γ jusqu’à 400 s^{-1} . En effet, comme montré par l’expression (7.1), le temps de décroissance caractéristique mesuré τ_{mes} est donné par $\tau_{mes} \approx 2 \times 10^{-3} / \Gamma$. Ainsi, si $\Gamma \leq 400 \text{ s}^{-1}$, on a $\tau_{mes} \geq 5 \mu\text{s} > 2\Delta t$, ce qui est suffisant pour ajuster correctement la fonction d’auto-corrélation et en déduire Γ .

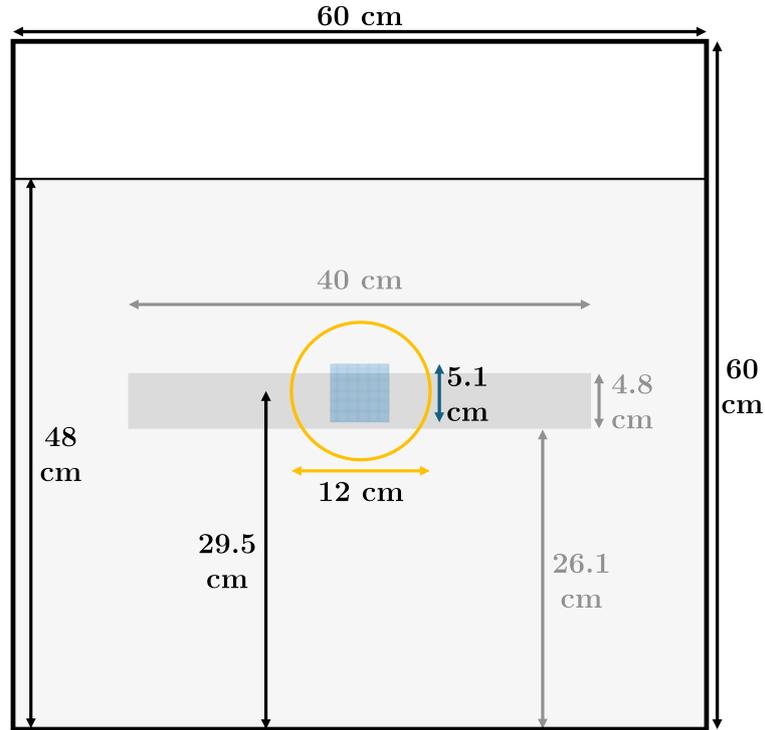


FIGURE 8.2 – Vue de face de la surface pour laquelle l'intensité rétrodiffusée est mesurée. Pour le tube photomultiplicateur, l'intensité étant récoltée via une fibre optique monomode, la surface de mesure est un disque (délimité par le cercle jaune). Pour la caméra, il s'agit d'un rectangle de 128×128 pixels (en bleu), chaque pixel correspondant à une surface carrée de $400 \mu\text{m}$ de côté.

Comme dans l'écoulement de Taylor-Couette, nous n'utilisons pas de diaphragme pour augmenter le contraste (qui reste suffisant pour ajuster correctement l'autocorrélation à sa prédiction théorique), afin de garantir un niveau d'intensité maximal au niveau du capteur CMOS (voir section 7.1).

Enfin, deux polariseurs, croisés par rapport à la polarisation du laser, sont placés respectivement devant la caméra et devant l'ouverture de la fibre optique reliée au TPM. Ceci permet d'éliminer les réflexions spéculaires, c'est-à-dire la lumière directement réfléchie aux interfaces et qui n'a pas été diffusée par le fluide. Ces polariseurs entraînent une augmentation de la valeur du paramètre γ lié au dispositif expérimental, sans conséquence sur l'interprétation des données. On se référera aux sections 3.4.3.5 et 6.2.2 pour le détail de l'impact de ces polariseurs sur la fonction d'autocorrélation.

8.1.3 Dispositif de mesure de l^* par réflectance spatialement résolue

En plus de ce dispositif optique dédié directement à la mesure de DWS, on utilise un dispositif de réflectance résolue spatialement pour contrôler, en temps réel, la valeur du libre parcours moyen de transport l^* . L'idée est d'analyser la tache de diffusion à l'interface du fluide lorsqu'on y envoie un faisceau de lumière cohérente, en régime stationnaire. Pour que la valeur de l^* ainsi obtenue corresponde le mieux possible à celle qui est effectivement en jeu dans la mesure de DWS, on effectue la mesure de réflectance spatialement résolue à la même hauteur que la mesure de DWS, mais sur une autre face de la cuve. Cette partie du dispositif expérimental et le protocole associé est décrit précisément en section 5.4.2. La figure 8.3 récapitule l'ensemble des appareils de mesure utilisés pour la mesure de DWS et pour la mesure de réflectance spatialement résolue.

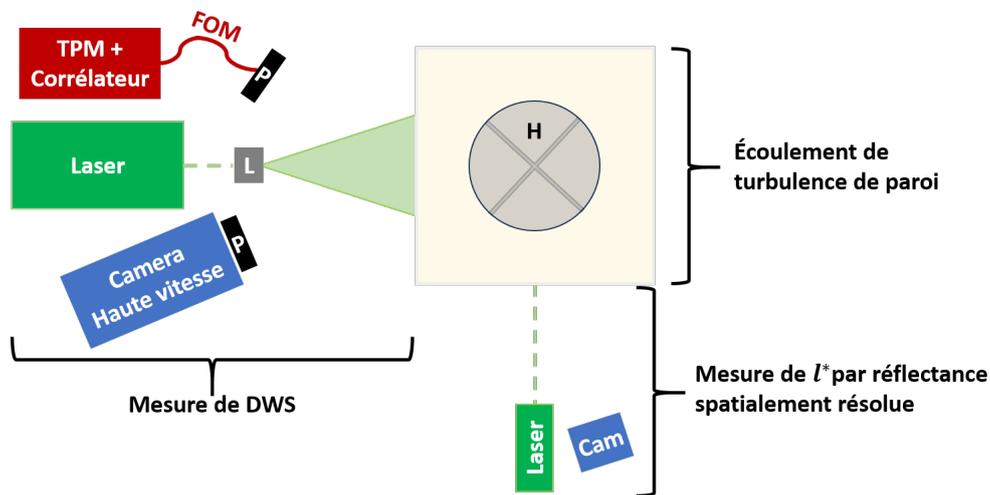


FIGURE 8.3 – Vue de dessus de l'intégralité du dispositif expérimental. La mesure du taux de dissipation par DWS (décrite en figure 8.1) et la mesure du libre parcours moyen de transport l^* par réflectance spatialement résolue sont effectuées à la même hauteur que l'hélice (H). Cette mesure par réflectance spatialement résolue s'effectue en temps réel, à l'aide d'un laser de faible largeur de faisceau et d'une caméra (Cam).

8.2 Procédure expérimentale

L'expérience se déroule de manière similaire à celle dans l'écoulement de Taylor-Couette :

- Le fluide diffusant est préparé selon le protocole décrit dans le chapitre 5, puis on en remplit la cuve. Le moteur et donc l'hélice sont ensuite mis en route à une vitesse de rotation $\Omega = 1$ Hz pendant 10 minutes, afin d'obtenir la concentration la plus uniforme possible des diffuseurs et donc un libre parcours moyen de transport l^* uniforme dans le fluide. Pendant toute la durée des mesures de DWS, le dispositif de réflectance spatialement résolue permet de contrôler l'homogénéité des diffuseurs et que la valeur de l^* ne fluctue pas (voir section 5.4.2).
- Après avoir imposé une vitesse de rotation nulle et attendu 10 minutes pour éviter toute vitesse résiduelle du fluide, nous procédons à une mesure en l'absence d'écoulement ($\Omega = 0$ Hz) afin de déterminer le paramètre γ (voir section 6.2.2).
- Ensuite, nous alternons des vitesses de rotation élevées et faibles, entre 0.02 et 0.8 Hz, pour assurer un bon mélange tout au long de l'expérience et éviter l'in-homogénéité et l'agglomération des particules de TiO_2 . Toutes les mesures commencent 5 minutes après que la vitesse de rotation ait été modifiée afin d'assurer un régime stationnaire et non transitoire. Le couple est mesuré à haute fréquence par le couplomètre et filtré à 5 Hz, nous n'utiliserons dans cette étude que sa valeur moyenne. L'intensité d'un speckle en champ lointain est mesurée par le TPM et son autocorrélation est calculée par le corrélateur en temps réel. La période d'échantillonnage du corrélateur est de 0.32 μs et la fonction de corrélation est moyennée sur 0.5 s pour assurer à la fois un moyennage suffisant et permettre la résolution temporelle (voir section 6.3). Le signal d'intensité est récupéré pendant une durée totale de 100 s. Par ailleurs, l'intensité des speckles à l'interface entre la cuve et le fluide est enregistrée par la caméra haute vitesse. La période d'échantillonnage de la caméra est d'environ 2.33 μs et la fonction de corrélation est moyennée sur 25 000 images, soit environ 0.058 s pour permettre la résolution spatio-temporelle. La résolution temporelle de la carte de 128×128 pixels de Γ est donc d'environ 17.2 Hz. La caméra capture au total 800 000 images, soit 32 cartes de Γ sur une durée totale d'environ 1.86 s. En fin de compte, la durée totale de la mesure pour une vitesse de rotation donnée est d'environ 8 min, à l'exception d'une mesure qu'on appellera "mesure longue". En effet, afin d'obtenir des statistiques suffisamment convergées pour la distribution de Γ (ce qui n'est pas le cas avec seulement 32 cartes de 128×128 valeurs de Γ), nous avons automatisé le processus d'acquisition. Ceci nous a permis de réaliser 80 enregistrements de 600 000 images à la vitesse de rotation $\Omega = 0.3$ Hz, soit un total de 1920 cartes de 128×128 valeurs de Γ . Cette "mesure longue" dure au total environ 13 h et sera amenée à être répétée à d'autres vitesses de rotation dans un futur proche¹.
- Nous terminons la série de mesures par une deuxième mesure en l'absence d'écou-

1. Plus que la durée de mesure, c'est le temps de traitement des fonctions d'autocorrélation –de l'ordre de deux semaines pour un seul bon processeur (14 coeurs cadencés à 5.40 GHz)– qui est extrêmement chronophage.

lement ($\Omega = 0$ Hz) pour nous assurer que la valeur de γ n'a pas changé. En effet, une évolution de la valeur de γ indiquerait un changement de la valeur du temps de corrélation lié au mouvement brownien τ_B et donc du rayon hydrodynamique des particules (par agglomération notamment).

8.3 Résultats

On utilisera comme paramètre de contrôle le nombre de Reynolds à grande échelle Re_L défini comme $Re_L \equiv \frac{v_0 L}{\nu}$ où v_0 désigne la vitesse maximale, c'est-à-dire la vitesse en bord de pale, autrement dit :

$$Re_L = \frac{\Omega L R}{\nu} \quad (8.1)$$

On notera qu'on aurait pu utiliser la distance entre la paroi et l'hélice comme grande échelle, qui vaut 10 cm, au lieu de la longueur de la cuve $L = 60$ cm. Cela n'a pas d'influence significative sur les lois d'échelles que nous allons obtenir dans la mesure où cela donnerait un nombre de Reynolds simplement différent d'un facteur constant 1/6.

Nous pouvons faire varier ce nombre de Reynolds entre 1.5×10^4 et 6.15×10^5 pour le TPM, et entre 3.8×10^4 et 3.8×10^5 pour la caméra. En effet, en deçà, Γ est typiquement trop faible (pour le TPM ou pour un pixel) pour être correctement estimé et à l'inverse, au-delà de ces valeurs, Γ est trop important (typiquement au dessus de 400 s^{-1} pour les pixels) pour en avoir une bonne estimation. L'échelle de Kolmogorov η_K , donnée par $\eta_K = L Re_L^{-3/4}$, varie donc entre 430 et 30 μm , soit potentiellement moins que le libre parcours moyen de transport. Néanmoins, la qualité des fonctions d'autocorrélation (voir chapitre 6) tend à montrer qu'à la paroi, η_K n'est pas la taille caractéristique de variation du champ de vitesse et du tenseur des taux de déformation. Enfin, on notera que l'épaisseur typique sur laquelle est sondé Γ est de l'ordre de quelques l^* , qui vaut 74 μm .

8.3.1 Valeurs moyennes : puissance injectée et dissipée

8.3.1.1 Taux de dissipation moyen dans le volume et à la paroi

On s'intéresse dans un premier temps aux mesures de $\varepsilon \equiv \nu \Gamma^2$ moyennées dans le temps. Pour cela, nous prenons les valeurs de ε obtenues par le TPM, à 0.1 s d'intervalle², sur une durée totale de 100 s, soit 1000 points. Sachant que nous avons fait varier la

2. La durée de moyennage des fonctions d'autocorrélation étant de 0.5 s afin d'assurer leur bonne convergence, on réalise des moyennes glissantes toutes les 0.1 s pour obtenir le maximum de points de mesure.

vitesse de rotation entre 0.02 et 0.8 Hz, cela représente entre 2 et 80 périodes de rotation. Pour la caméra, nous n'avons pour l'instant réalisé de mesures longues que pour une seule vitesse de rotation, on se contentera donc de mesures "courtes" moyennées sur 1.86 s (32 images), pour lesquelles on prendra la moyenne de ε sur tous les pixels (moyenne en temps et en espace). On peut comparer ces mesures entre elles, mais également à la puissance massique injectée dans l'écoulement, qu'on notera P_i (figure 8.4). En effet, la mesure par le couplomètre du couple T appliqué à l'hélice (plus précisément, à l'ensemble arbre-hélice) donne P_i grâce à la relation suivante :

$$P_i = \frac{T\Omega}{m} \quad (8.2)$$

où m désigne la masse totale de fluide dans la cuve.

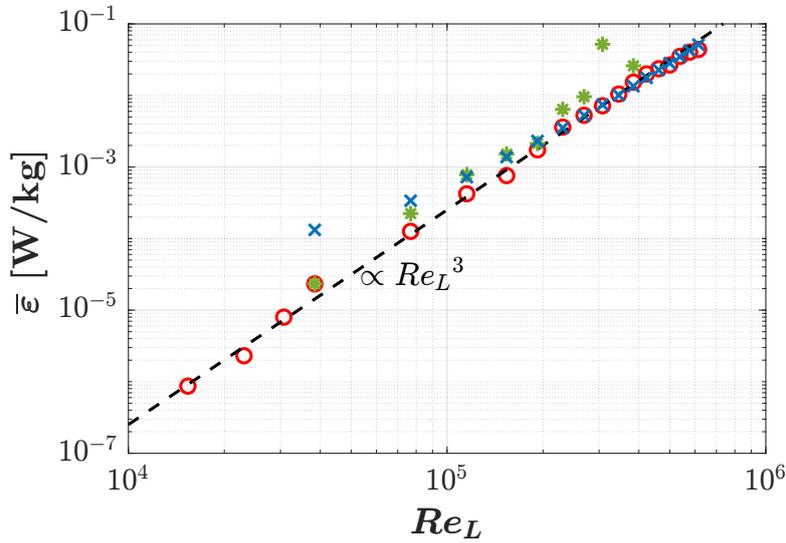


FIGURE 8.4 – Puissance massique, injectée ou dissipée, moyennée dans le temps en fonction du nombre de Reynolds à grande échelle Re_L . Les cercles rouges correspondent à la mesure du taux de dissipation ε par le TPM, moyennée sur 100 s. Les étoiles vertes correspondent à la moyenne de ε sur tous les pixels de la caméra, moyennée sur 1.86 s (32 images). Enfin, les croix bleues représentent la puissance massique injectée P_i , multipliée par un facteur 2.4 de telle sorte à coïncider avec le taux de dissipation moyen mesuré par le TPM. La droite en tirets noirs est donnée par cRe_L^3 où $c = 2.51 \times 10^{-19}$ W/kg.

On remarque que le taux de dissipation moyenné dans le temps $\bar{\varepsilon}$ est légèrement plus élevé pour la caméra que pour le TPM. Autrement dit, le taux de dissipation à la paroi sur la surface correspondant à la caméra est plus important que pour la surface

correspondant au TPM, probablement parce que cette dernière est plus grande et donc en moyenne plus éloignée de l'hélice. La mesure par la caméra est également plus dispersée, signe d'une moins bonne convergence statistique.

Par ailleurs, en régime stationnaire, la puissance massique injectée pour assurer une certaine vitesse de rotation est nécessairement égale au taux de dissipation moyen dans l'ensemble du volume de fluide. La puissance massique injectée P_i est donnée par le couple T mesuré par le couplomètre avec la relation $P_i = T\Omega/m$, sauf aux faibles vitesses de rotation. En effet, un écart significatif existe alors entre le couple exercé par le fluide sur l'hélice et le couple mesuré T , en raison des frottements solides entre l'arbre et le couplomètre. Le couple additionnel lié à ces frottements (de l'ordre de 1 mN·m) étant négligeable à plus grande vitesse de rotation, on obtient comme attendu que $T\Omega/m = P_i \propto \bar{\varepsilon}$. Dans notre cas, la constante de proportionnalité entre la puissance massique injectée et le taux de dissipation mesuré en paroi par le TPM est de 1/2.4. Cela traduit que le taux de dissipation mesuré en paroi sur la surface correspondant au TPM est 2.4 fois plus élevé que le taux de dissipation moyen dans l'ensemble du volume de fluide.

8.3.1.2 Dépendance en Re_L

La dépendance en Re_L est explicite sur la figure 8.4 : le taux de dissipation varie comme Re_L^3 . Cette dépendance est bien connue en turbulence homogène et isotrope, et découle de la relation (1.18) : $\varepsilon \propto \frac{\nu^3}{L^4} Re_L^3$.

Cette dépendance se retrouve également dans les couches limites (laminaires) d'écoulements à hauts nombres de Reynolds. En effet, l'épaisseur δ d'une couche limite laminaire est donnée par [10] :

$$\delta \approx \sqrt{\frac{\nu L}{v_0}} = L Re_L^{-1/2} \quad (8.3)$$

et en supposant le profil de vitesse linéaire sur une épaisseur de l'ordre de δ , on a $\varepsilon \approx \nu (v_0/\delta)^2$, soit $\varepsilon \approx \frac{\nu^3}{L^4} Re_L^3$. On notera que ce régime est exact dans le cas d'une couche limite décrite par l'équation de Blasius, comme pour un écoulement parallèle à une plaque plane.

On peut enfin comparer ce résultat à la loi (1.41) attendue en turbulence de paroi entre la vitesse maximal v_0 et la vitesse de frottement v^* . Supposons pour cela que la mesure par DWS des valeurs moyennes $\bar{\Gamma}$ et $\bar{\varepsilon}$ se fasse dans la sous-couche visqueuse. Le profil de vitesse moyenne y étant linéaire, la vitesse de frottement v^* (expression (1.29)) serait alors donnée par $v^* = \sqrt{\nu \bar{\Gamma}} \equiv (\nu \varepsilon)^{1/4}$, si on généralise l'expression de la vitesse de frottement à toutes les composantes du gradient de vitesse [74]. Comme

$10^{-6} \leq \bar{\varepsilon} \leq 5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$, on obtient $10^{-3} \leq v^* \leq 0.015 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et une épaisseur de sous-couche visqueuse $\delta_\nu = \nu/v^*$ entre $67 \mu\text{m}$ et 1 mm . Si on considère de plus que la grande échelle pertinente est L , ou la distance entre la paroi et l'hélice $L/6$, on obtient que le nombre de Reynolds Re^* qui décrit le rapport entre la grande échelle et l'échelle locale proche de la paroi est de l'ordre de $Re^* = \frac{L}{\delta_\nu} = L\sqrt{\frac{\Gamma}{\nu}}$, soit entre 6×10^2 et 8×10^3 . La relation logarithmique (1.41) se réécrit alors en multipliant par L/ν :

$$Re_L = \frac{L}{\nu^{3/4}} \bar{\varepsilon}^{1/4} \left(\frac{1}{\kappa} \ln \frac{L\bar{\varepsilon}^{1/4}}{\nu^{3/4}} + C_1 - C_2 \right) \quad (8.4)$$

Hors cette loi est nettement incompatible avec nos mesures pour des valeurs raisonnables de la constante de Karman κ (autour de 0.4, voir par exemple la revue de Marusic et al. (2010) [75]).

Au moins une des hypothèses effectuées s'avère donc incorrecte : soit celle selon laquelle le cadre général de la turbulence de paroi est applicable à notre écoulement, soit celle selon laquelle la mesure de Γ par DWS est effectuée dans la sous-couche visqueuse³. D'autres mesures complémentaires sont ainsi nécessaires pour mieux caractériser cet écoulement, qui n'est pas canonique. En particulier, la mesure de la contrainte à la paroi, avec un capteur de pression par exemple, devrait nous permettre d'évaluer la valeur de v^* et donc l'épaisseur de la sous-couche visqueuse, afin de savoir si notre mesure de Γ et donc de ε est à l'intérieur ou plutôt à l'extérieur de la sous-couche visqueuse.

8.3.2 Fluctuations temporelles

Que cet écoulement présente des caractéristiques de la turbulence homogène et isotrope ou bien de la turbulence de paroi, il est dans tous les cas intéressant d'étudier les fluctuations temporelles et spatio-temporelles de ε . La mesure sur 100 s par le TPM permet d'en étudier les fluctuations temporelles. Pour cela, les fonctions d'autocorrélations sont moyennées par une moyenne glissante sur 0.5 s toutes les 0.1 s, pour une meilleure résolution temporelle tout en conservant une bonne convergence (voir section 6.3). La figure 8.5 donne un aperçu des importantes fluctuations temporelles quelque soit la valeur de Re_L . Ces fluctuations ont lieu aussi bien à de courtes échelles de temps (de l'ordre de la résolution temporelle de notre mesure, à savoir 0.1 s) comme sur des échelles beaucoup plus longues de l'ordre de la période de rotation de l'hélice T_{rot} . L'analyse des spectres montre l'absence de signal marqué à la fréquence $4/T_{rot}$, qui correspond à la fréquence de passage d'une pale (hélice à 4 pales).

3. Une dernière option est que la grande échelle pertinente n'est pas L , mais plutôt l'épaisseur de la couche limite, laminaire ou turbulente. Dans les deux cas, les lois d'échelle connues et nos données ne sont pas compatibles avec une valeur raisonnable de la constante de Karman.

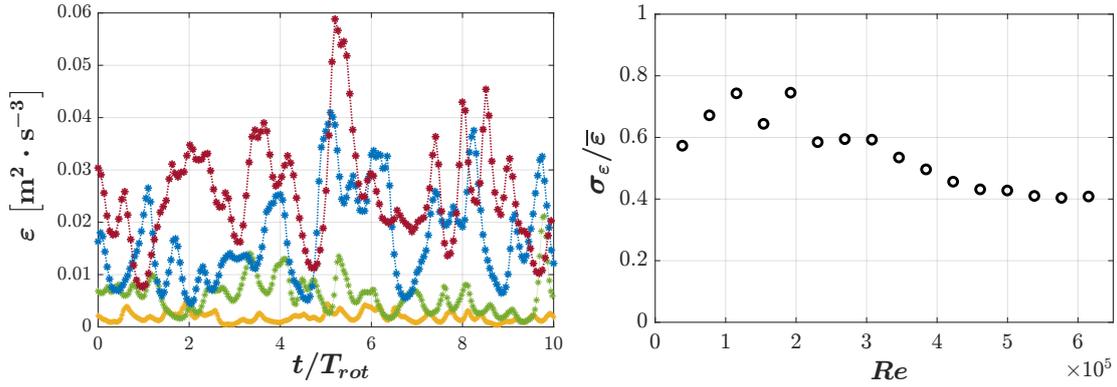


FIGURE 8.5 – À gauche, mesure de ε par le TPM en fonction du temps t adimensionné par la période de rotation T_{rot} , à différentes valeurs de Re_L : 1.9×10^5 en jaune, 2.7×10^5 en vert, 3.8×10^5 en bleu et 5.0×10^5 en rouge. Les étoiles correspondent aux valeurs mesurées de ε toutes les 0.1 s, les pointillés servant uniquement comme indications. À droite, coefficient de variation (rapport de l'écart-type sur la valeur moyenne) en fonction de Re_L .

La figure 8.5 illustre également que le coefficient de variation (rapport de l'écart-type sur la valeur moyenne) est de l'ordre de 0.6—0.7 pour $3.8 \times 10^5 \leq Re_L \leq 3.1 \times 10^5$, avant de décroître légèrement et se stabiliser autour de 0.4 pour $Re_L \geq 4.6 \times 10^5$. Une étude plus approfondie, où les effets de lissage sont analysés (par exemple grâce à des mesures à d'autres fréquences d'acquisition), est néanmoins nécessaire pour évoquer une éventuelle transition.

8.3.3 Variations spatio-temporelles

L'utilisation de la caméra rapide dans la DWS offre une mesure encore plus riche que celle du TPM, permettant l'étude des fluctuations spatio-temporelles du taux de dissipation. La figure 8.6 présente 4 cartes consécutives de Γ , à 0.058 s d'intervalle, pour une vitesse de rotation Ω de 0.3 Hz, soit $Re_L = 2.31 \times 10^5$. On observe une forte inhomogénéité, avec des zones de dissipation intense. Le motif de dissipation est globalement advecté vers le nord-est sur ces images, qui correspond a priori au sens de l'écoulement moyen (écoulement toroïdal vers l'est par l'hélice et poloïdal vers le nord lié à la recirculation dans la cuve).

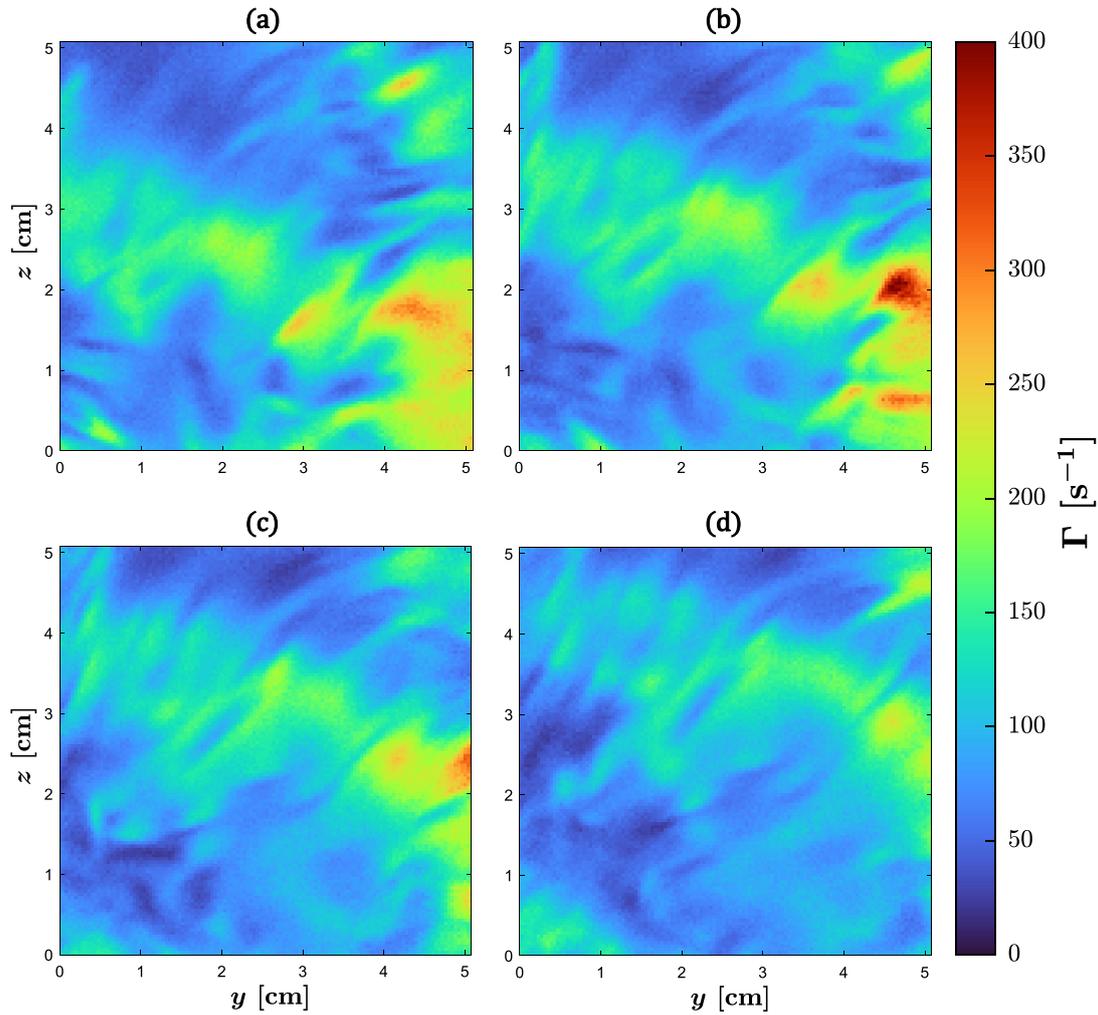


FIGURE 8.6 – (a), (b), (c) et (d) : 4 cartes consécutives de Γ , à 0.058 s d'intervalle, pour $Re_L = 2.31 \times 10^5$, correspondant à $\Omega = 0.3$ Hz.

Comme pour l'écoulement de Taylor-Couette, on notera qu'il aurait pu être plus simple de présenter des cartes de ε , dans la mesure où il suffit de faire la moyenne de ε sur chaque pixel pour avoir la valeur moyenne de ε , ce qui n'est pas le cas avec Γ . Les cartes de ε sont néanmoins d'amplitude trop importantes pour être correctement représentées avec une barre de couleur linéaire, plus intuitive.

On peut dans un premier temps s'intéresser à la distribution de ε . Cela nécessite néanmoins de très nombreuses images à la même vitesse de rotation pour que les statistiques soient satisfaisantes. Nous avons pu réaliser une mesure "longue" (80 enregistrements de 600 000 images, soit 80 films de 24 cartes), à ce nombre de Reynolds

$Re_L = 2.31 \times 10^5$ ($\Omega = 0.3$ Hz). La densité de probabilité (PDF) de ε , présentée en figure 8.7, est extrêmement bien approchée par une loi log-normale, de paramètres $\mu = -5.37$ et $\sigma^2 = 1.61$, c'est-à-dire que $\ln(\varepsilon)$ suit une loi normale de moyenne μ et de variance σ^2 . Un telle distribution (moins bien convergée) est également observable, avec d'autres paramètres μ et σ^2 sur les mesures "courtes" aux autres vitesses par la caméra et sur les mesures par le TPM. La distribution log-normale est celle prédite par la théorie de Kolmogorov et Oboukhov sur l'intermittence en 1961 [76], depuis observée dans des écoulements turbulents très divers [14, 77-79] mais également très discutée [14, 80-82]. La DWS, appliquée à divers écoulements turbulents, devrait pouvoir apporter des éléments pertinents dans cette discussion. Dans le cas présent, une étude systématique aux nombres de Reynolds accessibles permettrait d'estimer la dépendance des paramètres μ et σ^2 avec Re_L et la comparer avec celle prédite par Kolmogorov et Oboukhov, et le cas échéant de déterminer les écarts à la loi log-normale.

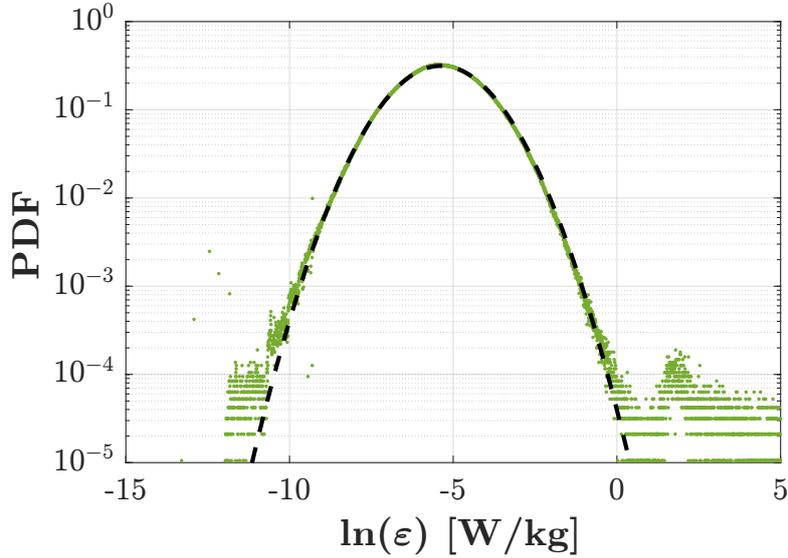


FIGURE 8.7 – Densité de probabilité de $\ln(\varepsilon)$ à $Re_L = 2.31 \times 10^5$ (en vert). Les tirets noirs correspondent à l'ajustement par une loi log-normale, de paramètres $\mu = -5.37$ et $\sigma^2 = 1.27$.

Ces cartes (que ce soit celles de Γ ou celles de ε) devraient également permettre d'accéder à de nombreuses autres informations : taille et vitesse caractéristiques des structures de dissipation, densité spectrale de puissance, fonctions de structure, ... qui sont autant de quantités cruciales dans l'étude de la dissipation des écoulements turbulents.

8.4 Conclusion

L'application de la DWS à cet écoulement turbulent a permis d'obtenir la dépendance du taux de dissipation moyen $\bar{\varepsilon}$ en fonction du nombre de Reynolds à grande échelle Re_L , qui s'avère être celui observé en turbulence homogène et isotrope : $\bar{\varepsilon} \propto Re_L^3$. D'autres mesures sont nécessaires pour conclure quant à la compatibilité de ce résultat avec la théorie de la turbulence de paroi, qui n'est peut être pas applicable à cet écoulement.

Par ailleurs, la DWS permet de mesurer les fluctuations temporelles sur une longue durée (avec le TPM) ou les fluctuations spatio-temporelles (avec la caméra), comme l'illustre l'obtention d'une loi log-normale pour la densité de probabilité de ε . L'analyse de la taille et la vitesse caractéristiques des structures de dissipation, de la densité spectrale de puissance ou encore des fonctions de structure est également accessible : c'est la prochaine étape de ce travail.

Cette étude constitue ainsi la première mesure, par *Diffusing-Wave Spectroscopy*, du taux de dissipation et de ses fluctuations dans un écoulement turbulent.

Conclusion

Ce travail de thèse a démontré la capacité de la *Diffusing-Wave Spectroscopy* à fournir une mesure quantitative, résolue spatialement et temporellement, du taux de dissipation ε à l'interface des écoulements. Dans la théorie initiale de la DWS, le caractère quantitatif est strictement valide lorsque ε ne dépend pas de la longueur des chemins de diffusion, ce qui correspond essentiellement à un tenseur des taux de déformation homogène dans l'écoulement. Comme souligné par Bicout et Maret (1994) [4] et confirmé par nos mesures dans le régime de Couette de l'écoulement de Taylor-Couette, la mesure de DWS reste quantitative pour un taux de dissipation inhomogène si la longueur caractéristique de variation du tenseur des taux de déformation est grande devant le libre parcours moyen de transport, qui peut être sans difficulté de l'ordre de quelques dizaines de microns. De plus, l'utilisation d'une caméra haute vitesse nous a permis d'obtenir la résolution spatiale de ε dans le régime des rouleaux de Taylor (dissipation inhomogène stationnaire) et sa résolution spatio-temporelle dans le régime des rouleaux oscillants (dissipation inhomogène instationnaire). Nos travaux sur cet écoulement ont également permis de confirmer qu'une suspension de TiO_2 dans de l'eau déionisée constitue un fluide diffusant adapté aux expériences de DWS (économique et sans tensioactifs notamment), à condition de surveiller sa stabilité (non floculation, homogénéité et constance de la concentration, ...). En particulier, nous avons montré que le contrôle du libre parcours moyen de transport l^* était nécessaire, puisque sa valeur peut varier significativement au cours d'une expérience, par exemple dans le cas d'une mesure en surface libre. À cette fin, nous proposons l'usage d'un dispositif expérimental simple et complémentaire de la DWS, permettant la mesure de l^* en temps réel : la mesure de réflectance spatialement résolue. Enfin, nos mesures dans un écoulement à un nombre de Reynolds Re_L de plus de 10^5 démontrent le potentiel de la technique pour l'étude du taux de dissipation à l'interface des écoulements turbulents, que ce soit en paroi ou en surface libre. Ces mesures préliminaires montre que ε varie comme Re_L^3 et que sa distribution suit une loi log-normale, des résultats plutôt attendus en turbulence homogène et isotrope que proche d'une paroi. D'autres mesures sont nécessaires pour vérifier la compatibilité de ces résultats avec la théorie de la turbulence de paroi ou celle de l'intermittence par Kolmogorov et Oboukhov.

Les enjeux pour la suite du développement de la DWS appliquée aux écoulements sont de deux natures différentes. D'une part, la théorie même de la DWS n'est pas encore totalement éclaircie, en particulier en géométrie de rétrodiffusion où l'approximation de diffusion semble contestable. Nous avons ainsi discuté de la sensibilité de la fonction d'autocorrélation aux conditions aux limites choisies pour l'équation de diffusion et de l'interprétation à donner au paramètre γ qui en découle. Certaines approches proposées pour raffiner le traitement des chemins très courts présents en géométrie de rétrodiffusion, par exemple en repartant de l'équation de transfert radiatif et non directement de l'approximation de diffusion [83], sont encore à l'étude. Par ailleurs, la forte correspondance entre les temps courts de la fonction d'autocorrélation et les longs chemins de diffusion mériterait une analyse approfondie, pour déterminer quantitativement comment restreindre l'intervalle d'ajustement afin de ne sonder que certaines longueurs de chemins. Tous ces points sont particulièrement importants dans l'application de la DWS aux écoulements afin de déterminer plus précisément l'épaisseur d'écoulement sondée par la technique, et l'incertitude associée.

D'autre part, nos travaux ont mis en évidence certaines contraintes propres à la mesure du taux de dissipation dans les écoulements. La résolution spatio-temporelle est particulièrement difficile à obtenir, contrairement à d'autres applications, pour deux raisons. Premièrement, le temps de corrélation étant inversement proportionnel à la norme locale du tenseur des taux de déformation, la mesure de valeurs très élevées de ε est difficile avec les caméras actuelles. Cette contrainte est d'autant plus importante que la mesure est résolue spatialement, c'est-à-dire qu'un pixel correspond à une petite surface, car ε peut localement être très élevé. Deuxièmement, la durée nécessaire à la convergence des fonctions d'autocorrélation peut vite être supérieure au temps caractéristique des fluctuations du champ de vitesse et donc du taux de dissipation, compromettant l'obtention d'une mesure résolue en temps. Cette contrainte est également d'autant plus restrictive que la mesure est résolue spatialement car ε peut localement varier très rapidement. Nos mesures tendent à montrer que cette deuxième contrainte s'avère plus contraignante que la première. Une étude poussée de la convergence des fonctions d'autocorrélation, voire l'ajout d'outils d'analyse des données d'intensité, nous semble ainsi être souhaitable pour améliorer la technique de DWS pour la mesure du taux de dissipation, en particulier dans les écoulements turbulents.

Annexe A

Moyennes sur le tenseur de diffusion isotrope

On rappelle que les composantes du tenseur de diffusion isotrope (pour la $j^{\text{ème}}$ diffusion) sont données par : $A^{ab}(j) = (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_a) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{u}}_b)$, où $a, b \in x, y, z$.

On souhaite calculer la moyenne d'une composante du tenseur : $\langle A^{ab}(j) \rangle$. $\langle \dots \rangle$ désigne en général la moyenne sur tous les chemins de taille N , autrement dit sur toutes les $j^{\text{èmes}}$ étapes de diffusions d'un chemin à N étapes, donc à la fois sur la position \mathbf{r}_j du $j^{\text{ème}}$ diffuseur, sur la longueur Λ_j du $j^{\text{ème}}$ pas et sur sa direction $\hat{\mathbf{u}}_j$. Ici, cela se réduit simplement à la moyenne sur les directions possibles $\hat{\mathbf{u}}_j$ car $A^{ab}(j)$ ne dépend ni de Λ_j , ni de \mathbf{r}_j . La variable aléatoire $\hat{\mathbf{u}}_j$ s'écrit simplement à l'aide des 2 angles θ_j et φ_j (avec $0 \leq \theta_j \leq \pi$ et $0 \leq \varphi_j \leq 2\pi$) en coordonnées sphériques : $\hat{\mathbf{u}}_j = \sin \theta_j \cos \varphi_j \hat{\mathbf{x}} + \sin \theta_j \sin \varphi_j \hat{\mathbf{y}} + \cos \theta_j \hat{\mathbf{z}}$. Puisqu'on s'intéresse à une diffusion isotrope, la densité de probabilité jointe de θ_j et φ_j est donnée par $f_{\theta_j, \varphi_j}(\theta, \varphi) = \frac{1}{4\pi} \sin(\theta)$.

Pour calculer $\langle A^{ab}(j) \rangle$, il suffit, par symétrie du tenseur et quitte à renommer les axes, de calculer $\langle A^{yz}(j) \rangle$ et $\langle A^{zz}(j) \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle A^{yz}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{y}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\ &= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \sin^2(\theta_j) \cos(\theta_j) \sin(\varphi_j) d\theta_j d\varphi_j \\ &= 0 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\langle A^{zz}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \cos^2(\theta_j) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{3}
\end{aligned}$$

Ainsi, en notant δ le symbole de Kronecker, on a :

$$\langle A^{ab}(j) \rangle = \frac{1}{3} \delta_{ab} \quad (\text{A.1})$$

On souhaite également calculer la moyenne du produit d'une composante de deux tenseurs : $\langle A^{ab}(j) A^{\alpha\beta}(j) \rangle$. Comme précédemment, la moyenne ne porte que sur les directions possibles $\hat{\mathbf{u}}_j$. Par symétrie des tenseurs et quitte à renommer les axes, il suffit de calculer $\langle A^{zz}(j) A^{zz}(j) \rangle$, $\langle A^{zz}(j) A^{zx}(j) \rangle$, $\langle A^{zz}(j) A^{zy}(j) \rangle$, $\langle A^{zz}(j) A^{xy}(j) \rangle = \langle A^{zx}(j) A^{zy}(j) \rangle = \langle A^{xx}(j) A^{yy}(j) \rangle$, et $\langle A^{zz}(j) A^{yy}(j) \rangle = \langle A^{zy}(j) A^{zy}(j) \rangle$:

$$\begin{aligned}
\langle A^{zz}(j) A^{zz}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \cos^4(\theta_j) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{5} = \frac{3}{15}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\langle A^{zz}(j) A^{zx}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{x}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \cos^3(\theta_j) \sin^2(\theta_j) \cos(\varphi_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\langle A^{zz}(j) A^{zy}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{y}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \cos^3(\theta_j) \sin^2(\theta_j) \sin(\varphi_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\langle A^{xx}(j)A^{yz}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{x}})(\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{x}})(\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{y}})(\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \cos(\theta_j) \sin^4(\theta_j) \sin(\varphi_j) \cos(\varphi_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= 0
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\langle A^{zz}(j)A^{yy}(j) \rangle &= \frac{1}{4\pi} \iint_{\theta_j, \varphi_j} (\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}})(\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{z}})(\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{y}})(\hat{\mathbf{u}}_j \cdot \hat{\mathbf{y}}) \sin(\theta_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{4\pi} \int_{\theta_j=0}^{\pi} \int_{\varphi_j=0}^{2\pi} \cos^2(\theta_j) \sin^3(\theta_j) \sin^2(\varphi_j) d\theta_j d\varphi_j \\
&= \frac{1}{15}
\end{aligned}$$

Ainsi :

$$\langle A^{ab}(j)A^{\alpha\beta}(j) \rangle = \frac{1}{15} (\delta_{a\alpha}\delta_{b\beta} + \delta_{a\beta}\delta_{b\alpha} + \delta_{ab}\delta_{\alpha\beta}) \quad (\text{A.2})$$

Annexe B

Mesure du rayon hydrodynamique moyen par DLS

Correlogram Report

v2.0



Malvern Instruments Ltd - © Copyright 2008

Sample Details

Sample Name: 0118 Intralipides 3

SOP Name: TiO2.sop

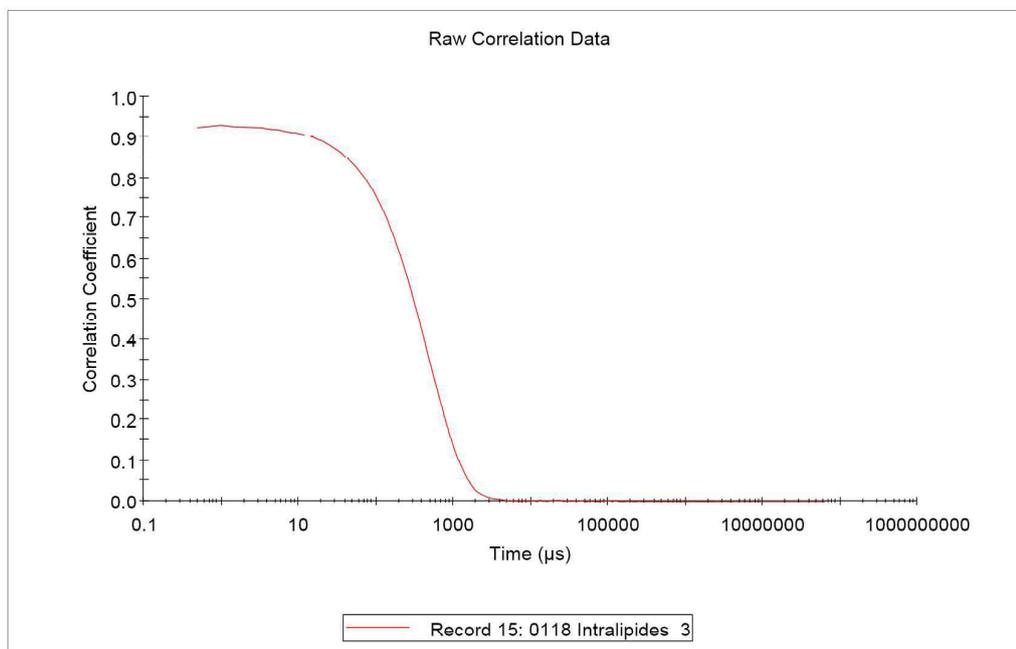
General Notes:

File Name: TiO2 - Copie.dts	Dispersant Name: Water
Record Number: 15	Dispersant RI: 1,330
Material RI: 2,87	Viscosity (cP): 1,0031
Material Absorbtion: 0,000	Measurement Date and Time: mardi 19 décembre 2006...

System

Temperature (°C): 20,0	Duration Used (s): 60
Count Rate (kcps): 246,8	Measurement Position (mm): 4,65
Cell Description: Disposable sizing cuvette	Attenuator: 7

Results



Size Distribution Report by Intensity

v2.2



Sample Details

Sample Name: Intralipides 3

SOP Name: TiO2.sop

General Notes:

File Name: TiO2.dts	Dispersant Name: Water
Record Number: 12	Dispersant RI: 1,330
Material RI: 2,87	Viscosity (cP): 1,0031
Material Absorbtion: 0,000	Measurement Date and Time: mercredi 8 novembre 2006 ...

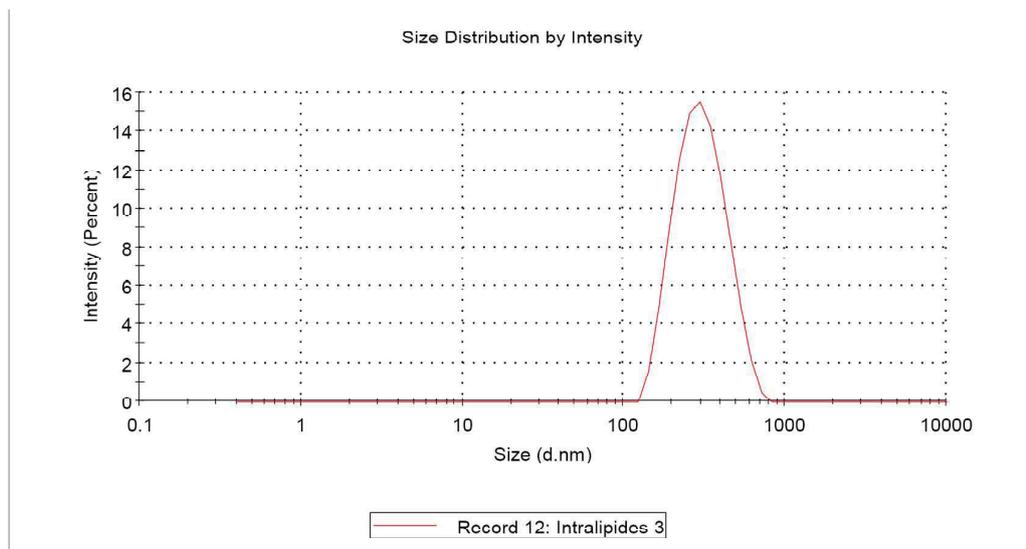
System

Temperature (°C): 20,0	Duration Used (s): 70
Count Rate (kcps): 200,1	Measurement Position (mm): 3,00
Cell Description: Disposable micro cuvette (40...	Attenuator: 7

Results

	Size (d.n...	% Intensity:	St Dev (d.n...
Z-Average (d.nm): 281,5	Peak 1: 314,1	100,0	111,0
Pdl: 0,130	Peak 2: 0,000	0,0	0,000
Intercept: 0,962	Peak 3: 0,000	0,0	0,000

Result quality **Good**



Correlogram Report

v2.0



Malvern Instruments Ltd - © Copyright 2008

Sample Details

Sample Name: 0118 TiO2 distillée ultrasons 10min 3

SOP Name: TiO2.sop

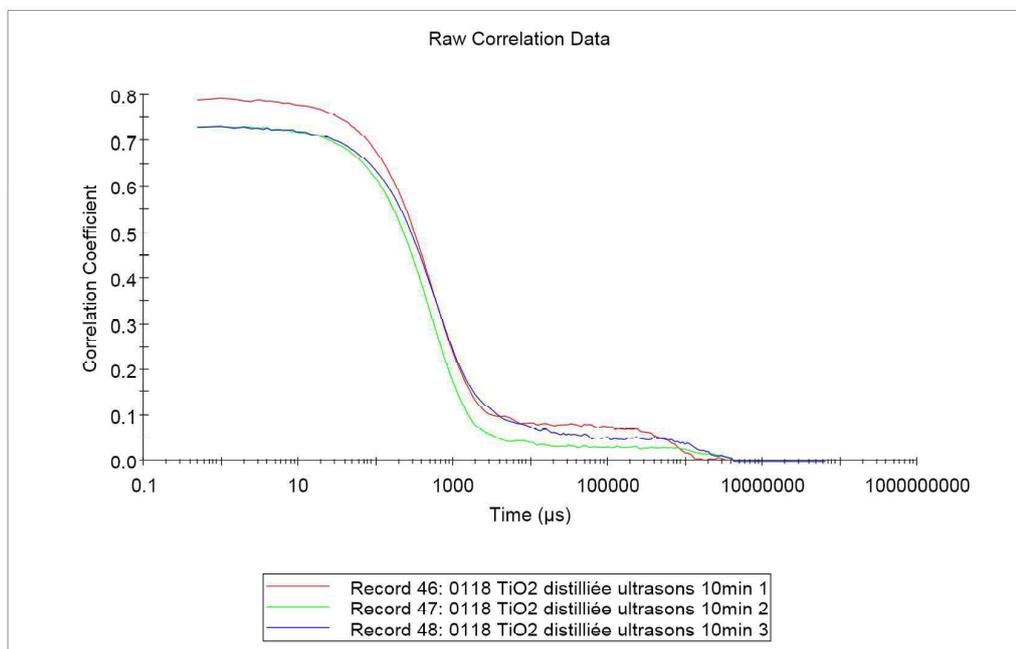
General Notes:

File Name: TiO2 - Copie.dts	Dispersant Name: Water
Record Number: 48	Dispersant RI: 1,330
Material RI: 2,87	Viscosity (cP): 1,0031
Material Absorbtion: 0,000	Measurement Date and Time: mardi 19 décembre 2006...

System

Temperature (°C): 20,0	Duration Used (s): 60
Count Rate (kcps): 175,7	Measurement Position (mm): 4,65
Cell Description: Disposable sizing cuvette	Attenuator: 6

Results



Size Distribution Report by Intensity

v2.2



Sample Details

Sample Name: 0118 TiO2 distillée ultrasons 10min 3

SOP Name: TiO2.sop

General Notes:

File Name: TiO2 - Copie.dts	Dispersant Name: Water
Record Number: 48	Dispersant RI: 1,330
Material RI: 2,87	Viscosity (cP): 1,0031
Material Absorbtion: 0,000	Measurement Date and Time: mardi 19 décembre 2006 0...

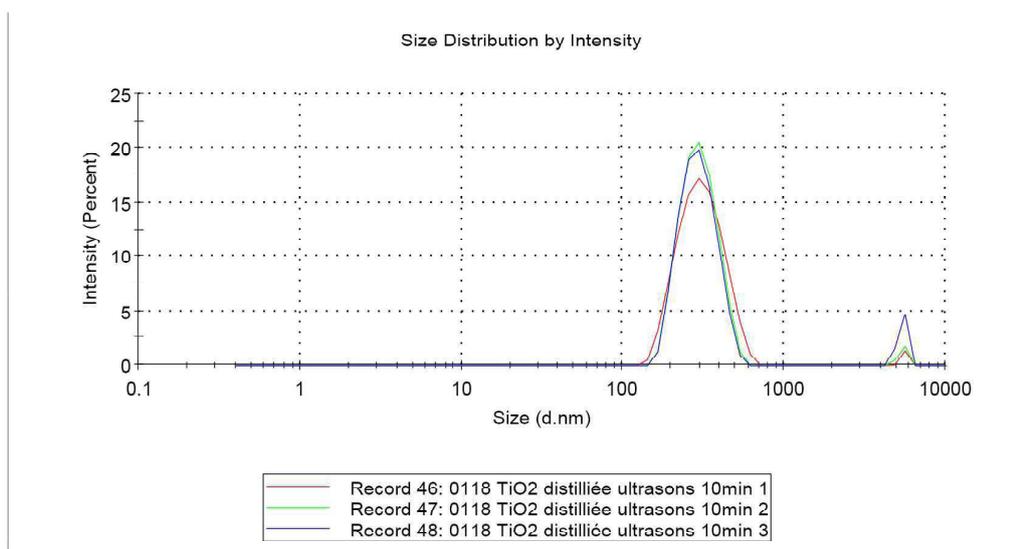
System

Temperature (°C): 20,0	Duration Used (s): 60
Count Rate (kcps): 175,7	Measurement Position (mm): 4,65
Cell Description: Disposable sizing cuvette	Attenuator: 6

Results

	Size (d.n...	% Intensity:	St Dev (d.n...
Z-Average (d.nm): 391,9	Peak 1: 296,8	93,7	75,29
Pdl: 0,455	Peak 2: 5367	6,3	330,4
Intercept: 0,826	Peak 3: 0,000	0,0	0,000

Result quality **Refer to quality report**



Cumulants Fit Report

v2.0



Malvern Instruments Ltd - © Copyright 2008

Sample Details

Sample Name: 0118 TiO2 déionisée ultrasons5min 2hrs old 3

SOP Name: TiO2.sop

General Notes:

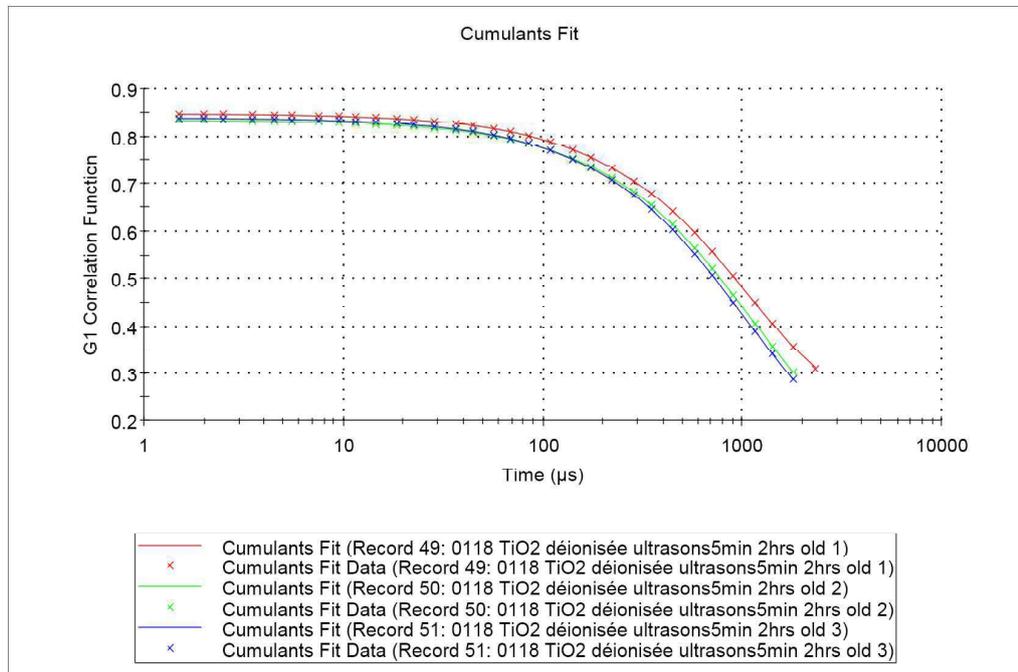
File Name: TiO2 - Copie.dts	Dispersant Name: Water
Record Number: 51	Dispersant RI: 1,330
Material RI: 2,87	Viscosity (cP): 1,0031
Material Absorbtion: 0,000	Measurement Date: mardi 19 décembre 20...

System

Temperature (°C): 20,0	Duration Used (s): 80
Count Rate (kcps): 143,2	Measurement Position (mm): 4,65
Derived Count Rate (kcps): 39594,6	Attenuator: 6
Cell Description: Disposable sizing cuvette	

Results

Cumulants Fit Error: 6,83e-4



Size Distribution Report by Number

v2.2



Sample Details

Sample Name: 0118 TiO2 déionisée ultrasons5min 2hrs old 3

SOP Name: TiO2.sop

General Notes:

File Name: TiO2 - Copie.dts	Dispersant Name: Water
Record Number: 51	Dispersant RI: 1,330
Material RI: 2,87	Viscosity (cP): 1,0031
Material Absorbtion: 0,000	Measurement Date and Time: mardi 19 décembre 2006 0...

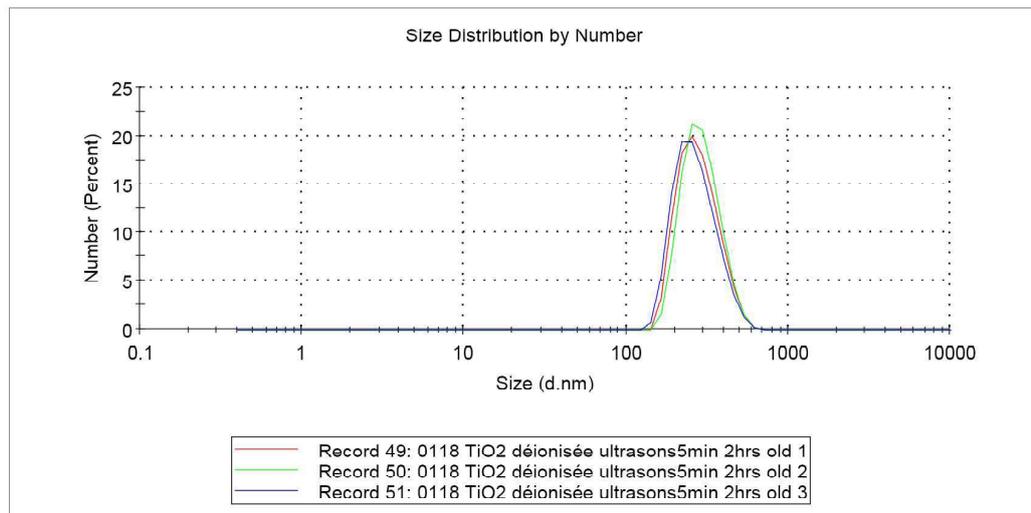
System

Temperature (°C): 20,0	Duration Used (s): 80
Count Rate (kcps): 143,2	Measurement Position (mm): 4,65
Cell Description: Disposable sizing cuvette	Attenuator: 6

Results

	Size (d.n...	% Number:	St Dev (d....
Z-Average (d.nm): 377,3	Peak 1: 272,6	100,0	81,11
PdI: 0,353	Peak 2: 0,000	0,0	0,000
Intercept: 0,838	Peak 3: 0,000	0,0	0,000

Result quality Refer to quality report



Annexe C

Article sur la mesure de DWS dans l'écoulement de Taylor-Couette

Spatio-temporal boundary dissipation measurement in Taylor-Couette flow using Diffusing-Wave Spectroscopy

Enzo Francisco and Sébastien Aumaître*

Université Paris-Saclay, CNRS, CEA, Service de Physique de l'État Condensé, 91191 Gif-sur-Yvette, France

Vincent Bouillaut

ONERA, 29 Av. de la Division Leclerc, BP 72, F-92322 Châtillon Cedex, France

Tong Wu

LMFA, Ecole Centrale de Lyon, France

Diffusing-Wave Spectroscopy (DWS) allows for the direct measurement of the squared strain-rate tensor. When combined with commonly available high-speed cameras, we show that DWS gives direct access to the spatio-temporal variations of the viscous dissipation rate of a Newtonian fluid flow. The method is demonstrated using a Taylor-Couette (TC) cell filled with a lipid emulsion or a TiO_2 suspension. We image the boundary dissipation rate in a quantitative and time-resolved fashion by shining coherent light at the experimental cell and measuring the local correlation time of the speckle pattern. The results are validated by comparison with the theoretical prediction for an ideal TC flow and with global measurements using a photomultiplier tube and a photon correlator. We illustrate the method by characterizing the spatial organization of the boundary dissipation rate past the Taylor-Couette instability threshold, and its spatio-temporal dynamics in the wavy vortex flow that arises beyond a secondary instability threshold. This study paves the way for direct imaging of the dissipation rate in a large variety of flows, including turbulent ones.

I. INTRODUCTION

The determination of velocity gradients yields valuable information in many aspects of fluid dynamics. For instance, they are involved in boundary layer phenomena, drag force and fluid-structures interactions (Étienne Guyon et al. 2001). They also play a major role in turbulence theory, where they drive the dissipation and are a key parameter of the theory of wall bounded turbulence (Barenblatt 1993, Davidson 2015, Robinson 1991).

However, it is difficult to measure them to a sufficient level of spatial and temporal resolution. Indeed, in fluid mechanics, most measurement techniques focus on velocity. Hot wire anemometry gives a temporal evolution of the velocity at a given point with high accuracy (Comte-Bellot 1976). Nevertheless, to access at least one component of the gradient, one must either assume that Taylor's frozen-flow hypothesis (Frisch 1995) holds or add a second wire which might be disturbed by the presence of the first. The estimation remains local and in a single direction. Although less intrusive, Laser Doppler Velocimetry (LDV) is not suitable for gradient measurements either. It remains a local measurement and the temporal resolution is limited by the concentration of seeding particles (Albrecht et al. 2002). Particle Image Velocimetry (PIV) enables imaging of 3 components of the velocity field in a plane. However, the correlation algorithms limit the spatial resolution to about 10 pixels of the camera (Adrian and Westerweel 2011). For instance in the 4th Interna-

tional PIV Challenge, the PIV resolution in the turbulent flow is about a millimeter (case B of Kähler et al. (2016)). Such coarse-graining does not allow for proper derivation of the velocity gradient. This resolution may be improved by zooming in but this reduces the available region of interest. Particle Tracking Velocimetry (PTV) is of no help since the Eulerian resolution is limited by the average distance between tracked particles. To bypass the issues related to particles seeding, one can use Molecular Tagging Velocimetry (MTV) (Gendrich et al. 1997). The fluid displacement is deduced from the grid deformation. With this two-dimensional technique, the gradient resolution is limited by the patterned grid spacing (about $250 \mu\text{m}$ in Gendrich et al. (1997)). There are also sensors directly measuring the shear, but they must be placed on a solid surface (Kolitawong et al. 2010). Therefore, they are limited to near-wall boundary layer and are usually local or averaged over the size of the probe.

Our aim here is to present a promising non-intrusive method that allows us to measure quantitatively the norm of the strain-rate tensor at a boundary :

$$\frac{\Gamma}{\sqrt{2}} = \sqrt{\sum_{i,j} e_{i,j}^2} \quad (1)$$

with a spatial and temporal resolution. i and j stand for the spatial coordinates $\{x, y, z\}$ where $e_{i,j} = \frac{1}{2}(\partial_i v_j + \partial_j v_i)$, \mathbf{v} being the velocity field. In the case of a pure shear flow, Γ reduces to the shear rate. More generally, the energy density dissipation rate by viscosity in a Newtonian fluid is given by $\eta\Gamma^2$, with η the dynamic viscosity of the fluid. Therefore, we are in fact able to obtain a time-dependent 2D map of the dissipation rate at the boundary of a flow. This method, called Diffusing-Wave

* Corresponding author. Email address: sebastien.aumaitre@cea.fr

Spectroscopy (DWS), uses the interfering properties of the coherent light scattered by a turbid fluid.

DWS began to be developed in the late 1980s with the aim of applying the high accuracy of Dynamic Light Scattering spectroscopy to turbid media. It relies on the properties of random light scattering in such turbid media to deduce the average relative displacement of the scatterers (Maret and Wolf 1987, Stephen 1988). The relevance of this approach was first demonstrated by the study of the Brownian motion of the scatterers (Maret and Wolf 1987, Pine et al. 1988). Nowadays, it is commonly used commercially to perform micro-rheology (Mason et al. 1997). Subsequently, the technique was applied experimentally to simple fluid flows (Bicout and Maret 1994, Wu et al. 1990) and studied theoretically for more complex flows (Bicout and Maynard 1993, Bicout et al. 1991). In these pioneering experiments, the dynamics of the scatterers was estimated from the measurement of the decorrelation time of a single far-field speckle. This speckle is selected far from the scattered light source, i.e. the turbid fluid, with a photomultiplier tube (PMT). In that case, DWS gives direct access to Γ averaged over the surface, via the intensity fluctuations at the selected speckle following a multiple-scattering process. To speed up the averaging process in the auto-correlation calculation when slow or time-dependent dynamics are at stake, a CCD camera can be used instead of the PMT, to collect the correlation time from several independent far-field speckles and to perform an ensemble average (Viasnoff et al. 2002).

The CCD camera can also be focused on the surface of the flow, for instance on the boundary of a cell. For a given speckle, the backscattered light interfering in this plane is mainly scattered by particles within a surrounding volume of characteristic size $(l^*)^3$, with l^* the transport mean free path (see section II A). Fluctuations in the speckle intensity are therefore representative of the scatterers dynamics in the nearby fluid. Thus we can obtain a spatially resolved map of the scatterer dynamics using directly measured local information. This technique was successfully applied mainly in materials science to capture plastic deformations and their precursors (Erpelding et al. 2008, Le Bouil et al. 2014). In such studies, in contrast to fluid mechanics, the displacement imposed by the external driving can be as slow as desired. Here we show that thanks to major advances in high-speed cameras, it is now possible to apply this spatially resolved method to hydrodynamic flows.

In this study, we apply spatially and temporally resolved DWS to the Taylor-Couette (TC) flow extensively studied experimentally and theoretically. This is a necessary step to calibrate the technique and evaluate its limitations. In section II, we detail the principle of the DWS method applied to fluid flow and the conditions required for meaningful measurements. We then describe the experimental setup and detail the procedure to be followed to characterize the optical properties of the fluids and to get reproducible results. The data analysis is also presented. In section III, we highlight the agreement be-

tween the average of the shear rate tensor norm measured by the camera and by the PMT associated with a photon correlator. These results are also compared to theoretical predictions. The spatial and temporal resolution allows us to observe the Taylor vortices (Taylor vortex flow) and the oscillations of these vortices (wavy vortex flow). The conclusions and perspectives are summarized in section IV.

II. MEASUREMENT METHOD

A. Principle of Diffusing-Wave Spectroscopy

Details of Diffusing-Wave Spectroscopy (DWS) can be found in Bicout and Maynard (1993), Sheng (2006), Weitz and Pine (1993). We give here the minimal description necessary to apply the method successfully. DWS applies in the multiple-scattering regime, where the transport of light is given by the diffusion approximation. Therefore the photons are supposed to perform a random walk in the turbid medium. The beams (or plane waves) of coherent light scattered by the turbid medium interfere and lead to a speckle pattern sparkling with time. The speckle pattern depends on the geometry, but the light decorrelation of a given speckle traces back the dynamics of the scatterers in the fluid domain explored by the interfering beams. More precisely, the light decorrelation at a given point \mathbf{r} outside the fluid is characterized by the correlation function of the electric field g_1 :

$$g_1(\tau) = \frac{\langle \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle}{[\langle |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle \langle |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t + \tau)|^2 \rangle]^{1/2}} \quad (2)$$

where \mathbf{E} is the complex electric field, $\langle \cdot \rangle$ corresponds to an ensemble average and \cdot^* defines the complex conjugate. In the following we will only consider quasi-stationary processes, therefore the denominator can be replaced by $\langle |\mathbf{E}(\tau)(\mathbf{r}, t)|^2 \rangle$ and the averaging can be done over time t . Actually one can only access to the correlation function of the light intensity :

$$g_2(\tau) = \frac{\langle I(\mathbf{r}, t) I(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle}{\langle I(\mathbf{r}, t) \rangle^2} \quad (3)$$

where $I(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}^*(\mathbf{r}, t) = |\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)|^2$. However, as we average over a large number of independent scattering events, one can show that g_2 is related to g_1 by the Siegert relation (Ferreira et al. 2020):

$$g_2(\tau) = 1 + \beta |g_1(\tau)|^2 \quad (4)$$

with $\beta = \frac{\langle I(\mathbf{r}, t)^2 \rangle - \langle I(\mathbf{r}, t) \rangle^2}{\langle I(\mathbf{r}, t) \rangle^2}$ the contrast, which can be up to 1 in our case. Since g_1 decreases from 1 (full correlation) at $\tau = 0$ to 0 (full decorrelation) at $\tau \rightarrow \infty$, β is given by $\beta = g_2(0) - 1$. Therefore g_1 can be deduced directly from the measurement of g_2 .

In nearly all cases of practical interest, the scattering from each particle is weak enough to neglect localization

and coherent effects but also to approximate the scattered waves by plane waves (Born approximation). Then g_1 can be expressed as a sum over path lengths (Pine et al. 1988):

$$g_1(\tau) = \int_0^\infty P(s) \langle \exp(i\Delta\Phi_s(\tau)) \rangle_s ds \quad (5)$$

where $\Delta\Phi_s(\tau)$ is the phase shift of the light due to the scatterers displacement along a given optical path of length s . $\langle \cdot \rangle_s$ is an average over all the optical paths of length s and $P(s)$ is the probability to get a path of length s . The probability $P(s)$ can be deduced directly from the diffusion theory for a given geometry. Indeed, in the diffusion approximation, the photons perform a random walk with a mean free path l . The mean free path is given by $l = 1/(\sigma c)$ where c is the number of scatterers per unit volume and σ is the scattering cross section, which depends on the scatterer considered and the wavelength. However, the scattering may be anisotropic for large enough particles. Therefore we have to introduce the transport mean free path $l^* = l/(1 - \langle \cos\theta \rangle)$, with θ the angle between the scattered wave vector and the incident wave vector and $\langle \cdot \rangle$ an averaging over many scattering events. The transport mean free path is the distance a photon must travel before its direction is randomized. In the multiple-scattering regime, the photons therefore perform an isotropic random walk with a mean free path l^* .

All the information about the dynamics of the scatterers is contained in the phase shift $\Delta\Phi_s(\tau)$. It can be written as $\Delta\Phi_s(\tau) = \sum_{i=1}^n \mathbf{q}_i \cdot \Delta\mathbf{r}_i(\tau)$, where $\mathbf{q}_i = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_{i-1}$ is the scattering wave vector, i.e. the difference between the wave vectors before and after the i^{th} scattering event, and $\Delta\mathbf{r}_i(\tau)$ is the displacement of the i^{th} scatterer during time τ . The number of scattering events in the considered path is $n \approx s/l^*$ in the diffusion approximation. In the multiple-scattering regime, $\Delta\Phi_s(\tau)$ is the sum of independent phase shifts induced by independent scattering events. We can therefore apply the central limit theorem to this sum of independent events and expect a Gaussian distribution of the phase shift $\Delta\Phi_s(\tau)$, such that:

$$\langle \exp(i\Delta\Phi_s(\tau)) \rangle_s = \frac{\exp(i\langle \Delta\Phi_s(\tau) \rangle_s) \cdot \exp\left(-\frac{\langle \Delta\Phi_s^2(\tau) \rangle_s - \langle \Delta\Phi_s(\tau) \rangle_s^2}{2}\right)}{\exp\left(-\frac{\langle \Delta\Phi_s^2(\tau) \rangle_s - \langle \Delta\Phi_s(\tau) \rangle_s^2}{2}\right)} \quad (6)$$

Hence the two first moments of $\Delta\Phi_s(\tau)$ encompass the whole dynamics.

The computation of these moments depends on the specific problem under consideration. The simplest case is a medium at rest, so the scatterers only undergo Brownian motion. In that case, one can show that $\langle \Delta\Phi_s(\tau) \rangle_s = 0$ and $\langle \Delta\Phi_s^2(\tau) \rangle_s = 4Dk^2\tau s/l^*$ with D the diffusion coefficient of the particles (Maret and Wolf 1987, Pine et al. 1988). If only a fluid flow is at play, as long as the smallest characteristic length scale of the flow Λ is much larger than l^* , one can develop the relative

displacement of the scatterers into a 1st order Taylor expansion. We also consider small τ compared to the characteristic evolution time of the flow in order to assume a ballistic displacement of the scatterers. Under these conditions, $\langle \Delta\Phi_s(\tau) \rangle_s = 0$ in incompressible flows because it is proportional to the velocity divergence. Moreover, one can show that $\langle \Delta\Phi_s^2(\tau) \rangle_s = 4 \left(\frac{\tilde{\Gamma}(s)l^*k}{\sqrt{30}} \right)^2 \tau^2 s/l^*$ (Bicout and Maynard 1993, Wu et al. 1990), where :

$$\tilde{\Gamma}(s) = \sqrt{2 \left\langle \sum_{i,j} e_{i,j}^2 \right\rangle_s} \quad (7)$$

Actually the dependence over the path length s can be dropped ($\tilde{\Gamma}(s) = \Gamma$) as long as the velocity gradients do not strongly evolve along a path, which is ensured if $l^* \ll \Lambda$ (Erpelding et al. 2010).

In our experiments, both contributions from the Brownian motion and the flow have to be taken into account. Since we consider a ballistic displacement of the scatterers regarding the flow, the phase shift is simply given by the sum of the diffusive contribution (the Brownian motion) and the convective contribution (the flow), which are independent. In the end, only the 2nd moment is non-zero and it is given by :

$$\langle \Delta\Phi_s^2(\tau) \rangle_s = 4 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{s}{l^*} + 4 \frac{\tau^2}{\tau_v^2} \frac{s}{l^*} \quad (8)$$

where $\tau_0 = 1/(Dk^2)$ is the characteristic correlation time induced by the Brownian motion and $\tau_v = \sqrt{30}/(\Gamma k l^*)$ is the characteristic correlation time due to the velocity gradient.

Because $P(s)$ depends on the geometry, so does the precise shape of the function $g_1(\tau)$. Several examples have been computed exactly (Bicout et al. 1991, Weitz and Pine 1993) (see also appendix). For the backscattering geometry with uniform illumination of the incident face, in the limit of a semi-infinite system, it simply decays exponentially :

$$g_1(\tau) \approx \exp\left(-\gamma \sqrt{6 \left[\tau/\tau_0 + (\tau/\tau_v)^2 \right]}\right) \quad (9)$$

where γl^* can be interpreted as an effective distance necessary for non diffusive incident light to become diffusive inside the sample (see appendix). The parameter γ takes into account the reflections at the boundaries and depends on several parameters : the geometry of the cell, the refractive indices of the fluid and the cell and the presence of a polarizer or analyzer (MacKintosh et al. 1989, Zhu et al. 1991). However, it can be determined *in situ* by studying the Brownian motion of the fluid in the cell without flow (see section IIC 2).

We know from the diffusion approximation that the fluid volume probed by the backscattered light remains confined in the vicinity of the incident surface, i.e. in a

small layer of thickness of a few l^* . Since the thickness L of the cell (the gap L in the TC flow) is much greater than l^* , we will consider that Γ is probed at the incident surface (the boundary between the outer cylinder and the fluid in the TC flow). In the same spirit, when the high-speed camera is focused on this surface, the intensity at a certain pixel comes from interfering beams that have most probably explored a volume of a few l^{*3} (Erpelding et al. 2008). Since the camera pixel is larger than l^* , Γ is probed at the surface on a pixel-sized area. Consequently, by considering the light intensity decorrelation of each pixel, we can measure the local norm of the strain-rate tensor at the surface, $\Gamma(y, z)$.

It is therefore possible to probe Γ with DWS as long as the Brownian motion correlation time τ_0 , the dimensionless coefficient γ and the transport mean free path of the light in the turbid media l^* are previously determined. The proper interpretation of the data also requires the following conditions :

- The scattering from each particle has to be weak enough to neglect localization and coherent effects. A scattered wave also has to be approximated as a plane wave when it reaches the next scatterer. Therefore we need the mean free path to be much greater than the wavelength λ of the light in the medium : $l \gg \lambda$.
- The multiple-scattering regime requires that many scattering events can occur and therefore that the thickness of the cell is much greater than the transport mean free path : $L \gg l^*$ where L is the characteristic size of the system. This also justifies the semi-infinite approximation in the backscattering geometry.
- Γ will be properly probed if and only if the smallest characteristic length scale of the flow is much larger than the transport mean free path : $\Lambda \gg l^*$. This also ensures that we observe the exponential decay of equation (9).
- The ballistic displacement of the scatterer is ensured if the correlation time due to the velocity gradient is much smaller than any characteristic evolution time of the flow.
- The concentration of scatterers must be uniform within the fluid in order to get a uniform transport mean free path of the light l^* in the turbid media.

It is important to notice that with this technique, the proper estimation of the velocity gradient is not limited by the camera spatial resolution since we measure directly Γ instead of deriving it from a measurement of the velocity. This proper estimation is only limited by l^* which is controlled by the particle concentration, while the pixel field of view gives the area over which Γ is averaged. In contrast with PIV measurements where the gradient estimate depends on the camera resolution, here this area can simply be adjusted as required by zooming in or out, depending on the total region of interest, the number of pixels and the size of the studied structures. However, the camera or the PMT still needs to be fast

enough to accurately measure the decay of the intensity autocorrelation.

B. Experimental setup

1. Taylor-Couette flow

In order to benchmark the DWS method, we apply it to the well-known TC flow. Indeed, this flow is one of the paradigmatic systems of fluid mechanics. The first instabilities have been widely reported in many publications (Andereck et al. 1986). A convenient control parameter of the instability is the Taylor number : $Ta = \Omega^2 L^3 R_i / \nu^2$ where Ω is the rotation rate of the inner cylinder (in rad/s), $L = R_o - R_i$ is the fluid gap between the outer cylinder (of radius R_o) and the inner cylinder (of radius R_i) and ν is the kinematic viscosity. The laminar base flow (circular Couette regime) is a pure shear flow which can be computed exactly for an infinitely long cell (Étienne Guyon et al. 2001). The shear rate (and therefore Γ) at a radius r ($R_i \leq r \leq R_o$) is then : $\Gamma_{th}(r) = 2\Omega R_i^2 R_o^2 / [r^2(R_o^2 - R_i^2)]$. The first instability (Taylor vortex regime) generates steady rolls called Taylor vortices at $Ta \geq Ta_c \approx 1712$ (the exact threshold actually depends on the radius ratio, see for instance DiPrima et al. (1984)). By increasing Ta further, one can observe an unsteady wavy instability of the vortices (wavy vortex regime). DWS has already been applied to this flow in the nineties (Bicout and Maret 1994). In this pioneering work, by using a PMT and a correlator, the authors performed global measurements with an extended plane wave and point-like measurements using a single beam with a waist of 1 mm. The main outcome of our work is to go further by the use of a high-speed camera to get a full time-dependent map of the norm of the strain-rate tensor at the boundary of the Taylor-Couette flow.

We test the method using two turbid fluids. The choice of these two turbid fluids is driven by their properties (stability, viscoelasticity, surface tension, cost, ...). The first one is a suspension of titanium dioxide (TiO_2) anatase particles from Kronos 1002, in deionized water, with a concentration of 10 g/L. The second one, called Intralipid 20%, is a stabilized lipid emulsion made of drops of soybean oil suspended in water, with a volume concentration of 20%. Our TC flow is generated in two different cells, adapted to each fluid viscosity. They are designed so that a clear linear regime (for Γ) and the first instabilities can be observed in our range of accessible parameters. Both of them are made of two coaxial Plexiglas cylinders of height $H = 10$ cm. The first cell, used for the TiO_2 suspension, has an inner radius $R_i = 12.9$ mm and an outer radius $R_o = 15$ mm, therefore a gap $L = 2.1$ mm. The outside of the outer cylinder was shaped as a plane facing the camera to eliminate optical aberrations. The second cell, used for the lipid emulsion, is slightly larger since its viscosity is higher (see section II C 4) : $R_i = 12.9$ mm,

$R_o = 15.75$ mm and $L = 2.85$ mm. In this case, the outer cylinder is immersed in a square tank filled with clear water, also in order to reduce the optical aberrations. For both cells, the outer cylinder is fixed and the inner cylinder is driven at a given rotation rate with a rheometer head (Anton Paar SDR301). The rheometer gives a precise measurement of the torque applied to the inner cylinder, which enables us to determine the fluid's viscosity (see II C 4).

2. Optical arrangement and measuring systems

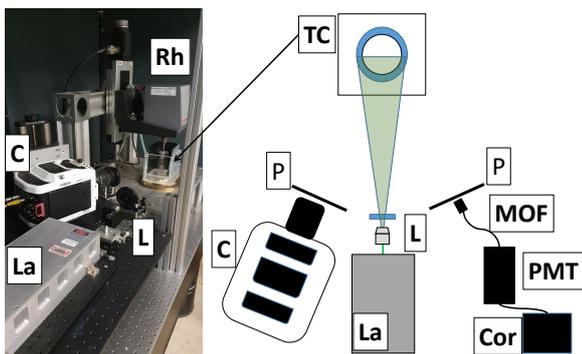


Figure 1 – **Left** Picture and **Right** sketch of the experimental setup. A coherent beam produced by the laser (**La**) is enlarged by a microscopic lens (X20) and elongated by a cylindrical lens (**L**) in order to illuminate the entire front of a Taylor-Couette cell (**TC**) filled with turbid fluid. The backscattered light is collected through a polarizer (**P**) by the high-speed camera (**C**) focused on the cell. A far-field speckle of backscattered light is also selected through a polarizer (**P**) by a monomode optical fiber (**MOF**) linked to a photomultiplier tube (**PMT**) and a correlator (**Cor**) (not shown in the picture). The inner cylinder of the Taylor-Couette cell is driven at constant rotation speed by a rheometer head (**Rh**) (not depicted in the sketch).

The optical arrangement, depicted on Figure 1, includes a polarised laser source (CNI model MSL-R-532-2000) of power 2W and wavelength $\lambda = 532$ nm. The laser beam is enlarged by a microscope lens (X20) and elongated by a cylindrical lens in order to illuminate uniformly the entire cylinder. The backscattered light is collected by a photomultiplier tube (PMT Hamamatsu H9305-04) through a single-mode optical fiber. The monomode fiber is necessary to ensure a speckle-like selection (Brown 1987). Its numerical aperture is about 0.1 to 0.14 and it is located at 20 cm from the boundary between the fluid and the outer cylinder. Therefore, the backscattered light is collected from a disk of radius 2 to 2.8 cm. A photon correlator (FLEX02-01D) is connected to the PMT to directly compute the correlation of the light intensity, with an acquisition time of $1.28 \mu\text{s}$. This part of the setup allows us to recover the results previously obtained on this flow (Bicout and Maret 1994).

An ultra high-speed camera Phantom V2010 is added to get the spatial resolution. The camera focuses on the boundary between the outer cylinder and the flow and thus captures the photons just escaping from the cell, from several near-field speckles. The correlation time of these speckles (and therefore of the corresponding pixel) probes the local velocity gradient. By doing so, we can image Γ over an area of 64×128 pixels (Width \times Height). Depending on the level of zoom we choose, the pixel size varies but it is about $250 \mu\text{m}$, so the measurement surface is about $1.6 \text{ cm} \times 3.2 \text{ cm}$. Indeed, the frame rate of this model is up to 22 600 frames per second (fps) in full resolution but we reduce the resolution to reach 400 000 fps, corresponding to an acquisition time of $\Delta t = 2.5 \mu\text{s}$. The characteristic decay time measured when the decorrelation is dominated by the velocity gradient is given by equation (9) : $\tau_{meas} = \tau_v / (\sqrt{6}\gamma) = \sqrt{5} / (\gamma k l^* \Gamma)$. In our case, it is of order : $\tau_{meas} \approx 2.10^{-3} / \Gamma$. Thus, the camera is fast enough as long as the shear rate is not too strong : if $\Gamma \leq 200 \text{ s}^{-1}$, then $\tau_{meas} \geq 4\Delta t$ which is enough to correctly fit τ_{meas} . Note that Γ can locally be substantially larger than the linear estimation ($\Gamma = \Omega R_i / L$) as soon as the Taylor vortices are at play. Therefore we were not able to perform the experiment beyond a maximum rotation rate of 100 rpm.

At such acquisition frequency, the light intensity on the CCD sensor of the camera is the main issue. This is why we do not use any diaphragm to control the speckle size. Indeed, inserting a diaphragm does not significantly increase the contrast β , because the intensity drops and becomes too low in comparison to the CCD sensor sensibility. Typically, the speckle pattern for a given pixel exhibits a contrast of about 0.8%, which is enough to get the right correlation function (see Figure 2).

Two polarizers, cross-polarized with the laser, are put in front of the camera and the fiber aperture to remove specular reflection. However, a scattering event can only slightly modify the polarization of the incident wave. Hence, when only cross-polarized light is collected, the contribution from short paths in the path distribution $P(s)$ is reduced while the contribution from long paths, which have completely randomized the polarization, is enhanced. This effect has been widely shown to influence only the value of γ without violating the DWS theory (Pine et al. 1990, Weitz and Pine 1993).

C. Experimental procedure

To probe Γ using DWS, we first have to determine the Brownian motion correlation time τ_0 , the dimensionless coefficient γ and the transport mean free path of the light in the turbid media l^* . We also measure the kinematic viscosity ν of the turbid fluids to compute the Taylor number.

1. Fluid preparation and determination of τ_0

The TiO_2 powder is dispersed in deionized water with a concentration of 10 g/L. To compute the Brownian motion correlation time $\tau_0 = 1/(k^2D)$, one needs to determine the mean particle diameter a . Indeed, according to the Stokes-Einstein formula, the diffusion coefficient D is given by $D = \frac{k_B T}{6\pi\eta} (a/2)$ where T is the temperature, k_B is the Boltzmann constant, η is the dynamic viscosity of the fluid carrying the scatterers (water in both of our fluid suspensions) and a the mean particle diameter. To determine the particle size, we used the Zetasizer from Malvern Panalytical (Ver. 7.03) based on Dynamic Light Spectroscopy. A mean particle diameter $a_{\text{TiO}_2} = 0.4 \mu\text{m}$ was found, in agreement with the provider's data and with the others techniques we used like Atomic Force Microscopy and Scanning Electron Microscopy. However, the TiO_2 particles tend to flock. By increasing the mean particle diameter, flocking has 3 detrimental effects : it changes the Brownian motion correlation time, alters the optical properties (in particular, the transport mean free path), and enhances sedimentation making the system inhomogeneous. Indeed, the TiO_2 anatase has a relative density around 3.8 and therefore tends to sediment in water. Sedimentation has to be as limited as possible, because we need the scatterers to be uniformly dispersed in the fluid with a known concentration to get a uniform transport mean free path in the fluid (see section II C 3). To prevent as much as possible the particles from flocking, we disperse them in deionised water (with a resistivity of 18 $\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$) and we immerse our sample in an ultra-sonic bath for 5 minutes to break up any clusters of particles. By following this procedure, we are able to maintain a stable suspension for several hours (the γ parameter, which captures some optical property of the suspension, changes by only 5% in 24 hours) while our measurement run lasts only one hour. However, this procedure may not be applicable in different installations of larger volume or when the fluid is difficult to fill in.

This is why we also used a stabilised emulsion of Intralipid 20%. As it is stabilized, this lipid emulsion is not affected by flocking or sedimentation. However, it is expensive and must be conserved at low temperature, whereas the TiO_2 powder is cheap and can be stored at room temperature. Care should be taken to ensure that the sample of Intralipid 20% thermalises at room temperature before use. The mean diameter of the scatterers (the drops of soybean oil) was also obtained with DLS measurements : $a_{\text{lipid}} = 0.28 \mu\text{m}$. Hence, the following values of the Brownian motion correlation time τ_0 at 24°C are obtained : $\tau_0 = 3.39 \times 10^{-3} \text{ s}$ for the TiO_2 suspension and $\tau_0 = 2.37 \times 10^{-3} \text{ s}$ for the lipid emulsion (see Table I).

2. Determination of γ

The dimensionless parameter γ is linked to the boundary conditions chosen to solve the diffusion equation (see appendix). It depends on the geometry of the cell, the refractive indices of the fluid and the cell, and the presence of a polarizer or analyzer. Usually γ takes a value between 1.5 and 2.5 (MacKintosh et al. 1989, Zhu et al. 1991). In order to determine it precisely, we proceed to a DWS measurement without fluid motion ($\Omega = 0 \text{ rpm}$). In this case, the decorrelation is only due to the Brownian motion of the scatterers : $\Gamma = 0$, $1/\tau_v = 0$ and $\langle \Delta\Phi_s(\tau)^2 \rangle_s = 4 \frac{\tau}{\tau_0} \frac{s}{l^*}$. Hence g_1 reduces to :

$$g_1(\tau) = \exp\left(-\gamma\sqrt{6\tau/\tau_0}\right) \quad (10)$$

and γ can be determined since $\tau_0 = 1/(Dk^2)$ is now known for both fluids. In our setup, we find the following values of γ : 2.27 (camera) and 2.31 (PMT) for the TiO_2 suspension, 1.63 (camera) and 1.66 (PMT) for the lipid emulsion (see Table I). Note that for the camera, the value of γ slightly differs for each pixel. However, it is a narrow Gaussian distribution around the mean value $\bar{\gamma}$ (relative standard deviation $\sigma/\bar{\gamma} \approx 5\%$), so we choose to perform the calculations with the same $\gamma = \bar{\gamma}$ for all pixels. This value can be considered as equal to the one found with the PMT, with less than 2% difference. The difference between the fluid suspensions is due both to the different refractive indices and to the different geometries of the cells.

3. Determination of l^*

The optical properties of Intralipid 20% have already been studied (Michels et al. 2008). At $\lambda = 532 \text{ nm}$ a scattering coefficient $\mu = \sigma c$ of about 110 mm^{-1} , corresponding to a mean free path $l = 9.1 \mu\text{m}$, and an anisotropy factor $g = \langle \cos\theta \rangle$ of about 0.74, are found. This leads to a value of the transport mean free path of $l^* \approx 35 \mu\text{m}$ (see Table I). For the TiO_2 suspension, to our knowledge no precise data is available for the optical properties of Kronos 1002 dispersed in deionised water. Therefore we performed DWS measurements with a 2 mm thick slab at different concentrations, in order to determine l^* directly. Indeed, when a finite slab is used, the correlation function g_1 depends on the ratio L/l^* (see appendix). We varied the concentration from 0.5 g/L to 5 g/L and found a linear relationship with the parameter L/l^* , as expected. We can therefore deduce that at a concentration of 10 g/L, the transport mean free path is about $82 \mu\text{m}$ (see Table I). It is difficult to compare this value to theoretical estimations, since the refractive index of anatase crystal is not very well known. If one assumes that it is close to the refractive index of rutile ($2.7 \leq n \leq 3$ for our wavelength), then one can deduce l^* from Mie scattering theory. Such computation can be provided by https://omlc.org/calc/mie_calc.html and

one gets $36 \mu\text{m} \leq l^* \leq 101 \mu\text{m}$ at our reference concentration of 10 g/L , since anatase relative density is about 3.8. The mean free path is always bigger than $20 \mu\text{m}$, thus $l \gg \lambda$ for both turbid fluids. Moreover, the transport mean free path l^* for both fluids is much smaller than the thickness of the cell L , the characteristic length scale of the strain-rate tensor Λ ($\Lambda \sim L \gg l^*$) or the pixel size.

4. Measurement of the fluids viscosity

Since we use a rheometer head to drive the inner cylinder, we can extract the torque applied to the inner cylinder for a given rotation rate. In the linear Taylor-Couette flow, the link between the torque and the rotation rate via the dynamic viscosity for a Newtonian fluid is well-known (Étienne Guyon et al. 2001) : $T_i = 4\pi\eta H\Omega R_o^2 R_i^2 / (R_o^2 - R_i^2)$. Therefore we can directly measure the viscosity of our turbid fluids by extracting the torque for different rotation rates in the linear regime. Note that the linear response of both fluids ensures their Newtonian behaviors. We find $\eta_{lipid} = 2.63 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ for the lipid emulsion and $\eta_{TiO_2} = 0.86 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ for the TiO_2 suspension (close to the viscosity of water at 27°C). For both fluids, the density is very close (less than 1% difference) to the density of water at 27°C : $\rho = 997 \text{ kg/m}^3$. The kinematic viscosity is therefore $\nu_{lipid} = 2.64 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ for the lipid emulsion and $\nu_{TiO_2} = 0.86 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ for the TiO_2 suspension. The values of the Brownian motion correlation time τ_0 , the dimensionless coefficient γ , the transport mean free path l^* and the kinematic viscosity ν of each fluid are shown in Table I :

Variables	TiO_2 suspension	Lipid emulsion
τ_0	$3.39 \times 10^{-3} \text{ s}$	$2.37 \times 10^{-3} \text{ s}$
γ (camera)	2.27	1.63
γ (PMT)	2.31	1.66
l^*	$82 \mu\text{m}$	$35 \mu\text{m}$
ν	$0.86 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	$2.64 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$

Table I – Values of the key variables for each fluid in our experiment

5. Experimental protocol

The experiment proceeds as follows :

- First we prepare the fluids as already mentioned. We fill the cell and mix the fluid by rotating the inner cylinder at 100 rpm during 180 s , in order to get a uniform concentration and therefore a uniform transport mean free path in the fluid.

- We wait 2 min before doing a Brownian motion measurement ($\Omega = 0 \text{ rpm}$), to determine γ (see section II C 2).
- Then we alternate high and low rotation speeds to ensure a good mixing throughout the experiment and prevent inhomogeneity and flocking. All measurements are started 1 min after the rotation speed is changed in order to ensure a steady regime. The torque is recorded by the rheometer every second. The speckle intensity in the far-field region is measured by the PMT and the correlation is calculated by the correlator in real time. The sampling time of the correlator is $1.28 \mu\text{s}$ and the correlation function is averaged over 1 min . Simultaneously, the speckle pattern at the boundary between the outer cylinder and the fluid is recorded by the high-speed camera. The acquisition time of the camera is $2.5 \mu\text{s}$. For stationary processes, like the Taylor-Couette flow or the Taylor vortex flow, we average the correlation function over $100\,000$ images, so 0.25 s . For time-dependent processes (see section III B 2), the averaging is done over only $25\,000$ images so 0.0625 s , much less than the rotation period. The duration of the full measurement by the camera is then 2 s , corresponding to $800\,000$ images, the maximum which can be recorded. The temporal resolution of the evolving spatially-resolved map of Γ is therefore $1/16^{\text{th}}$ of a second. In the end, the overall measurement duration for a given rotation rate is about 3 min .
- We end the measurement run with a second measurement of the Brownian motion to ensure that no changes of the fluid properties occurred during the run, by checking that γ has not changed.

D. Data analysis

In the setup with the PMT, the correlator directly computes the correlation function g_2 for 2048 points. On the contrary, there is some data processing to extract it from the camera images. Only 100 points of the correlation function are computed to speed up the averaging process, so that the correlation function $g_{2,p}$ of the pixel p is given by :

$$g_{2,p}(m\Delta t) = \frac{\frac{1}{N-m} \sum_{i=0}^{N-1-m} I_p(i\Delta t) I_p((i+m)\Delta t)}{\left(\frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} I_p(i\Delta t)\right)^2} \quad (11)$$

where $0 \leq m \leq 99$, $N = 100\,000$ for stationary flows and $N = 25\,000$ for time-dependent flows.

For each pixel correlation function, and for the PMT correlation function, we then remove the first points : 1 for the pixel, 2 for the PMT to start the correlation fits approximately at the same time ($2.5 \mu\text{s}$ vs $2.56 \mu\text{s}$). This

is done to avoid finite-size effects and very long trajectories probing the velocity gradients far from the surface, which may modify the exponential decay (see appendix). To fit, we keep the 99 remaining points of the pixels correlation function, i.e. up to $t = 250 \mu\text{s}$, and the corresponding 193 points of the PMT correlation function. In the end, we can fit the correlation function g_2 by its theoretical expression, following equations (4) and (9) :

$$g_2(\tau) = \beta \exp\left(-2\gamma\sqrt{6\left[\tau/\tau_o + (\tau/\tau_v)^2\right]}\right) + 1 \quad (12)$$

where the contrast β is obtained by extrapolating to $t = 0$: $\beta = g_2(0) - 1$. Knowing γ and τ_0 , we can deduce the correlation time τ_v associated with the velocity gradient and obtain $\Gamma = \frac{\sqrt{30}}{kl^* \tau_v}$. Figure 2 presents the normalized correlation function $(g_2 - 1)/\beta$ and shows that expression (12) fits perfectly the measurements of both the PMT and the camera with a coefficient of determination higher than 0.99 for any pixel and higher than 0.995 for the PMT measurement. The curves are from the lipid emulsion setup, results of similar quality are obtained with the TiO_2 suspension setup.

To get a global measurement from the camera and find the same results as with the PMT, we just need to compute the average of Γ over all pixels.

III. EXPERIMENTAL RESULTS

A. Global measurements

The first step to validate the technique is to compare the DWS measurements to the theoretical prediction. In the circular Couette regime, the theoretical prediction for Γ reduces to the shear rate at radius R_o given by :

$$\Gamma_{th}(R_o) = \frac{2\Omega R_i^2}{R_o^2 - R_i^2} \quad (13)$$

Figure 3 shows excellent agreement in the circular Couette regime between the theoretical prediction and the DWS measurements, both in the far-field region with the PMT and in the near-field region with the camera. Moreover, the discrepancy between the theory in the linear regime and the measurements appears close to the expected value of $Ta_c = 1712$ corresponding to the first instability (Taylor vortex flow). It corresponds to a critical value of the rotation rate of $\Omega_c = 60.3 \text{ rpm}$ for the lipid emulsion setup and $\Omega_c = 31.1 \text{ rpm}$ for the TiO_2 suspension setup. The theoretical critical value of Γ , given by $\Gamma_c = 2\Omega_c R_i^2 / (R_o^2 - R_i^2)$, is therefore $\Gamma_c = 25.7 \text{ s}^{-1}$ for the lipid emulsion setup and $\Gamma_c = 18.5 \text{ s}^{-1}$ for the TiO_2 suspension setup.

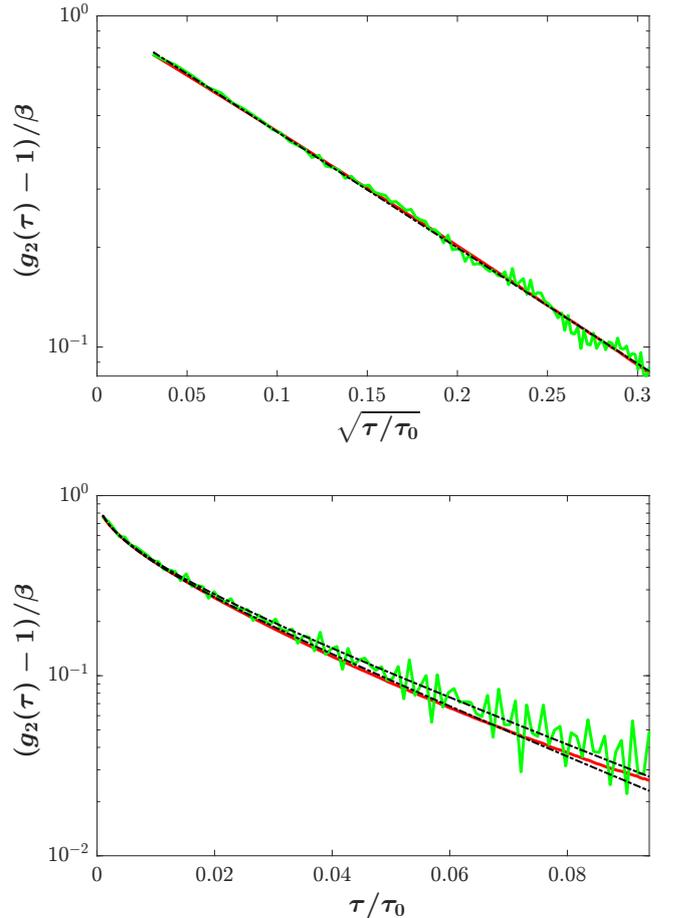


Figure 2 – Normalised correlation function $(g_2 - 1)/\beta$ of the intensity of a speckle measured with the photomultiplier tube (in red) and of a pixel with the high-speed camera (in green), **Top**: when only Brownian motion is at play ($\Omega = 0 \text{ rpm}$, therefore $1/\tau_v = 0 \text{ s}^{-1}$) and **Bottom**: when a uniform shear is applied ($\Omega = 30 \text{ rpm}$, $Ta = 424$). The black dash-dotted lines correspond to the fit based on equation (12) for the PMT and the high-speed camera respectively.

B. Spatially and temporally resolved measurements

1. Spatially resolved measurements

Up to now we have recovered the results of Bicout and Maret (1994) with the PMT and have showed that a high-speed camera can also be used to get global measurements. We are additionally able to map Γ at the surface. Since the area of measurement along the horizontal direction is small ($\approx 1.6 \text{ cm}$) compared to the diameter of the outer cylinder, no curvature effect is observed and we do not need to apply any correction to the images. Figure 4 shows the spatially resolved maps of Γ for different rotation speeds, with the lipid emulsion setup. Maps of similar quality are obtained with the TiO_2 suspension setup. We can observe the homogeneous shear rate at the surface in the linear regime and the inhomogeneity

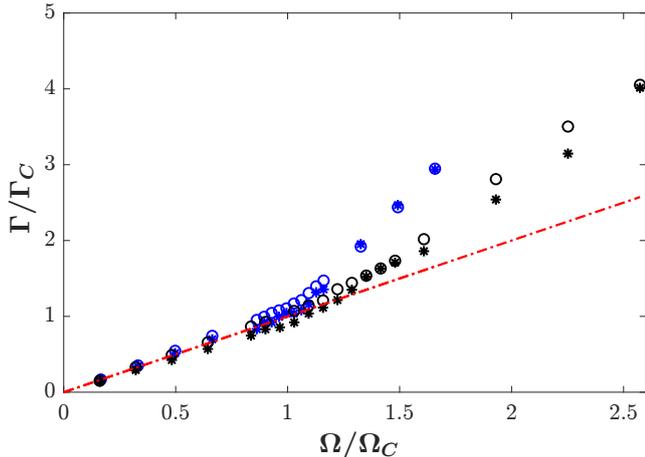


Figure 3 – Scaled value of Γ in the vicinity of the outer cylinder, measured with the PMT (circles) and the camera (stars) as a function of the scaled rotation rate. The data in blue corresponds to the lipid emulsion ($\Omega_c = 60.3$ rpm, $\Gamma_c = 25.7$ s $^{-1}$) and the data in black corresponds to the TiO $_2$ suspension ($\Omega_c = 31.1$ rpm, $\Gamma_c = 18.5$ s $^{-1}$). The red dash-dotted line represents the theoretical prediction of the laminar base flow.

of the norm of the strain-rate tensor at the surface in the Taylor vortex regime. Because of the Taylor vortices, Γ exhibits a periodic behaviour with a wavelength of about $2L$ at $Ta = 3012$, as expected (Bicout and Maret 1994).

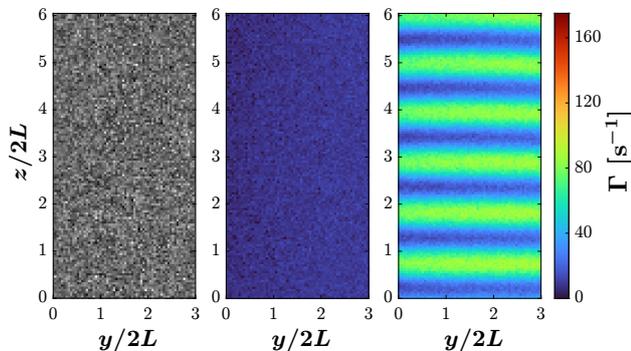


Figure 4 – **Left** Snapshot of the speckle pattern directly measured by the camera (arbitrary units of intensity). **Middle** Spatially resolved map of Γ in the linear regime ($\Omega = 20$ rpm, $Ta = 188 < 1712 = Ta_c$), and **Right** in the Taylor vortex regime ($\Omega = 80$ rpm, $Ta = 3012 > Ta_c$) with the lipid emulsion setup. The colorbar maximum (175 s $^{-1}$) corresponds to the maximum measured during the whole experiment, for $\Omega = 100$ rpm (see Figure 5). The wavelength of the periodic pattern is about $2L$.

2. Spatio-temporal measurements in the wavy vortex regime

By averaging the correlation function over 25 000 images, we are able to map the norm of the strain-rate

tensor with a period of 0.0625 s ($1/16^{th}$ of a second). Therefore, we are able to highlight the oscillations of the vortices observed in the wavy vortex regime. Figure 5 presents this spatio-temporal resolved measurement for $\Omega = 100$ rpm ($Ta = 4706$ for the lipid emulsion). The three spatially resolved maps at the top exhibit different orientations of the vortices 0.125 s apart. They correspond to three different phases of the wavy motion of the vortices, illustrated for a column of pixels in the temporal evolution diagram at the bottom. From this diagram we can extract the oscillation period (about 0.52 s). Since there are 4 azimuthal waves, the wave speed is about 0.29 Ω , which is consistent with previously reported values (King et al. 1984). An animation of the complete measurement (2 s) is available in the supplementary material.

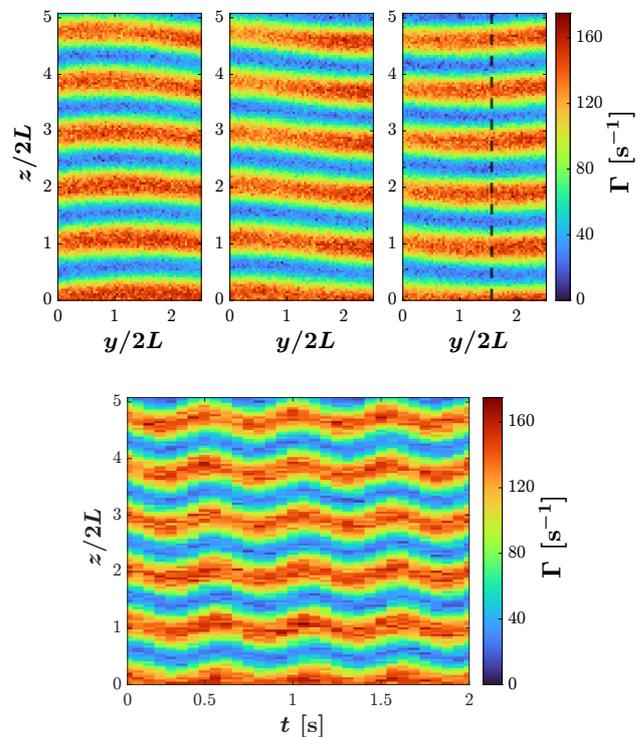


Figure 5 – **Top** Three spatially resolved maps of Γ (0.125 s apart) with the lipid emulsion setup, in the wavy vortex regime ($\Omega = 100$ rpm, $Ta = 4706$) where the oscillations of the vortices are clearly visible. **Bottom** Time evolution of Γ along a vertical line of pixels depicted by the black dashed line in the right map on top. The oscillation period is about 0.52 s.

IV. CONCLUSIONS

This work presents an optical technique, Diffusing-Wave Spectroscopy, to measure directly the norm of the strain-rate tensor and thus the energy density dissipation rate in a Newtonian fluid. The main advantage of

this technique is that it does not necessitate the spatial differentiation of a velocity measurement to measure the dissipation rate. Moreover, velocity gradients are probed on a very small length scale : the transport mean free path l^* , so about 10 to 100 μm . Our new input is the use of a high-speed camera that allows us to get a measurement of the norm of the strain-rate tensor resolved in space and time. We apply this novel technique to the well-known Taylor-Couette flow to test its accuracy, and we show that the method is quantitative. It enables us to get a time-dependent map of the norm of the strain-rate tensor, from the circular Couette regime up to the wavy vortex regime. This technique still has some limitations. In the backscattering geometry, the measurement is restricted to the vicinity of a boundary. So far, in our case, the resolution of the camera must be reduced to a frame of 64×128 pixels to reach a sufficiently high frame rate to measure the decay of the correlation functions. The time resolution is also limited to 1/16 s by the convergence of the correlation functions. This last point might be further optimized and the ever-increasing performance of high-speed cameras should help to overcome these limitations. Having proved the concept of this technique, it may now be applied to flows where knowledge of the dissipation rate is particularly relevant, for instance around structures immersed in turbulent flow. Indeed, with a big enough experiment, the Kolmogorov scale can be significantly bigger than l^* , enabling the measurement of the velocity gradient at sufficiently small scales. If we consider the lipid emulsion with a transport mean free path of 35 μm , and a characteristic length scale of 1 m for the energy injection, a DWS measurement should be able to properly measure the dissipation rate for a typical Kolmogorov scale as small as $5l^* = 175 \mu\text{m}$, so up to a Reynolds number of 10^5 . Moreover, this would correspond to a typical value of Γ of 83 s^{-1} , below the critical value of 200 s^{-1} . Lastly, by varying the pixels field of view by zooming in or out, the area over which the dissipation rate is averaged can be modified, enabling a wide range of wave numbers to be explored. We hope that this work will be a helpful starting point to design the setup dedicated to such studies.

Appendix: Boundary conditions and finite-size effects

To exactly compute the correlation function g_1 , one needs to solve the diffusion equation to determine the probability density of paths length P (Sheng 2006, Weitz and Pine 1993). To do so, we have to choose the initial and boundary conditions (BC) describing the diffusive transport of the light in the cell. We consider a slice of thickness L in the x direction ($0 \leq x \leq L$) and of infinite extent in the y and z directions. For the initial condition, in the case of uniform illumination on the incident face, the initial "diffusive light" (in the sense of being described by the diffusion equation) is often described in

the DWS theory by a Dirac (with infinite extent in y and z) at a distance x_0 from the incident face. Indeed, the transport of light can be described as diffusive only once the incident light has been scattered. We expect that the first scattering event happens at a distance of order l^* from the incident face, so $x_0 \approx l^*$. For the boundary conditions, we can decide to set the flux of diffusive light into the cell to zero at the boundaries, since no scattered light enters the sample from outside. It is even more relevant to set the flux of diffusive light into the cell to a fraction R of the flux of diffusive light leaving the cell, to take into account reflections at the boundaries. This is the partial-current BC. An equivalent BC is the extrapolated BC : the density of diffusive light is set to 0 at an extrapolation length $C = \frac{2}{3}l^* \frac{1+R}{1-R}$ outside the cell (Haskell et al. 1994, Zhu et al. 1991). We found that this solution is in even better agreement with our experimental data than the partial-current BC. Other boundary conditions are possible, such as the absorbing BC, but they usually provide solutions less in agreement with experiments (Pine et al. 1990, Weitz and Pine 1993). The probability density of path lengths $P(s)$ and its Laplace transform (the correlation function $g_1(\tau)$) can be obtained from chapter 14.3 in Carslaw and Jaeger (1959). For the extrapolated BC, in backscattering (i.e. looking at the diffusive light at $x=0$), we obtain :

$$P(s) = \frac{\pi^2 l^* \sum_{n=1}^{\infty} \sin\left(\frac{n\pi C}{L+2C}\right) \sin\left(\frac{n\pi x_0}{L+2C}\right) \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 l^* s}{3(L+2C)^2}\right)}{3(L+2C)^2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \sin\left(\frac{n\pi C}{L+2C}\right) \sin\left(\frac{n\pi x_0}{L+2C}\right)} \quad (\text{A.1})$$

$$g_1(\tau) = \frac{\sinh\left(\frac{C}{l^*} \sqrt{6T}\right) \sinh\left(\frac{L+C-x_0}{l^*} \sqrt{6T}\right)}{\left(1 - \frac{x_0+C}{L+2C}\right) \frac{C}{l^*} \sqrt{6T} \sinh\left(\frac{L+2C}{l^*} \sqrt{6T}\right)} \quad (\text{A.2})$$

where $T = \tau/\tau_0 + \tau^2/\tau_v^2$. In the limit of a semi-infinite medium ($l^* \ll L$), the correlation function reduces to :

$$g_1(\tau) = \frac{l^*}{C\sqrt{6T}} \exp\left(-\frac{x_0+C}{l^*} \sqrt{6T}\right) \sinh\left(\frac{C}{l^*} \sqrt{6T}\right) \quad (\text{A.3})$$

In the limit of short times ($T \ll 1$), the decay is almost exponential :

$$g_1(\tau) \approx \exp(-\gamma \sqrt{6T}) \quad (\text{A.4})$$

where $\gamma = \frac{x_0+C}{l^*} = \frac{x_0}{l^*} + \frac{2}{3} \frac{1+R}{1-R}$. The dimensionless parameter γ is therefore linked to x_0 but also to the geometry of the cell and the refractive indices of the fluid and the cell through R . It is also known to depend on the presence of a polarizer or analyzer, since these can foster shorter or longer paths (Pine et al. 1990, Weitz and Pine 1993).

Figure 6 highlights the finite size effects on the normalized correlation function of the intensity $(g_2(\tau) - 1)/\beta =$

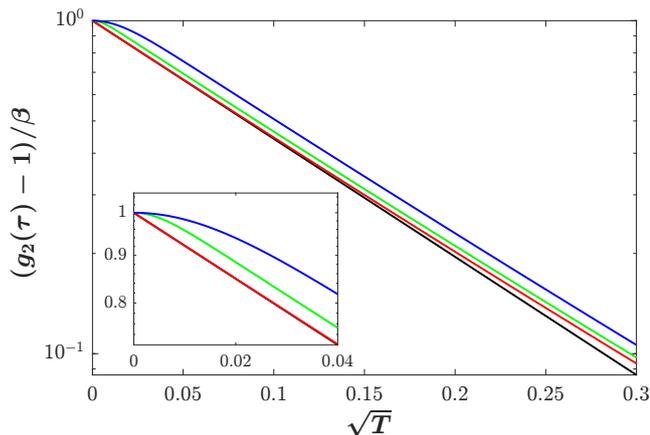


Figure 6 – Normalised correlation function $(g_2(\tau) - 1)/\beta = |g_1(\tau)|^2$ of the intensity for $L/l^* = 25$ (in blue) corresponding to the TiO₂ suspension setup and $L/l^* = 81$ (in green) corresponding to the lipid emulsion setup, from equation (A.2). The semi-infinite medium case (in red) from equation (A.3) and the exponential approximation (in black) from equation (A.4) are plot for comparison. The inset zooms in the early stage of the curve where the finite size effects are significant.

$|g_1(\tau)|^2$, for $x_0 = l^*$, $C = 2l^*/3$ ($R = 0$, no reflection) and the corresponding $\gamma = 5/3$. When the ratio L/l^* decreases, deviation from the exponential behaviour is observed at very short times. It corresponds to a reduction of the contribution of very long paths, since they can be transmitted and therefore lost for backscattering. To avoid these effects, we remove the very first points in our correlation functions and extrapolate the initial value $\beta = g_2(0) - 1$ (see section IID). Note that at slightly longer times, the slopes are the same and are very close to the exponential approximation. We can also focus on these differences at very short time to measure l^* by fit-

ting equation (A.2) to the experimental data, as long as x_0 and C are known from a "semi-infinite" measurement fitted with equation (A.3).

DECLARATIONS

- Acknowledgements :
The authors would like to thank Jérôme Crassous for introducing them to DWS, Vincent Padilla for helping them build the setup, Patrick Guenoun for giving them access to DLS facilities and KronosTM for providing a free sample of TiO₂ particles. We are grateful to Basile Gallet, Christopher Higgins, Fabrice Charra, Michael Berhanu, Alizée Dubois, Marco Bonetti and Dominique Bicout for insightful discussions.
- Ethical Approval:
No applicable.
- Competing interests:
There is no competing interests
- Authors' contributions:
E.F. and S.A. participated equally at all stages of this work and wrote the main manuscript text. V.B. and T.W. participated to the early development of the experiment. All authors reviewed the manuscript.
- Funding:
This research is supported by the French National Research Agency (ANR DYSTURB Project No. ANR-17-CE30-0004) and the European Research Council under grant agreement (project FLAVE 757239).
- Availability of data and materials:
All datasets are available on request from the corresponding author

R.J. Adrian and J. Westerweel. *Particle Image Velocimetry*. Cambridge University Press, United Kingdom, 2011. ISBN 9780521440080.

H.E. Albrecht, N. Damaschke, M. Borys, and C. Tropea. *Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques*. Experimental Fluid Mechanics. Springer Berlin Heidelberg, 2002. ISBN 9783540678380. URL https://books.google.fr/books?id=W_vTbYbpNx4C.

C. D. Andereck, S. S. Liu, and H. L. Swinney. Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders. *Journal of Fluid Mechanics*, 164:155–183, March 1986. doi:10.1017/S0022112086002513.

G. I. Barenblatt. Scaling laws for fully developed turbulent shear flows. part 1. basic hypotheses and analysis. *Journal of Fluid Mechanics*, 248:513–520, 1993. doi:10.1017/S0022112093000874.

D. Bicout and G. Maret. Multiple light scattering in taylor-couette flow. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 210(1):87–112, 1994. ISSN 0378-

4371. doi:[https://doi.org/10.1016/0378-4371\(94\)00101-4](https://doi.org/10.1016/0378-4371(94)00101-4). URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0378437194001014>.

D. Bicout and R. Maynard. Diffusing wave spectroscopy in inhomogeneous flows. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 199(3):387–411, 1993. ISSN 0378-4371. doi:[https://doi.org/10.1016/0378-4371\(93\)90056-A](https://doi.org/10.1016/0378-4371(93)90056-A). URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037843719390056A>.

D. Bicout, E. Akkermans, and R. Maynard. Dynamical correlations for multiple light scattering in laminar flow. *J. Phys. I France*, 1(4):471–491, 1991. doi:10.1051/jp1:1991147. URL <https://doi.org/10.1051/jp1:1991147>.

Robert G. W. Brown. Dynamic light scattering using monomode optical fibers. *Appl. Opt.*, 26(22):4846–4851, Nov 1987. doi:10.1364/AO.26.004846. URL <https://opg.optica.org/ao/abstract.cfm?URI=ao-26-22-4846>.

H.S. Carslaw and J.C. Jaeger. *Conduction of Heat in Solids*. Oxford science publications. Clarendon Press, 1959. ISBN

9780198533689. URL <https://books.google.fr/books?id=y2sAAAAYAAJ>.
- G Comte-Bellot. Hot-wire anemometry. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 8(1):209–231, 1976. doi:10.1146/annurev.fl.08.010176.001233. URL <https://doi.org/10.1146/annurev.fl.08.010176.001233>.
- Peter Davidson. *Turbulence: An Introduction for Scientists and Engineers*. Oxford University Press, 06 2015. ISBN 9780198722588. doi:10.1093/acprof:oso/9780198722588.001.0001. URL <https://doi.org/10.1093/acprof:oso/9780198722588.001.0001>.
- RC DiPrima, PM Eagles, and BS Ng. The effect of radius ratio on the stability of couette flow and taylor vortex flow. *The Physics of fluids*, 27(10):2403–2411, 1984.
- M. Erpelding, Axelle Amon, and Jérôme Crassous. Diffusive wave spectroscopy applied to the spatially resolved deformation of a solid. *Phys. Rev. E*, 78:046104, Oct 2008. doi:10.1103/PhysRevE.78.046104. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.78.046104>.
- M. Erpelding, R. M. Guillermic, B. Dollet, A. Saint-Jalmes, and J. Crassous. Investigating acoustic-induced deformations in a foam using multiple light scattering. *Phys. Rev. E*, 82:021409, Aug 2010. doi:10.1103/PhysRevE.82.021409. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.82.021409>.
- Dilleys Ferreira, Romain Bachelard, William Guerin, Robin Kaiser, and Mathilde Fouché. Connecting field and intensity correlations: The siegert relation and how to test it. *American Journal of Physics*, 88(10):831–837, Oct 2020. ISSN 1943-2909. doi:10.1119/10.0001630. URL <http://dx.doi.org/10.1119/10.0001630>.
- Uriel Frisch. *Turbulence: The Legacy of A. N. Kolmogorov*. Cambridge University Press, 1995. doi:10.1017/CBO9781139170666.
- C. P. Gendrich, M. M. Koochesfahani, and D. G. Nocera. Molecular tagging velocimetry and other novel applications of a new phosphorescent supramolecule. *Experiments in Fluids*, 23(5):361–372, January 1997.
- Richard C. Haskell, Lars O. Svaasand, Tsong-Tseh Tsay, Ti-Chen Feng, Matthew S. McAdams, and Bruce J. Tromberg. Boundary conditions for the diffusion equation in radiative transfer. *J. Opt. Soc. Am. A*, 11(10):2727–2741, Oct 1994. doi:10.1364/JOSAA.11.002727. URL <https://opg.optica.org/josaa/abstract.cfm?URI=josaa-11-10-2727>.
- Christian J. Kähler, Tommaso Astarita, Pavlos P. Vlachos, Jun Sakakibara, Rainer Hain, Stefano Discetti, Roderick La Foy, and Christian Cierpka. Main results of the 4th International PIV Challenge. *Experiments in Fluids*, 57(6):97, June 2016. doi:10.1007/s00348-016-2173-1.
- Gregory P. King, W. Lee, Y. Li, Harry L. Swinney, and Philip S. Marcus. Wave speeds in wavy taylor-vortex flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 141:365–390, 1984. doi:10.1017/S0022112084000896.
- Chanyut Kolitawong, Alan Giacomini, and Leann Johnson. Invited article: Local shear stress transduction. *Review of Scientific Instruments*, 81:021301–021301, 02 2010. doi:10.1063/1.3314284.
- Antoine Le Bouil, Axelle Amon, Sean McNamara, and Jérôme Crassous. Emergence of cooperativity in plasticity of soft glassy materials. *Phys. Rev. Lett.*, 112:246001, Jun 2014. doi:10.1103/PhysRevLett.112.246001. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.112.246001>.
- F. C. MacKintosh, J. X. Zhu, D. J. Pine, and D. A. Weitz. Polarization memory of multiply scattered light. *Phys. Rev. B*, 40:9342–9345, Nov 1989. doi:10.1103/PhysRevB.40.9342. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.40.9342>.
- G. Maret and P. E. Wolf. Multiple light scattering from disordered media. The effect of brownian motion of scatterers. *Zeitschrift fur Physik B Condensed Matter*, 65(4):409–413, December 1987. doi:10.1007/BF01303762.
- T. G. Mason, Hu Gang, and D. A. Weitz. Diffusing-wave spectroscopy measurements of viscoelasticity of complex fluids. *J. Opt. Soc. Am. A*, 14(1):139–149, Jan 1997. doi:10.1364/JOSAA.14.000139. URL <https://opg.optica.org/josaa/abstract.cfm?URI=josaa-14-1-139>.
- René Michels, Florian Foschum, and Alwin Kienle. Optical properties of fat emulsions. *Opt. Express*, 16(8):5907–5925, Apr 2008. doi:10.1364/OE.16.005907. URL <https://opg.optica.org/oe/abstract.cfm?URI=oe-16-8-5907>.
- D. J. Pine, D. A. Weitz, P. M. Chaikin, and E. Herbolzheimer. Diffusing wave spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 60:1134–1137, Mar 1988. doi:10.1103/PhysRevLett.60.1134. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.60.1134>.
- D. J. Pine, D. A. Weitz, J. X. Zhu, and E. Herbolzheimer. Diffusing-wave spectroscopy: Dynamic light scattering in the multiple scattering limit. *Journal De Physique*, 51(18):2101–2127, 1990. URL https://jphys.journaldephysique.org/en/articles/jphys/abs/1990/18/jphys_1990__51_18_2101_0/jphys_1990__51_18_2101_0.html.
- S K Robinson. Coherent motions in the turbulent boundary layer. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 23(1):601–639, 1991. doi:10.1146/annurev.fl.23.010191.003125. URL <https://doi.org/10.1146/annurev.fl.23.010191.003125>.
- P. Sheng. *Diffusive Waves*, chapter 5, pages 127–181. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2006. ISBN 978-3-540-29156-5. doi:10.1007/3-540-29156-3_5. URL https://doi.org/10.1007/3-540-29156-3_5.
- Michael J. Stephen. Temporal fluctuations in wave propagation in random media. *Phys. Rev. B*, 37:1–5, Jan 1988. doi:10.1103/PhysRevB.37.1. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.37.1>.
- Virgile Viasnoff, Francois Lequeux, and D. J. Pine. Multispeckle diffusing-wave spectroscopy: a tool to study slow relaxation and time-dependent dynamics. *Review of Scientific Instruments*, 73:2336, 2002. URL <https://hal.science/hal-00021258>. 11 pages 13 figures.
- D. A. Weitz and D. J. Pine. *Diffusing-wave spectroscopy*, chapter 16. Monographs on the Physics and Chemistry of Materials. Clarendon Press, 1993. ISBN 9780198539421. URL <https://books.google.fr/books?id=XwzwAAAAMAAJ>.
- X-L. Wu, D. J. Pine, P. M. Chaikin, J. S. Huang, and D. A. Weitz. Diffusing-wave spectroscopy in a shear flow. *J. Opt. Soc. Am. B*, 7(1):15–20, Jan 1990. doi:10.1364/JOSAB.7.000015. URL <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-7-1-15>.
- J. X. Zhu, D. J. Pine, and D. A. Weitz. Internal reflection of diffusive light in random media. *Phys. Rev. A*, 44:3948–3959, Sep 1991. doi:10.1103/PhysRevA.44.3948. URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.44.3948>.
- Étienne Guyon, Jean-Pierre Hulin, and Luc Petit. *Hydrodynamique physique*. EDP Sciences, Les Ulis, 2001. ISBN 9782759802746. doi:doi:10.1051/978-2-7598-0274-6. URL <https://doi.org/10.1051/978-2-7598-0274-6>.

Bibliographie

- [1] G. MARET et P. E. WOLF. “Multiple light scattering from disordered media. The effect of brownian motion of scatterers”. In : *Zeitschrift fur Physik B Condensed Matter* 65.4 (déc. 1987), p. 409-413. DOI : [10.1007/BF01303762](https://doi.org/10.1007/BF01303762).
- [2] D. J. PINE et al. “Diffusing wave spectroscopy”. In : *Phys. Rev. Lett.* 60 (12 1988), p. 1134-1137. DOI : [10.1103/PhysRevLett.60.1134](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.60.1134).
- [3] X-L. WU et al. “Diffusing-wave spectroscopy in a shear flow”. In : *J. Opt. Soc. Am. B* 7.1 (1990), p. 15-20. DOI : [10.1364/JOSAB.7.000015](https://doi.org/10.1364/JOSAB.7.000015).
- [4] D. BICOUT et G. MARET. “Multiple light scattering in Taylor-Couette flow”. In : *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* 210.1 (1994), p. 87-112. DOI : [https://doi.org/10.1016/0378-4371\(94\)00101-4](https://doi.org/10.1016/0378-4371(94)00101-4).
- [5] M. ERPELDING, Axelle AMON et Jérôme CRASSOUS. “Diffusive wave spectroscopy applied to the spatially resolved deformation of a solid”. In : *Phys. Rev. E* 78 (4 2008), p. 046104. DOI : [10.1103/PhysRevE.78.046104](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.78.046104).
- [6] M. ERPELDING, A. AMON et J. CRASSOUS. “Mechanical response of granular media : New insights from Diffusing-Wave Spectroscopy”. In : *Europhysics Letters* 91.1 (2010), p. 18002. DOI : [10.1209/0295-5075/91/18002](https://doi.org/10.1209/0295-5075/91/18002).
- [7] Antoine LE BOUIL et al. “Emergence of Cooperativity in Plasticity of Soft Glassy Materials”. In : *Phys. Rev. Lett.* 112 (24 2014), p. 246001. DOI : [10.1103/PhysRevLett.112.246001](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.246001).
- [8] Med-Yassine NAGAZI et al. “Space-resolved diffusing wave spectroscopy measurements of the macroscopic deformation and the microscopic dynamics in tensile strain tests”. In : *Optics and Lasers in Engineering* 88 (jan. 2017), p. 5-12. DOI : [10.1016/j.optlaseng.2016.07.006](https://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2016.07.006).
- [9] Axelle AMON, Alesya MIKHAILOVSKAYA et Jérôme CRASSOUS. “Spatially resolved measurements of micro-deformations in granular materials using diffusing wave spectroscopy”. In : *Review of Scientific Instruments* 88.5 (mai 2017), p. 051804. DOI : [10.1063/1.4983048](https://doi.org/10.1063/1.4983048).

- [10] Étienne GUYON, Jean-Pierre HULIN et Luc PETIT. *Hydrodynamique physique*. Les Ulis : EDP Sciences, 2001. ISBN : 9782759802746. DOI : [doi : 10.1051/978-2-7598-0274-6](https://doi.org/10.1051/978-2-7598-0274-6).
- [11] Peter DAVIDSON. *Turbulence : An Introduction for Scientists and Engineers*. Oxford University Press, juin 2015. ISBN : 9780198722588. DOI : [10.1093/acprof:oso/9780198722588.001.0001](https://doi.org/10.1093/acprof:oso/9780198722588.001.0001).
- [12] Guichao WANG et al. “Estimation of the dissipation rate of turbulent kinetic energy : A review”. In : *Chemical Engineering Science* 229 (2021), p. 116133. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.ces.2020.116133>.
- [13] G COMTE-BELLOT. “Hot-Wire Anemometry”. In : *Annual Review of Fluid Mechanics* 8.1 (1976), p. 209-231. DOI : [10.1146/annurev.fl.08.010176.001233](https://doi.org/10.1146/annurev.fl.08.010176.001233).
- [14] Uriel FRISCH. *Turbulence : The Legacy of A. N. Kolmogorov*. Cambridge University Press, 1995. DOI : [10.1017/CB09781139170666](https://doi.org/10.1017/CB09781139170666).
- [15] H.E. ALBRECHT et al. *Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques*. Experimental Fluid Mechanics. Springer Berlin Heidelberg, 2002. ISBN : 9783540678380.
- [16] R.J. ADRIAN et J. WESTERWEEL. *Particle Image Velocimetry*. English. United Kingdom : Cambridge University Press, 2011. ISBN : 9780521440080.
- [17] Christian J. KÄHLER et al. “Main results of the 4th International PIV Challenge”. In : *Experiments in Fluids* 57.6, 97 (juin 2016), p. 97. DOI : [10.1007/s00348-016-2173-1](https://doi.org/10.1007/s00348-016-2173-1).
- [18] Chanyut KOLITAWONG, Alan GIACOMIN et Leann JOHNSON. “Invited Article : Local shear stress transduction”. In : *Review of Scientific Instruments* 81 (fév. 2010), p. 021301-021301. DOI : [10.1063/1.3314284](https://doi.org/10.1063/1.3314284).
- [19] RC DiPRIMA, PM EAGLES et BS NG. “The effect of radius ratio on the stability of Couette flow and Taylor vortex flow”. In : *The Physics of fluids* 27.10 (1984), p. 2403-2411.
- [20] Sivaramakrishna CHANDRASEKHAR. “The stability of viscous flow between rotating cylinders”. In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 246.1246 (1958), p. 301-311. DOI : [10.1098/rspa.1958.0139](https://doi.org/10.1098/rspa.1958.0139).
- [21] R. J. DONNELLY et Sivaramakrishna CHANDRASEKHAR. “Experiments on the stability of viscous flow between rotating cylinders I. Torque measurements”. In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 246.1246 (1958), p. 312-325. DOI : [10.1098/rspa.1958.0140](https://doi.org/10.1098/rspa.1958.0140).

- [22] A. DAVEY. “The growth of Taylor vortices in flow between rotating cylinders”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 14.3 (1962), 336–368. DOI : [10.1017/S0022112062001287](https://doi.org/10.1017/S0022112062001287).
- [23] R. J. DONNELLY. “Experimental Confirmation of the Landau Law in Couette Flow”. In : *Phys. Rev. Lett.* 10 (7 1963), p. 282-284. DOI : [10.1103/PhysRevLett.10.282](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.10.282).
- [24] L.D. LANDAU et E.M. LIFSHITZ. *Fluid Mechanics : Landau and Lifshitz : Course of Theoretical Physics, Volume 6*. vol. 6. Elsevier Science, 2013. ISBN : 9781483161044.
- [25] Kevin MOSER et al. “Visualization of Taylor-Couette and spiral Poiseuille flows using a snapshot FLASH spatial tagging sequence”. In : *Magnetic resonance imaging* 18 (mars 2000), p. 199-207. DOI : [10.1016/S0730-725X\(99\)00121-6](https://doi.org/10.1016/S0730-725X(99)00121-6).
- [26] Gregory P. KING et al. “Wave speeds in wavy Taylor-vortex flow”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 141 (1984), 365–390. DOI : [10.1017/S0022112084000896](https://doi.org/10.1017/S0022112084000896).
- [27] C. D. ANDERECK, S. S. LIU et H. L. SWINNEY. “Flow regimes in a circular Couette system with independently rotating cylinders”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 164 (mars 1986), p. 155-183. DOI : [10.1017/S0022112086002513](https://doi.org/10.1017/S0022112086002513).
- [28] Jonathan DEROT. “Utilisation des données de MAREL Carnot pour la compréhension des mécanismes des extrêmes dans la qualité des eaux à Boulogne-sur-Mer”. Theses. Université du Littoral Côte d’Opale, déc. 2014.
- [29] A. ISHIMARU. *Wave propagation and scattering in random media. Volume 1 - Single scattering and transport theory*. T. 1. 1978. DOI : [10.1016/B978-0-12-374701-3.X5001-7](https://doi.org/10.1016/B978-0-12-374701-3.X5001-7).
- [30] M. C. W. van ROSSUM et Th. M. NIEUWENHUIZEN. “Multiple scattering of classical waves : microscopy, mesoscopy, and diffusion”. In : *Rev. Mod. Phys.* 71 (1 1999), p. 313-371. DOI : [10.1103/RevModPhys.71.313](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.71.313).
- [31] Richard C. HASKELL et al. “Boundary conditions for the diffusion equation in radiative transfer”. In : *J. Opt. Soc. Am. A* 11.10 (1994), p. 2727-2741. DOI : [10.1364/JOSAA.11.002727](https://doi.org/10.1364/JOSAA.11.002727).
- [32] S. CHANDRASEKHAR. “Stochastic Problems in Physics and Astronomy”. In : *Rev. Mod. Phys.* 15 (1 1943), p. 1-89. DOI : [10.1103/RevModPhys.15.1](https://doi.org/10.1103/RevModPhys.15.1).
- [33] D. BICOUT, E. AKKERMANS et R. MAYNARD. “Dynamical correlations for multiple light scattering in laminar flow”. In : *J. Phys. I France* 1.4 (1991), p. 471-491. DOI : [10.1051/jp1:1991147](https://doi.org/10.1051/jp1:1991147).

- [34] D. BICOUT et R. MAYNARD. “Diffusing wave spectroscopy in inhomogeneous flows”. In : *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* 199.3 (1993), p. 387-411. DOI : [https://doi.org/10.1016/0378-4371\(93\)90056-A](https://doi.org/10.1016/0378-4371(93)90056-A).
- [35] D. J. PINE et al. “Diffusing-wave spectroscopy : Dynamic light scattering in the multiple scattering limit”. In : *Journal De Physique* 51.18 (1990), p. 2101-2127.
- [36] D.S. HORNE et C.M. DAVIDSON. “Application of diffusing-wave spectroscopy to particle sizing in concentrated dispersions”. In : *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects* 77.1 (1993). A collection of papers presented at a one-day meeting held at the Society of Chemical Industry, p. 1-8. DOI : [https://doi.org/10.1016/0927-7757\(93\)80094-U](https://doi.org/10.1016/0927-7757(93)80094-U).
- [37] Frank SCHEFFOLD. “Particle Sizing with Diffusing Wave Spectroscopy”. In : *Journal of Dispersion Science and Technology* 23.5 (2002), p. 591-599. DOI : [10.1081/DIS-120015365](https://doi.org/10.1081/DIS-120015365).
- [38] D. J. DURIAN, D. A. WEITZ et D. J. PINE. “Scaling behavior in shaving cream”. In : *Phys. Rev. A* 44 (12 1991), R7902-R7905. DOI : [10.1103/PhysRevA.44.R7902](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.44.R7902).
- [39] Sylvie COHEN-ADDAD et Reinhard HÖHLER. “Bubble Dynamics Relaxation in Aqueous Foam Probed by Multispeckle Diffusing-Wave Spectroscopy”. In : *Phys. Rev. Lett.* 86 (20 2001), p. 4700-4703. DOI : [10.1103/PhysRevLett.86.4700](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.86.4700).
- [40] M. ERPELDING et al. “Investigating acoustic-induced deformations in a foam using multiple light scattering”. In : *Phys. Rev. E* 82 (2 2010), p. 021409. DOI : [10.1103/PhysRevE.82.021409](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.82.021409).
- [41] Narayanan MENON et Douglas J. DURIAN. “Diffusing-Wave Spectroscopy of Dynamics in a Three-Dimensional Granular Flow”. In : *Science* 275.5308 (1997), p. 1920-1922. DOI : [10.1126/science.275.5308.1920](https://doi.org/10.1126/science.275.5308.1920).
- [42] Caroline HANOTIN et al. “Dynamics of vibrated granular suspensions probed by mechanical spectroscopy and diffusing wave spectroscopy measurements”. In : *Soft Matter* 9 (39 2013), p. 9352-9360. DOI : [10.1039/C3SM51570B](https://doi.org/10.1039/C3SM51570B).
- [43] T. G. MASON, Hu GANG et D. A. WEITZ. “Diffusing-wave-spectroscopy measurements of viscoelasticity of complex fluids”. In : *J. Opt. Soc. Am. A* 14.1 (1997), p. 139-149. DOI : [10.1364/JOSAA.14.000139](https://doi.org/10.1364/JOSAA.14.000139).
- [44] Andre PALMER et al. “Diffusing Wave Spectroscopy Microrheology of Actin Filament Networks”. In : *Biophysical Journal* 76.2 (1999), p. 1063-1071. DOI : [https://doi.org/10.1016/S0006-3495\(99\)77271-1](https://doi.org/10.1016/S0006-3495(99)77271-1).

- [45] Bivash R. DASGUPTA et al. “Microrheology of polyethylene oxide using diffusing wave spectroscopy and single scattering”. In : *Phys. Rev. E* 65 (5 2002), p. 051505. DOI : [10.1103/PhysRevE.65.051505](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.65.051505).
- [46] Valentina LORUSSO et al. “Recent developments in emulsion characterization : Diffusing Wave Spectroscopy beyond average values”. In : *Advances in Colloid and Interface Science* 288 (2021), p. 102341. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.cis.2020.102341>.
- [47] D.J. BICOUT et R. MAYNARD. “Multiple light scattering in turbulent flow”. In : *Physica B : Condensed Matter* 204.1 (1995), p. 20-26. DOI : [https://doi.org/10.1016/0921-4526\(94\)00239-R](https://doi.org/10.1016/0921-4526(94)00239-R).
- [48] J.C. DAINTY. *Laser Speckle and Related Phenomena*. Topics in applied physics. Springer-Verlag, 1984. ISBN : 9783540131694.
- [49] B.J. BERNE et R. PECORA. *Dynamic Light Scattering : With Applications to Chemistry, Biology, and Physics*. Dover Books on Physics. Dover Publications, 2013. ISBN : 9780486320243.
- [50] P.-A. LEMIEUX et D. J. DURIAN. “Investigating non-Gaussian scattering processes by using nth-order intensity correlation functions”. In : *J. Opt. Soc. Am. A* 16.7 (1999), p. 1651-1664. DOI : [10.1364/JOSAA.16.001651](https://doi.org/10.1364/JOSAA.16.001651).
- [51] Dilley FERREIRA et al. “Connecting field and intensity correlations : The Siegert relation and how to test it”. In : *American Journal of Physics* 88.10 (2020), 831–837. DOI : [10.1119/10.0001630](https://doi.org/10.1119/10.0001630).
- [52] John PAGE et al. “Diffusing Acoustic Wave Spectroscopy : Field Fluctuation Spectroscopy with Multiply Scattered Ultrasonic Waves”. In : (jan. 2003). DOI : [10.1007/978-94-010-0227-1_8](https://doi.org/10.1007/978-94-010-0227-1_8).
- [53] Robert G. W. BROWN. “Dynamic light scattering using monomode optical fibers”. In : *Appl. Opt.* 26.22 (1987), p. 4846-4851. DOI : [10.1364/AO.26.004846](https://doi.org/10.1364/AO.26.004846).
- [54] D. A. WEITZ et D. J. PINE. “Diffusing-wave spectroscopy”. In : *Dynamic Light Scattering : The Method and Some Applications*. Sous la dir. de W. BROWN. Monographs on the Physics and Chemistry of Materials. Clarendon Press, 1993. Chap. 16. ISBN : 9780198539421.
- [55] D. J. DURIAN. “Accuracy of diffusing-wave spectroscopy theories”. In : *Phys. Rev. E* 51 (4 1995), p. 3350-3358. DOI : [10.1103/PhysRevE.51.3350](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.51.3350).
- [56] D. J. DURIAN. “Penetration depth for diffusing-wave spectroscopy”. In : *Appl. Opt.* 34.30 (1995), p. 7100-7105. DOI : [10.1364/AO.34.007100](https://doi.org/10.1364/AO.34.007100).
- [57] H.S. CARSLAW et J.C. JAEGER. *Conduction of Heat in Solids*. Oxford science publications. Clarendon Press, 1959. ISBN : 9780198533689.

- [58] J. X. ZHU, D. J. PINE et D. A. WEITZ. “Internal reflection of diffusive light in random media”. In : *Phys. Rev. A* 44 (6 1991), p. 3948-3959. DOI : [10.1103/PhysRevA.44.3948](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.44.3948).
- [59] F. C. MACKINTOSH et Sajeew JOHN. “Diffusing-wave spectroscopy and multiple scattering of light in correlated random media”. In : *Phys. Rev. B* 40 (4 1989), p. 2383-2406. DOI : [10.1103/PhysRevB.40.2383](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.40.2383).
- [60] F. C. MACKINTOSH et al. “Polarization memory of multiply scattered light”. In : *Phys. Rev. B* 40 (13 1989), p. 9342-9345. DOI : [10.1103/PhysRevB.40.9342](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.40.9342).
- [61] Luis Fernando ROJAS-OCHOA et al. “Depolarization of backscattered linearly polarized light”. In : *J. Opt. Soc. Am. A* 21.9 (2004), p. 1799-1804. DOI : [10.1364/JOSAA.21.001799](https://doi.org/10.1364/JOSAA.21.001799).
- [62] Thomas J. FARRELL, Michael S. PATTERSON et Brian WILSON. “A diffusion theory model of spatially resolved, steady-state diffuse reflectance for the noninvasive determination of tissue optical properties in vivo”. In : *Medical Physics* 19.4 (juill. 1992), p. 879-888. DOI : [10.1118/1.596777](https://doi.org/10.1118/1.596777).
- [63] Paola Di NINNI, Fabrizio MARTELLI et Giovanni ZACCANTI. “Intralipid : towards a diffusive reference standard for optical tissue phantoms”. In : *Physics in Medicine & Biology* 56.2 (2010), N21. DOI : [10.1088/0031-9155/56/2/N01](https://doi.org/10.1088/0031-9155/56/2/N01).
- [64] René MICHELS, Florian FOSCHUM et Alwin KIENLE. “Optical properties of fat emulsions”. In : *Opt. Express* 16.8 (2008), p. 5907-5925. DOI : [10.1364/OE.16.005907](https://doi.org/10.1364/OE.16.005907).
- [65] A. PRZADKA et al. “Fourier transform profilometry for water waves : How to achieve clean water attenuation with diffusive reflection at the water surface ?” In : *Experiments in Fluids* 52 (fév. 2012). DOI : [10.1007/s00348-011-1240-x](https://doi.org/10.1007/s00348-011-1240-x).
- [66] Mats SILVANDER et al. “Rheological properties of phospholipid-stabilized parenteral oil-in-water emulsions—effects of electrolyte concentration and presence of heparin”. In : *International Journal of Pharmaceutics* 252.1 (2003), p. 123-132. DOI : [https://doi.org/10.1016/S0378-5173\(02\)00626-9](https://doi.org/10.1016/S0378-5173(02)00626-9).
- [67] R_ MEI. “Velocity fidelity of flow tracer particles”. In : *Experiments in fluids* 22.1 (1996), p. 1-13.
- [68] María I. CABRERA, Orlando M. ALFANO et Alberto E. CASSANO. “Absorption and Scattering Coefficients of Titanium Dioxide Particulate Suspensions in Water”. In : *The Journal of Physical Chemistry* 100.51 (1996), p. 20043-20050. DOI : [10.1021/jp962095q](https://doi.org/10.1021/jp962095q).

- [69] L.E McNEIL et R.H FRENCH. “Multiple scattering from rutile TiO₂ particles”. In : *Acta Materialia* 48.18 (2000), p. 4571-4576. DOI : [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(00\)00243-3](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(00)00243-3).
- [70] Junxin Wang WILLIAM E. VARGAS et Gunnar A. NIKLASSON. “Scattering and absorption cross sections of light diffusing materials retrieved from reflectance and transmittance spectra of collimated radiation”. In : *Journal of Modern Optics* 67.11 (2020), p. 974-991. DOI : [10.1080/09500340.2020.1801872](https://doi.org/10.1080/09500340.2020.1801872).
- [71] Alwin KIENLE et al. “Spatially resolved absolute diffuse reflectance measurements for noninvasive determination of the optical scattering and absorption coefficients of biological tissue”. In : *Appl. Opt.* 35.13 (1996), p. 2304-2314. DOI : [10.1364/AO.35.002304](https://doi.org/10.1364/AO.35.002304).
- [72] C. BARAVIAN et al. “Steady light transport under flow : Characterization of evolving dense random media”. In : *Phys. Rev. E* 71 (6 2005), p. 066603. DOI : [10.1103/PhysRevE.71.066603](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.71.066603).
- [73] F. CATON, C. BARAVIAN et J. MOUGEL. “The influence of the microscopic characteristics of a random medium on incoherent light transport”. In : *Opt. Express* 15.6 (2007), p. 2847-2872. DOI : [10.1364/OE.15.002847](https://doi.org/10.1364/OE.15.002847).
- [74] Tie WEI. “Scaling of turbulent kinetic energy and dissipation in turbulent wall-bounded flows”. In : *Phys. Rev. Fluids* 5 (9 2020), p. 094602. DOI : [10.1103/PhysRevFluids.5.094602](https://doi.org/10.1103/PhysRevFluids.5.094602).
- [75] I. MARUSIC et al. “Wall-bounded turbulent flows at high Reynolds numbers : Recent advances and key issues”. In : *Physics of Fluids* 22.6 (juin 2010), p. 065103. DOI : [10.1063/1.3453711](https://doi.org/10.1063/1.3453711).
- [76] A. N. KOLMOGOROV. “A refinement of previous hypotheses concerning the local structure of turbulence in a viscous incompressible fluid at high Reynolds number”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 13.1 (1962), 82–85. DOI : [10.1017/S0022112062000518](https://doi.org/10.1017/S0022112062000518).
- [77] A. M. OBOUKHOV. “Some specific features of atmospheric turbulence”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 13.1 (1962), 77–81. DOI : [10.1017/S0022112062000506](https://doi.org/10.1017/S0022112062000506).
- [78] R. FRIEDRICH et Joachim PEINKE. “Description of a Turbulent Cascade by a Fokker-Planck Equation”. In : *Physical Review Letters - PHYS REV LETT* 78 (fév. 1997), p. 863-866. DOI : [10.1103/PhysRevLett.78.863](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.863).
- [79] Brodie PEARSON et Baylor FOX-KEMPER. “Log-Normal Turbulence Dissipation in Global Ocean Models”. In : *Phys. Rev. Lett.* 120 (9 2018), p. 094501. DOI : [10.1103/PhysRevLett.120.094501](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.094501).

- [80] Benoit B. MANDELBROT. “Possible refinement of the lognormal hypothesis concerning the distribution of energy dissipation in intermittent turbulence”. In : *Statistical Models and Turbulence*. Sous la dir. de M. ROSENBLATT et C. VAN ATTA. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 1972, p. 333-351. ISBN : 978-3-540-37093-2.
- [81] Robert H. KRAICHNAN. “On Kolmogorov’s inertial-range theories”. In : *Journal of Fluid Mechanics* 62.2 (1974), 305–330. DOI : [10.1017/S002211207400070X](https://doi.org/10.1017/S002211207400070X).
- [82] B. CASTAING, Y. GAGNE et E.J. HOPFINGER. “Velocity probability density functions of high Reynolds number turbulence”. In : *Physica D : Nonlinear Phenomena* 46.2 (1990), p. 177-200. DOI : [https://doi.org/10.1016/0167-2789\(90\)90035-N](https://doi.org/10.1016/0167-2789(90)90035-N).
- [83] Romain PIERRAT. “Transport equation for the time correlation function of scattered field in dynamic turbid media”. In : *J. Opt. Soc. Am. A* 25.11 (2008), p. 2840-2845. DOI : [10.1364/JOSAA.25.002840](https://doi.org/10.1364/JOSAA.25.002840).