



**HAL**  
open science

# Écoulement d'une phase lamellaire lyotrope : rhéochaos, systèmes dynamiques et vélocimétrie locale

Jean-Baptiste Salmon

► **To cite this version:**

Jean-Baptiste Salmon. Écoulement d'une phase lamellaire lyotrope : rhéochaos, systèmes dynamiques et vélocimétrie locale. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2003. Français. NNT : . tel-00003913

**HAL Id: tel-00003913**

**<https://theses.hal.science/tel-00003913>**

Submitted on 5 Dec 2003

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

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





# THÈSE

présentée à

l'université Bordeaux I

École doctorale des sciences chimiques

par Jean-Baptiste SALMON

pour obtenir le grade de

Docteur

Spécialité : physico-chimie de la matière condensée

---

## Écoulement d'une phase lamellaire lyotrope : rhéochaos, systèmes dynamiques et vélocimétrie locale

---

Soutenue le 16 septembre 2003

Après avis de :

M. Armand AJDARI Rapporteur

M. Grégoire PORTE Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

M. Armand AJDARI Rapporteur

M. Philippe BAROIS Président

Mme. Annie COLIN

M. Pierre FABRIE

M. Grégoire PORTE Rapporteur

M. Didier ROUX

Invités :

M. Patrice LE GAL

M. François LEQUEUX



# Remerciements

Je voudrais en tout premier lieu remercier trois personnes sans qui je n'aurais pas pu écrire les pages qui suivent... Didier Roux, pour avoir encadré et dirigé cette thèse, mais aussi pour m'avoir épaulé dans les moments difficiles. Annie Colin, pour son enthousiasme, sa spontanéité et sa légendaire disponibilité et aussi pour m'avoir aidé et supporté quotidiennement au cours de ces trois longues années. Sébastien Manneville enfin, qui en arrivant au CRPP, a commencé aussi à étudier les écoulements de ces *étranges* fluides. Je le remercie pour m'avoir autant appris, mais aussi surtout pour une sincère amitié. Merci donc encore à tous les trois, merci pour votre confiance et pour avoir accepté ma naïveté. J'espère en ces quelques lignes pouvoir vous témoigner toute mon amitié.

Je voudrais aussi remercier les rapporteurs de cette thèse, MM. Armand Ajdari et Grégoire Porte, pour avoir pris de leur précieux temps pour critiquer et commenter les chapitres qui suivent. Merci aussi aux membres du jury, MM. Philippe Barois, Pierre Fabrie, Patrice Le Gal et François Lequeux, pour m'avoir honoré de leur présence.

Merci aussi à l'ensemble des personnes qui ont permis la réalisation scientifique de cette thèse. Bernard Pouligny pour son aide quotidienne, du *clamp* à l'optique gaussienne... Ma *colloc* de bureau Lydiane Bécu, pour notre travail sur les émulsions et surtout pour de très bons moments. François Molino pour son introduction au *monde* des micelles géantes, Pascal Panizza et Laurent Courbin pour de passionnantes discussions, Anne-Sophie Wunenburger pour avoir passé le relais lors de mon arrivée... Merci aussi à Peter Olmsted, Guillemette Picard et Cyprien Gay pour avoir comblé mon ignorance théorique. Merci aussi à Alain Arnéodo pour avoir encadré une partie de cette thèse et pour m'avoir enseigné quelques rudiments de systèmes dynamiques. Merci aussi à Philippe Richetti pour avoir relu et critiqué le chapitre concernant ces développements théoriques. Par ailleurs, le travail présenté par la suite n'aurait jamais pu être réalisé sans l'aide apportée par l'*atelier mécanique* et la *cellule instrumentation*. Un grand merci donc à Philippe Barboteau, Roland Bernon, Jean-Yves Juanico, Yvonnick Sorin et Jacky Vergès.

Enfin, merci à beaucoup d'autres personnes pour ces trois années passées à Bordeaux,

certains désormais sont de très bons amis et j'espère que cela durera. Merci donc à Marie et Catherine (*pasty girls*), Christophe.fig et François.pstex, Lydie la fromagère, Cédric, Jean et Laurent (la *wavelet team*), Bruno dit le Calabrais (merci encore pour ton amitié), Jean-Christophe, Emma, Laura et Mark pour les fléchettes, sfa-boy Carlos, sire Frédéric, Damien, Pascale et le hasard des rencontres de couloir, la militante Sylwia, David le clubber, Vincent pour les raquettes, Régis le glénan, la Leffe et le Nautilus, sire Alexandre, Patrick le rouge, M. Selecta, Laure White-Benon, le chocolat du vendredi, Maryse, Béatrice, miss Chantal... Pour finir, merci aussi à ma famille et mes amis pour tellement d'autres choses.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>11</b>
<b>1 Les fluides complexes :</b>	
<b>des comportements non-newtoniens au « rhéochaos »</b>	<b>13</b>
1.1 La complexité rhéologique . . . . .	13
1.1.1 Couplage structure-écoulement . . . . .	13
1.1.2 Un soupçon d'hydrodynamique . . . . .	19
1.1.3 La rhéologie des fluides complexes . . . . .	25
1.1.4 Des instabilités temporelles au « rhéochaos » . . . . .	29
1.2 Le « rhéochaos » expérimental . . . . .	32
1.2.1 Fluctuations de viscosité dans les micelles géantes . . . . .	32
1.2.2 Oscillations de relaxation dans les phases de membranes . . . . .	35
1.2.3 Oscillations diverses en rhéologie . . . . .	43
1.3 Les approches théoriques du « rhéochaos » . . . . .	46
1.3.1 Les polymères cristaux liquides . . . . .	46
1.3.2 Les matériaux mous vitreux . . . . .	46
1.3.3 D'autres modèles théoriques? . . . . .	49
<b>2 Comportements dynamiques au voisinage d'une transition induite</b>	
<b>par le cisaillement : approche globale du rhéochaos</b>	<b>51</b>
2.1 Le système et les outils expérimentaux . . . . .	52
2.1.1 La phase lamellaire lyotrope SDS/Octanol/Eau/NaCl . . . . .	52
2.1.2 Dispositif expérimental : couplage structure-écoulement . . . . .	53
2.1.3 La transition de feuilletage . . . . .	55
2.2 Comportements dynamiques et couplage structure-écoulement . . . . .	59
2.2.1 Protocole I : $\delta\sigma = 0.5$ Pa, $\delta t = 7200$ s, entrefer $e = 1$ mm . . . . .	60
2.2.2 Protocole II : $\delta\sigma \simeq 0.1$ Pa, $\delta t \simeq 15000$ s, entrefer $e = 1$ mm . . . . .	63



2.2.3	Couplage structure-écoulement et instabilité macroscopique . . . . .	66
2.3	Notions de théorie des systèmes dynamiques . . . . .	70
2.3.1	Systèmes dynamiques déterministes . . . . .	71
2.3.2	Systèmes dynamiques dissipatifs . . . . .	72
2.3.3	Bifurcations et formes normales . . . . .	72
2.3.4	Comportements chaotiques . . . . .	77
2.3.5	Comment caractériser un comportement chaotique ? . . . . .	78
2.4	Application de la théorie des systèmes dynamiques au rhéochaos . . . . .	86
2.4.1	Pourquoi s'attend-on à une dynamique riche ? . . . . .	87
2.4.2	Transition vers la complexité temporelle dans les expériences . . . . .	88
2.4.3	Utilisation des outils topologiques . . . . .	90
2.4.4	Quelques hypothèses sur la nature des dynamiques observées . . . . .	92
2.4.5	Une dynamique spatio-temporelle ? . . . . .	96
<b>3</b>	<b>Diffusion dynamique hétérodyne :</b>	
	<b>un outil de vélocimétrie locale en géométrie de Couette</b>	<b>105</b>
3.1	Quelques généralités . . . . .	105
3.1.1	Pourquoi des mesures locales ? . . . . .	105
3.1.2	Contraintes expérimentales . . . . .	107
3.1.3	NMR et DLS : deux techniques de mesures locales . . . . .	108
3.2	Éléments théoriques de diffusion de la lumière dans un écoulement de cisaillement . . . . .	110
3.2.1	Diffusion dynamique homodyne et hétérodyne . . . . .	110
3.2.2	Un modèle simple pour $g^{(1)}(\tau)$ dans un écoulement de cisaillement . . . . .	112
3.3	Diffusion dynamique de la lumière sous écoulement de Couette . . . . .	116
3.3.1	Montage expérimental . . . . .	116
3.3.2	Cellule de Couette et effets de réfraction . . . . .	118
3.3.3	Caractéristiques géométriques du volume diffusant et solutions numériques des fonctions de corrélation . . . . .	119
3.3.4	Expériences préliminaires à l'aide d'un fluide newtonien . . . . .	121
3.3.5	Calibration du montage et mesure absolue du profil de vitesse . . . . .	125
<b>4</b>	<b>La rhéologie locale à travers deux exemples : émulsion concentrée et micelles géantes</b>	<b>131</b>
4.1	Le cas d'une émulsion concentrée . . . . .	132
4.1.1	Quelques généralités . . . . .	132

4.1.2	Mesure de profils de vitesse à cisaillement imposé . . . . .	133
4.1.3	Analyse des mesures locales . . . . .	135
4.1.4	Quel comportement rhéologique local? . . . . .	141
4.1.5	Discussions et perspectives . . . . .	146
4.2	Le cas d'une solution semi-diluée de micelles géantes . . . . .	146
4.2.1	Quelques généralités sur les micelles géantes . . . . .	147
4.2.2	Expériences sur le système CPCl/NaSal/Eau salée . . . . .	152
4.2.3	Un modèle pour le passage « global–local » . . . . .	157
4.2.4	Discussions et perspectives . . . . .	163
<b>5</b>	<b>Étude locale de la transition de feuilletage : vers une approche locale du</b>	
	<b>rhéochaos</b>	<b>167</b>
5.1	Étude locale des états stationnaires . . . . .	168
5.1.1	Rhéologie et vélocimétrie à $T = 26^{\circ}\text{C}$ et à cisaillement imposé . . .	169
5.1.2	Rhéologie et vélocimétrie à $T = 30^{\circ}\text{C}$ et à cisaillement imposé . . .	173
5.1.3	Un scénario de « shear-banding » lors de la transition de feuilletage	175
5.1.4	Les oignons glissent . . . . .	177
5.1.5	Corrections liées au glissement et passage « global–local » . . . . .	185
5.1.6	Validation du modèle à $T = 26^{\circ}\text{C}$ et à contrainte imposée . . . . .	194
5.2	Étude des fluctuations de la vitesse locale . . . . .	197
5.2.1	Localisation de l'amplitude des fluctuations . . . . .	198
5.2.2	Analyse locale des fluctuations de vitesse . . . . .	200
5.2.3	Fluctuations structurelles . . . . .	206
5.2.4	Quelques images « instantanées » de l'écoulement . . . . .	207
5.2.5	Une approche mécanique de ces fluctuations . . . . .	210
5.2.6	Limites du modèle mécanique : une signature du rhéochaos? . . . . .	218
5.3	Approche spatio-temporelle du rhéochaos . . . . .	219
5.3.1	Difficultés expérimentales . . . . .	220
5.3.2	Une dynamique des films de lubrification? . . . . .	222
5.3.3	Une dynamique spatio-temporelle des bandes? . . . . .	223
	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>229</b>
	<b>A Photographies des différents montages</b>	<b>233</b>
	<b>B Calcul des effets de réfraction en géométrie de Couette</b>	<b>237</b>

**C Justification du passage « global–local » pour un écoulement homogène 241**

# Introduction

Depuis plus d'une quarantaine d'années, il est clairement établi que de nombreux systèmes hors d'équilibre peuvent présenter des phénomènes non-stationnaires. Ces systèmes proviennent de domaines aussi divers et éloignés que la chimie, l'économie ou encore la météorologie. Dans le cas de la chimie par exemple et plus particulièrement dans le cas de la réaction de Belousov-Zhabotinskii, les concentrations des réactifs peuvent *osciller* dans le temps alors que tous les paramètres de l'expérience sont maintenus constants [150]. De nombreux efforts théoriques ont été fournis pour appréhender de tels phénomènes : il est désormais clair que ces dynamiques proviennent de la présence de non-linéarités et que les phénomènes temporels observés possèdent un fort degré d'*universalité* dont une unique théorie peut rendre compte : la théorie des systèmes dynamiques [19, 96].

Par ailleurs, la *rhéologie*, étymologiquement « la science de l'écoulement », étudie les mécanismes fondamentaux qui relient les *déformations* et les *contraintes* mécaniques dans les matériaux. Les fluides complexes quant à eux, sont des matériaux qui possèdent une structure interne dont la taille est comprise entre l'échelle moléculaire et l'échelle macroscopique. Cette architecture supramoléculaire peut se coupler à l'écoulement de cisaillement simple et être ainsi modifiée sous écoulement [85]. Dans une expérience classique de rhéologie, le fluide étudié est déplacé hors de son état d'équilibre grâce à des contraintes mécaniques externes qui le forcent à s'écouler. À l'aide de ces expériences, on peut alors espérer comprendre les mécanismes qui couplent la structure de ces matériaux à leur écoulement et conduisent à des réponses non-linéaires.

D'un point de vue fondamental, il est légitime de penser que de telles expériences peuvent aussi mener à des phénomènes non-stationnaires car le matériau étudié est maintenu loin de son état d'équilibre. Récemment, différentes équipes ont mis en évidence de telles dynamiques dans des écoulements de fluides complexes particuliers [13, 81, 155]. En effet, certains fluides présentent parfois des « oscillations auto-entretenues » lorsqu'ils sont soumis à un écoulement : le cisaillement (respectivement la contrainte) oscille dans le temps alors que la contrainte (respectivement le cisaillement) est maintenue constante. L'origine

de cette nouvelle complexité, nommée « rhéochaos » [35], n'est pas clairement identifiée. Il est cependant évident que les outils développés en physique non-linéaire pour appréhender les phénomènes non-stationnaires peuvent constituer un guide pour l'étude du rhéochaos.

Le travail de thèse présenté ici constitue une approche expérimentale de ces phénomènes dans un fluide complexe particulier : la texture « ognon » d'une phase lamellaire lyotrope<sup>1</sup>. Un des avantages majeurs de ce système est que nous pouvons bénéficier des nombreux acquis expérimentaux accumulés lors des précédents travaux [51, 83, 89, 142]. Tout au long du manuscrit, nous essaierons de montrer, en nous appuyant sur les outils de la théorie des systèmes dynamiques, que les phénomènes non-stationnaires observés résultent avant tout d'une complexité spatio-temporelle de l'écoulement. Nous apporterons aussi la preuve que la richesse dynamique de ce système résulte de la présence d'un couplage fort entre la structure du fluide et l'écoulement.

La thèse est organisée de la façon suivante :

- Dans une première partie, après avoir introduit le concept fondamental de couplage « structure-écoulement », nous ferons une brève revue expérimentale et théorique des phénomènes non-stationnaires précédemment observés en rhéologie.

- Dans le second chapitre, nous présenterons une étude expérimentale de la diversité d'oscillations observées lors de l'écoulement de la texture ognon. Pour interpréter ces oscillations à l'aide des outils de la théorie des systèmes dynamiques, nous ferons l'hypothèse que ces phénomènes résultent d'une structuration spatio-temporelle de l'écoulement.

- Pour vérifier cette hypothèse, le chapitre 3 sera dédié à la mise en place d'une technique de vélocimétrie locale. Ce chapitre instrumental permettra alors de définir la résolution et les limites du montage développé.

- Avant d'aborder localement l'écoulement de la texture ognon, nous étudierons deux fluides complexes particuliers : une émulsion concentrée et une solution de micelles géantes. Ce quatrième chapitre montrera alors que la technique de vélocimétrie locale est un outil permettant de résoudre la structuration spatiale de l'écoulement de ces fluides.

- Enfin, le dernier chapitre concernera l'étude locale de l'écoulement de la texture ognon. Nous montrerons alors que la richesse temporelle observée correspondait en réalité à une mesure *intégrée* d'une complexité spatio-temporelle. Pour modéliser ces comportements, nous verrons alors qu'une approche purement mécanique ne peut rendre complètement compte des phénomènes observés.

---

<sup>1</sup> Ognon ne prendra jamais de « i » dans la suite de ce manuscrit. Cette bizarrerie, conforme aux nouvelles règles du conseil supérieur de la langue française, respectera ainsi l'orthographe utilisée lors des précédentes thèses...

# Chapitre 1

## Les fluides complexes : des comportements non-newtoniens au « rhéochaos »

### 1.1 La complexité rhéologique

#### 1.1.1 Couplage structure-écoulement

Le dentifrice, la mousse à raser ou encore le gel douche, sont autant de fluides complexes que l'on peut trouver dans une salle de bains. La liste ne s'arrête pas là : chantilly, ketchup, lave, neige et boue font aussi partie de cette grande classe de fluides. Leur seul point commun : ils ne s'écoulent pas « normalement »... Ne pas s'écouler normalement, est à prendre au sens de « ne pas s'écouler comme les liquides simples » tels que l'eau ou l'huile. La mousse à raser par exemple, ne s'écoule pas sous son propre poids mais s'étale lorsqu'une déformation suffisante lui est appliquée ; le gel douche quant à lui, coule facilement sous l'action de la gravité mais redevient fortement visqueux lorsqu'il tombe au creux de la main. Pour les liquides simples, appelés aussi *newtoniens*, il n'existe aucun couplage entre leur structure interne et leur écoulement. Dans le cas de l'eau par exemple, l'écoulement ne modifie pas l'organisation moléculaire. Pour décrire les comportements de ces fluides, il existe une théorie unifiée, l'hydrodynamique, basée sur une description mécanique des milieux continus. Cette théorie, au travers de son équation maîtresse, l'équation de *Navier-Stokes*, permet de prédire les comportements des fluides simples grâce à deux paramètres caractérisant entièrement leur nature. Il s'agit de la viscosité  $\eta$ , caractéristique du processus de diffusion de la quantité de mouvement, et de la densité  $\rho$ . « Liquide simple » ne

signifie pas pour autant « écoulement simple » car la complexité peut aussi provenir de l'inertie (instabilités hydrodynamiques et *turbulence*) ou encore de problèmes liés aux interfaces libres. « Simple » signifie seulement que la structure du matériau se modifie très faiblement sous écoulement et que seuls quelques paramètres suffisent à décrire l'ensemble des propriétés dynamiques. Dans ce cas, une description mécanique de l'écoulement est justifiée.

Dans le cas des fluides complexes de nouvelles questions surgissent. Tous ces matériaux sont en effet caractérisés par une structure interne qui modifie leurs propriétés mécaniques. Dans le cas d'un tas de sable par exemple, c'est la taille du grain qui est en jeu (de quelques microns à quelques millimètres), alors que dans le cas d'une solution de polymères, c'est le rayon de giration qui est pertinent (d'une centaine de nanomètres à plusieurs microns). Pour ces matériaux, la présence d'une architecture supramoléculaire influence les propriétés de déformations en réponse aux contraintes mécaniques imposées. Pour caractériser quantitativement ces comportements, il existe un outil : la rhéologie. L'objectif de la rhéologie est de mesurer et d'interpréter les relations entre contraintes et déformations mécaniques dans les matériaux. Une expérience classique de rhéologie consiste à confiner le matériau à étudier entre deux plaques et à appliquer une force tangentielle sur une des plaques afin de le déformer (cf. fig. 1.1). On définit alors la contrainte comme la force appliquée normalisée

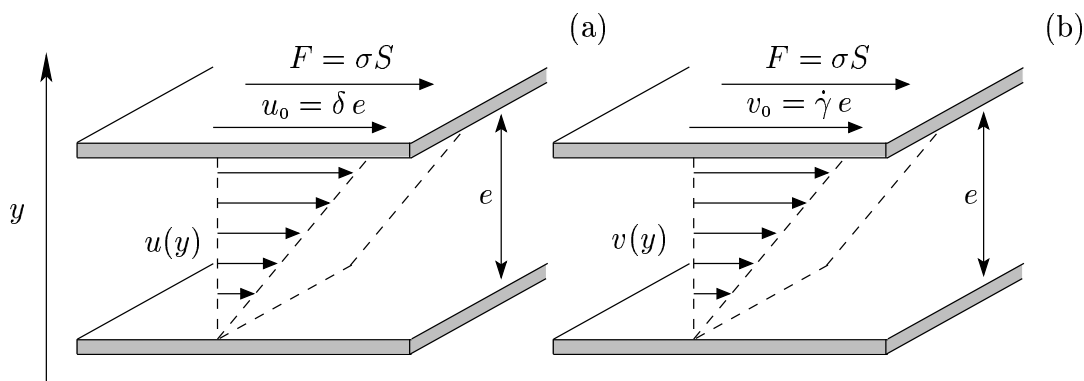


FIG. 1.1 – Expérience classique de rhéologie : le matériau est confiné entre deux plaques distantes de  $e$ . Une contrainte  $\sigma = F/S$  est appliquée à une des plaques.  $S$  est la surface de la plaque mobile et  $F$  la force tangentielle appliquée. (a) Dans le cas d'un solide parfait, le matériau se déforme linéairement. Les flèches représentent le champ de déformation  $u(y) = \delta y$  au sein du matériau. La plaque mobile s'est déplacée de la quantité  $u_0 = \delta e$ . (b) Dans le cas d'un liquide simple, le fluide s'écoule avec un taux de déformation constant  $\dot{\gamma}$ . Les flèches représentent le champ de vitesse  $v(y) = \dot{\gamma} y$  au sein du fluide. La plaque mobile possède alors une vitesse  $v_0 = \dot{\gamma} e$ .

par la surface de la plaque mobile. Il existe deux cas limites simples : le solide et le liquide, les fluides complexes présentant quant à eux, des comportements intermédiaires. Dans le cas d'un solide, la contrainte appliquée va induire une déformation constante  $\delta$  au sein du matériau : c'est une réponse *élastique* (cf. fig. 1.1.a). Pour le liquide, la moindre contrainte appliquée va continuellement déformer le matériau à un taux de déformation constant  $\dot{\gamma}$  : c'est une réponse *visqueuse* et  $\dot{\gamma}$  est appelé le « taux de cisaillement » (cf. fig. 1.1.b). Soulignons dès à présent que la notion de cisaillement permet d'introduire naturellement le temps  $\tau = 1/\dot{\gamma}$ , caractéristique de la déformation au sein de l'écoulement.

On distingue deux grandes classes d'expériences de rhéologie : la rhéologie linéaire et la rhéologie non-linéaire. Lorsque la perturbation mécanique appliquée est suffisamment faible, la contrainte appliquée est proportionnelle à la déformation  $\delta$  dans le cas du solide ou au taux de déformation  $\dot{\gamma}$  dans le cas du liquide : c'est la rhéologie linéaire. Cette dernière teste la réponse linéaire du matériau aux perturbations mécaniques externes. Les coefficients de proportionnalité correspondent aux paramètres élastiques (module élastique  $G$ ) ou visqueux (viscosité  $\eta$ ) du matériau. Dans le cas de grandes déformations, la structure du matériau peut se modifier. Il n'existe alors plus de simples relations de proportionnalité : c'est la rhéologie non-linéaire. Afin d'illustrer l'effet de la structure des fluides complexes sur les propriétés rhéologiques tant dans le domaine linéaire que non-linéaire, prenons quelques exemples simples : une mousse, une solution de polymères semi-diluée et des mélanges de savon et d'eau. Ces exemples simples permettront d'illustrer les notions importantes de régimes linéaire et non-linéaire et d'introduire les concepts de viscoélasticité, de contrainte seuil ou encore de couplage structure-cisaillement.

Une mousse, comme représenté sur la figure 1.2.a, est une assemblée désordonnée de cellules d'air séparées par des films d'eau stabilisés par du savon. Si une déformation globale suffisamment faible est imposée à ce matériau (cf. fig. 1.2.b), les films se déforment localement. Ceci augmente l'énergie de la mousse : elle réagit alors de manière élastique. La mousse se comporte donc comme un solide dans le domaine linéaire. Au-delà d'une certaine déformation critique, un réarrangement des bulles d'air peut se produire et relaxer ainsi les contraintes stockées dans les films (cf. fig. 1.2.c), c'est le régime non-linéaire. Si l'ensemble de ces réarrangements forme une ligne continue au sein de la mousse, cette dernière s'écoule. La mousse se comporte donc comme un liquide. Ces matériaux sont qualifiés de *fluides à seuil* : si les déformations imposées sont inférieures à un certain seuil, ils se comportent comme des solides, au-delà des réarrangement dits *plastiques* se produisent et le matériau coule comme un liquide [76].

Considérons maintenant l'exemple d'une solution semi-diluée de polymères. Un polymère est une longue chaîne moléculaire constituée d'un ensemble de maillons identiques. En



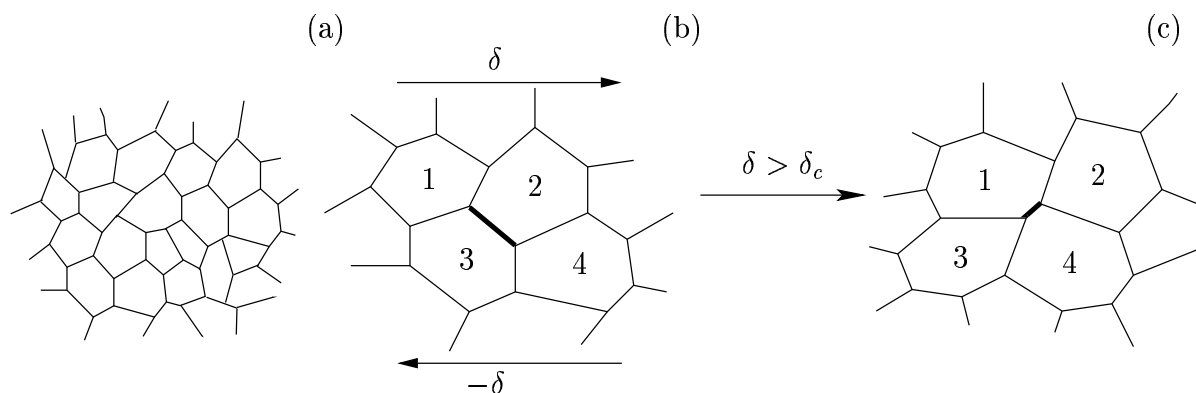


FIG. 1.2 – (a) Représentation bidimensionnelle d’une mousse désordonnée. (b) La mousse réagit de manière élastique aux petites déformations  $\delta$  imposées. (c) Aux grandes déformations ( $\delta > \delta_c$ ), des réarrangements plastiques se produisent : il y a annihilation et création d’un film (en gras sur les figures), relaxant les contraintes stockées.

solution, ces longues molécules adoptent une configuration de « pelote » afin de maximiser leur entropie. Au-delà d’une certaine concentration critique  $c^*$ , les pelotes s’interpénètrent et il y a formation d’un réseau de polymères enchevêtrés : on a alors une solution *semi-diluée*. Une déformation instantanée appliquée à un tel matériau étire les polymères. Si la déformation est suffisamment faible, c’est la réponse linéaire qui est mesurée : aux temps courts les polymères se déforment légèrement et réagissent de manière élastique car leur nombre de conformations accessibles diminue (c’est l’élasticité « entropique »). Aux temps longs, les polymères diffusent le long de leur contour et relaxent les contraintes stockées (c’est le mouvement de « reptation » [47]) : la solution s’est ainsi écoulee. On qualifie ces matériaux de *viscoélastiques*, *i.e.* élastiques aux temps courts (hautes fréquences) et visqueux aux temps longs (basses fréquences). Par ailleurs pour de grandes déformations, lorsque la solution de polymères s’écoule, les chaînes s’orientent le long de la direction de l’écoulement. On comprend alors de manière intuitive que la viscosité du matériau diminue. C’est un comportement non-linéaire *rhéofluidifiant*, plus le fluide s’écoule vite, moins il est visqueux.

Considérons enfin quelques exemples de mélanges de savon et d’eau. Ces derniers, encore appelés systèmes lyotropes, sont obtenus par dissolution de molécules de savon dans de l’eau. Les molécules de savon plus couramment appelées « tensioactifs », possèdent une dualité chimique : elles sont composées d’une tête hydrophile et d’une longue chaîne aliphatique hydrophobe. En solution ces molécules ont la propriété de s’auto-assembler, créant

ainsi diverses structures à l'échelle nanométrique. On trouve notamment de longs agrégats unidimensionnels appelés « micelles géantes » ou encore des membranes de tensioactifs (cf. fig. 1.3). Les micelles géantes sont aussi appelées « polymères vivants » car leur distribution

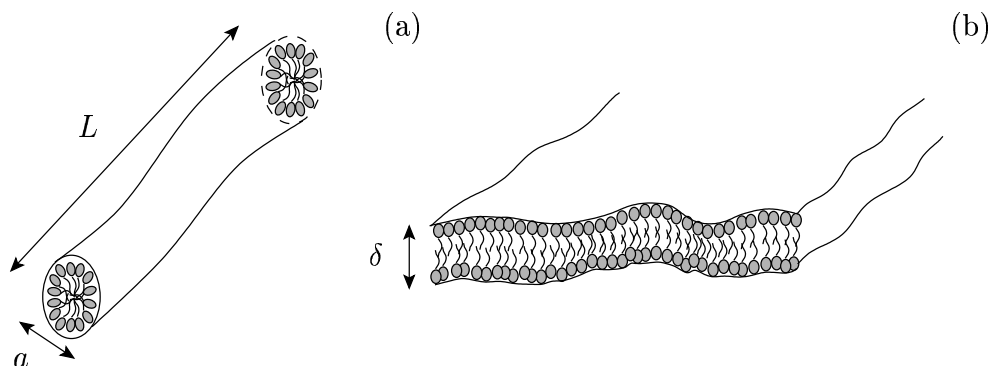


FIG. 1.3 – (a) Micelle géante. Le diamètre  $a$  de cette dernière est de quelques nanomètres, sa longueur  $L$ , fixée par l'équilibre thermodynamique, peut atteindre quelques microns. (b) Bicouche de tensioactif, encore appelée membrane liquide, l'épaisseur  $\delta$  est de quelques nanomètres.

de taille n'est pas fixée pas une réaction chimique mais par l'équilibre thermodynamique. En solution, les micelles géantes ont la propriété dynamique de se « casser » et de se « recombinaison » sous l'action de l'agitation thermique. Au-delà d'une certaine concentration  $c^*$ , les micelles sont enchevêtrées et présentent comme les solutions diluées de polymères, des comportements viscoélastiques et rhéofluidifiants [33, 36, 146]. Ces solutions sont à la base de la plupart des gels douche. Le gel est fortement viscoélastique lorsqu'il est soumis à de faibles déformations, mais coule facilement sous l'action de grandes contraintes (rhéofluidification). Par ailleurs, les propriétés nettoyantes requises sont dues aux molécules de savon formant les micelles géantes.

Suivant le type de tensioactifs et de solvants utilisés, des phases de membranes peuvent aussi exister. À cause des diverses interactions entre ces dernières, différentes structures sont observées. La phase lamellaire (notée  $L_\alpha$ ) est un cas particulier de ces systèmes. Elle est composée d'une succession périodique de bicouches de tensioactifs, formant ainsi un cristal liquide de symétrie smectique A (ordre liquide dans le plan des bicouches, ordre solide orthogonalement à ces dernières, cf. fig. 1.4.a). La structure d'une phase lamellaire est dominée à l'échelle du micron par des défauts caractéristiques (stries huileuses, disclinaisons...). L'organisation de ces défauts est appelée la *texture* de la phase lamellaire lyotrope. La phase éponge (appelée aussi  $L_3$ ) correspond quant à elle, à des membranes aléatoirement connectées, séparant l'espace en deux sous-volumes équivalents comme re-

présenté sur la figure 1.4.b [120, 132]. Grâce aux interactions à longue portée entre les

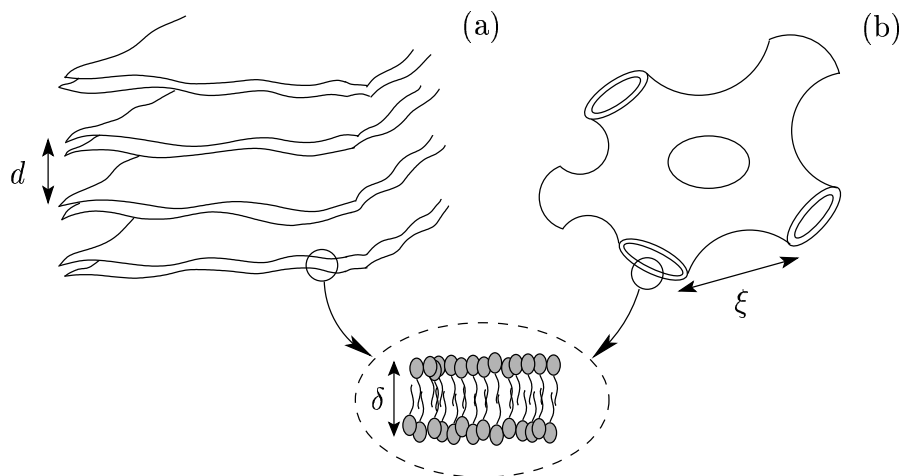


FIG. 1.4 – (a) Phase lamellaire  $L_\alpha$  et (b) phase éponge  $L_3$ . Ces deux structures sont deux organisations différentes d’une membrane de tensioactifs : (a) un cristal liquide de symétrie smectique A ou (b) une structure aléatoire continue. L’épaisseur de la membrane  $\delta$  est de quelques nanomètres,  $\xi$  la distance moyenne entre les pores dans le cas de la phase  $L_3$  et  $d$  le pas smectique de la phase  $L_\alpha$ , varie typiquement d’une dizaine à une centaine de nanomètres.

membranes, il est possible de former ces phases très visqueuses en minimisant la quantité de tensioactifs utilisés. C’est pour cette raison que les phases de membranes sont à la base de la formulation de nombreux shampoings et produits cosmétiques.

La phase éponge se comporte comme un liquide car elle correspond à une organisation isotrope de membranes qui se réarrangent sur des échelles de temps de l’ordre de  $\tau = 10^{-3}$  s. Lorsque la contrainte appliquée est telle que le cisaillement  $\dot{\gamma}$  atteint  $1/\tau \simeq 1000$  s $^{-1}$ , la dynamique des membranes est affectée. Il y a alors un couplage fort entre la structure de la phase et le cisaillement : les bicouches se réorganisent en phase lamellaire orientée afin de faciliter l’écoulement [37, 119]. Le cas de la phase lamellaire est très différent. Cette dernière possède en effet un ordre à longue portée lui conférant un caractère cristallin dans la direction orthogonale aux membranes. De faibles contraintes appliquées permettent alors de mesurer les propriétés élastiques de la texture de la phase. Hors du domaine linéaire, des réarrangements de texture des membranes se produisent. En effet, le moindre cisaillement permet de modifier la texture de cette phase ordonnée et de nouvelles organisations apparaissent [52, 53]. Nous y reviendrons tout au long de ce manuscrit, car ce sont les principaux phénomènes étudiés au cours de cette thèse.

Grâce à ces exemples simples, il apparaît clairement que la présence d’une architec-

ture interne (bulles d'air, polymères, membranes de tensioactifs) modifie profondément les propriétés rhéologiques du matériau. Dans ce manuscrit nous nous sommes principalement intéressés aux propriétés sous écoulement de cisaillement : on parle alors de comportements *non-newtoniens* en opposition à ceux observés avec les liquides simples. Pour caractériser quantitativement ces phénomènes, il convient de détailler quelques notions fondamentales. Nous aborderons brièvement dans un premier temps l'hydrodynamique des fluides simples avant de présenter quelques types de comportements non-linéaires des fluides complexes. Enfin pour clore ce chapitre, nous ferons une brève revue des travaux expérimentaux et théoriques concernant le principal comportement non-newtonien étudié dans cette thèse : le « rhéochaos ».

### 1.1.2 Un soupçon d'hydrodynamique

#### L'équation de Navier-Stokes

Considérons un matériau délimité par un ensemble de surfaces orientées. On peut alors définir le tenseur des contraintes  $\overline{\Sigma}$ , à partir de l'ensemble des forces appliquées à cet élément. La composante  $\Sigma_{ij}$  correspond à la composante  $i$  de la force appliquée sur la surface dont la normale est dirigée suivant  $j$ , normalisée par l'aire  $dS$  de cette dernière. L'unité de la contrainte est donc le Pascal ( $1 \text{ Pa} = 1 \text{ N.m}^{-2}$ ). On peut montrer de manière générale, grâce à la conservation du moment cinétique que [73] :

$$\Sigma_{ij} = \Sigma_{ji}. \quad (1.1)$$

Il est alors commode d'écrire le tenseur des contraintes sous la forme générale :

$$\Sigma_{ij} = -p \delta_{ij} + \sigma_{ij}, \quad (1.2)$$

le terme  $p \delta_{ij}$  traduit les forces isotropes de pression  $p$  appliquées à l'élément de fluide et  $p = \text{Tr} \overline{\Sigma} / 3$  ( $\delta_{ij}$  est le tenseur de Kronecker, *i.e.*  $\delta_{ij} = 0$  si  $i \neq j$ ,  $\delta_{ij} = 1$  sinon).  $\overline{\sigma}$  est le tenseur des contraintes anisotropes (*i.e.* de trace nulle). On peut montrer que le principe fondamental de la dynamique s'écrit pour cet élément de fluide [73] :

$$\rho D_t \mathbf{v} = \mathbf{f} - \nabla p + \nabla \cdot \overline{\sigma}, \quad (1.3)$$

où  $\rho$  est la densité du fluide,  $\mathbf{f}$  un champ de forces volumiques (*e.g.* le champ de pesanteur) et  $D_t$  la dérivée particulaire traduisant la convection et s'exprimant sous la forme :

$$D_t = \partial_t + \mathbf{v} \cdot \nabla, \quad (1.4)$$

c'est la description dite *eulérienne* de l'hydrodynamique. La connaissance de l'ensemble des contraintes appliquées, du champ de pression, des conditions aux limites et des conditions initiales suffit alors pour connaître l'évolution de la vitesse de chaque élément du fluide<sup>1</sup>.

Il faut désormais un modèle permettant de connaître les composantes du tenseur des contraintes. À partir des principes de la thermodynamique des processus irréversibles, on peut montrer dans le régime linéaire, que :

$$\overline{\overline{\sigma}} = \overline{\overline{\eta}} \nabla \mathbf{v}, \quad (1.5)$$

où  $\overline{\overline{\eta}}$  est le tenseur des viscosités du fluide (d'ordre 4)<sup>2</sup>. Ce résultat est lié aux processus de diffusion de la quantité de mouvement dans les fluides,  $\overline{\overline{\eta}}$  est le tenseur des « coefficients de transport » entre « flux » (contrainte  $\overline{\overline{\sigma}}$ ) et « forces généralisées » (tenseur des taux de déformations  $\nabla \mathbf{v}$ )<sup>3</sup>. C'est le modèle *newtonien* du fluide. Avec ce modèle et dans le cas isotrope ( $\overline{\overline{\eta}}$  se réduit alors à une seule quantité scalaire, notée  $\eta$ ), la relation dynamique (1.3) devient :

$$\rho D_t \mathbf{v} = \mathbf{f} - \nabla p + \eta \Delta \mathbf{v}, \quad (1.6)$$

c'est l'équation de Navier-Stokes des fluides simples incompressibles [73]. Il n'existe pas a priori de solutions simples à cette équation et ceci à cause de la non-linéarité  $(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}$  traduisant la convection de la quantité de mouvement au sein du fluide. On appelle écoulement *laminaire*, un écoulement pour lequel ce terme est négligeable. Il existe alors une solution analytique pour les géométries les plus simples. Pour caractériser l'importance du terme convectif  $(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}$ , on introduit le nombre de Reynolds  $Re$  défini par :

$$Re = \frac{\rho v L}{\eta} = \frac{\tau_d}{\tau_c}. \quad (1.7)$$

Ce nombre sans dimension est le rapport entre les temps caractéristiques de transport par diffusion  $\tau_d = \rho L^2 / \eta$  et par convection  $\tau_c = L / v$  de la quantité de mouvement sur la distance  $L$  ( $L$  étant une longueur caractéristique de la géométrie de l'écoulement). Les

---

<sup>1</sup> Nous nous limitons ici aux écoulements incompressibles pour lesquels la dérivée particulaire de la densité  $\rho$  est nulle :  $D_t \rho = 0$ . Une telle approximation est justifiée tant que les vitesses caractéristiques de l'écoulement  $v$  sont petites par rapport à la vitesse du son  $c$ , *i.e.*  $v \ll c$ . La conservation de la masse entraîne alors que  $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$ .

<sup>2</sup> La relation (1.5) s'écrit pour les composantes des tenseurs :  $\sigma_{ij} = \eta_{ijkl} \partial_k v_l$ , avec sommation sur les indices répétés.

<sup>3</sup> La relation (1.5) est en ce sens équivalente, par exemple, à la relation de Fourier  $\mathbf{J} = -\kappa \nabla T$ , décrivant les processus de diffusion de la chaleur, ou encore à l'équation de Fick  $\mathbf{J} = -D \nabla c$ , décrivant la diffusion de quantité de matière.

écoulements sont laminaires si  $Re \ll 1$ , la non-linéarité  $\rho(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v}$  peut ainsi être négligée devant le terme diffusif  $\eta \Delta \mathbf{v}$ . À des nombres de Reynolds plus élevés, des instabilités hydrodynamiques peuvent se produire et mener à une complexité spatio-temporelle de l'écoulement. Détaillons désormais deux solutions de l'équation de Navier-Stokes dans des géométries simples et pour de faibles nombres de Reynolds.

## Quelques types d'écoulements d'un fluide newtonien

### L'écoulement de cisaillement simple

Dans cette géométrie simple, le fluide est confiné entre deux plaques infinies séparées d'une distance  $e$ . Une force tangentielle  $F$  est appliquée sur une des plaques, induisant une contrainte de cisaillement  $\sigma_{xy}$  au matériau (cf. fig. 1.5). Dans le régime d'écoulement

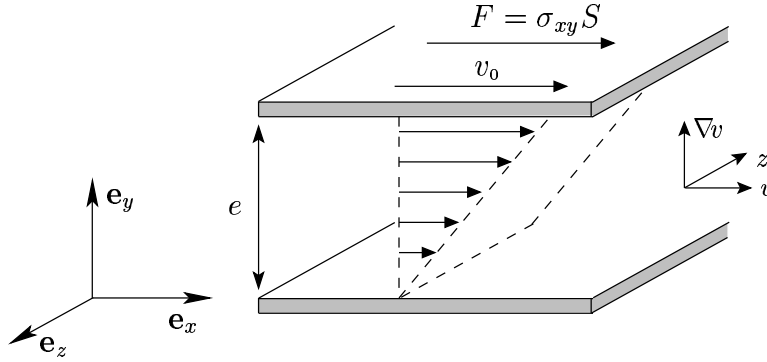


FIG. 1.5 – Écoulement de cisaillement simple entre deux plaques distantes de  $e$ .  $S$  est la surface,  $F$  la force appliquée et  $v_0$  la vitesse de la plaque supérieure. Le champ de pesanteur est dirigé suivant  $y$  et  $\mathbf{g} = -g \mathbf{e}_y$ .

stationnaire ( $\partial_t \mathbf{v} = 0$ ) et en l'absence de gradients de pression externes, l'équation de Navier-Stokes s'écrit :

$$\begin{cases} \eta \partial_y^2 v = 0, \\ \partial_y p = -\rho g, \end{cases} \quad (1.8)$$

car l'invariance par translation dans le plan  $(x, z)$  impose naturellement de chercher le champ de vitesse sous la forme suivante :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}) = v(y) \mathbf{e}_x. \quad (1.9)$$

Si le fluide ne glisse pas aux parois (conditions de non-glissement), le champ de vitesse s'écrit alors :

$$v(y) = \dot{\gamma} y = v_0 \frac{y}{e}, \quad (1.10)$$

où  $v_0$  est la vitesse la plaque supérieure et  $\dot{\gamma} \hat{=} \partial_y v(y)$  est le *taux de cisaillement*. Le profil de vitesse est linéaire, c'est l'écoulement de *cisaillement simple*. La contrainte est alors uniforme dans le fluide et la relation avec le cisaillement (cf. relation (1.5)) est triviale :

$$\sigma = \eta \dot{\gamma} = \eta v_0 \frac{y}{e}, \quad (1.11)$$

c'est la « loi de Newton ». La connaissance de la force appliquée à la plaque mobile et la mesure de la vitesse induite  $v_0$  et donc du cisaillement  $\dot{\gamma}$  permettent d'accéder à la viscosité du fluide. L'écoulement de cisaillement simple est particulièrement important en rhéologie car il permet de mesurer simplement la viscosité d'un fluide. En pratique cette simple géométrie est difficile à mettre en oeuvre car les plaques ont une taille finie, un cisaillement constant ne peut donc pas être maintenu indéfiniment au sein du fluide. Il existe deux autres géométries d'écoulement qui permettent de produire un cisaillement simple indéfiniment : il s'agit de la cellule « cône-plan » et la cellule de Couette. Nous détaillerons par la suite uniquement l'écoulement de Couette.

### L'écoulement de Couette

Ce dernier est généré par le mouvement de rotation d'un cylindre. La cellule de Couette est constituée de deux cylindres concentriques de rayons  $R_1$  et  $R_2$  (cf. fig. 1.6). Sur le cylindre intérieur, appelé *rotor* est appliqué un couple de rotation  $\Gamma$ . Le fluide est confiné entre le rotor et le cylindre extérieur fixe, appelé pour cette raison *stator*. Lorsque la condition  $e = (R_2 - R_1) \ll R_1$  est vérifiée, l'écoulement de Couette est proche de l'écoulement de cisaillement simple détaillé précédemment. L'invariance par symétrie de rotation et par translation suivant  $z$ , permet de chercher le champ de vitesse sous la forme suivante<sup>4</sup> :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}) = v(r) \mathbf{e}_\theta. \quad (1.12)$$

Dans le cas stationnaire, l'équation de Navier-Stokes s'écrit :

$$\rho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = \rho \mathbf{g} - \nabla p + \nabla \cdot \overline{\overline{\boldsymbol{\sigma}}}, \quad (1.13)$$

---

<sup>4</sup> On néglige ici les effets de bords : les cylindres sont considérés comme infiniment longs. De plus, la vitesse n'a pas de composante radiale, car l'écoulement est supposé incompressible *i.e.*  $\nabla \cdot \mathbf{v} = 0$ .

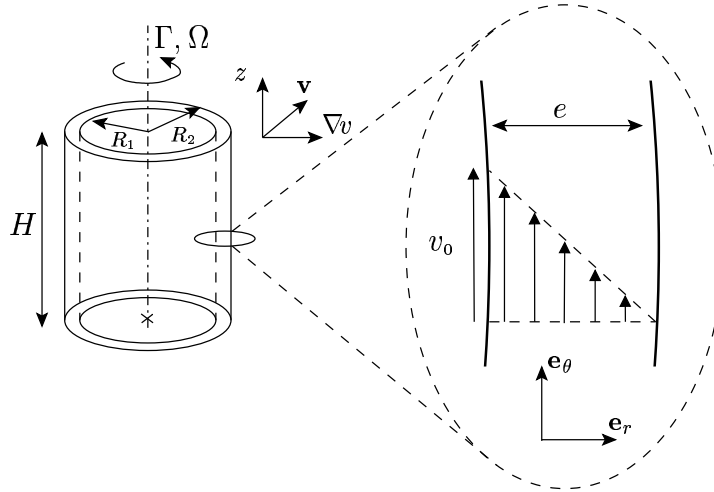


FIG. 1.6 – Écoulement de cisaillement de Couette généré entre deux cylindres de rayon  $R_1$  et  $R_2$ ,  $H$  est la hauteur de la cellule.  $\Gamma$  est le couple appliqué sur le cylindre intérieur et  $\Omega$  sa vitesse de rotation.  $\mathbf{v}$  est la direction de la vitesse,  $\nabla v$  la direction du gradient de vitesse et  $z$  celle de la vorticité. Le champ de pesanteur est dirigé selon l'axe  $z$  de la cellule de Couette.

et implique simplement que :

$$\begin{cases} \partial_r p = \frac{\rho v^2}{r}, \\ \partial_z p = -\rho g, \\ \sigma_{r\theta}(r) = \frac{\Gamma}{2\pi H r^2}. \end{cases} \quad (1.14)$$

La dernière relation peut s'écrire sous la forme :

$$\sigma_{r\theta}(r) = \sigma_1 \frac{R_1^2}{r^2}, \quad (1.15)$$

où  $\sigma_1 = \Gamma/(2\pi R_1^2 H)$  est la contrainte appliquée au rotor. En coordonnées cylindriques, la relation entre contrainte et taux de cisaillement local s'écrit :

$$\sigma_{r\theta}(r) = -\eta r \partial_r \left( \frac{v}{r} \right). \quad (1.16)$$

L'intégration de la relation (1.16) permet de remonter au profil de vitesse dans l'écoulement de Couette (dans le cas de la condition de non-glissement,  $v(R_2) = 0$ ) :

$$v(r) = \frac{\sigma_1 R_1^2}{2\eta R_2^2} r \left( \frac{R_2^2}{r^2} - 1 \right). \quad (1.17)$$



Notons dès à présent que la contrainte et le cisaillement dans l'écoulement de Couette ne sont pas strictement uniformes. Cependant, pour la géométrie la plus utilisée au cours de ce manuscrit ( $R_1 = 24$  et  $R_2 = 25$  mm), l'approximation linéaire :

$$v(r) = \frac{\sigma_1}{\eta} (R_2 - r) + \mathcal{O}\left(\frac{e}{R_1}\right), \quad (1.18)$$

donne une très bonne approximation comme on peut le remarquer sur la figure 1.7.a. Dans le cas de rapports d'aspect  $e/R_1$  plus grands, cette approximation n'est plus valide (cf. fig. 1.7.b). La connaissance du couple appliqué  $\Gamma$  et la mesure de la vitesse de rotation

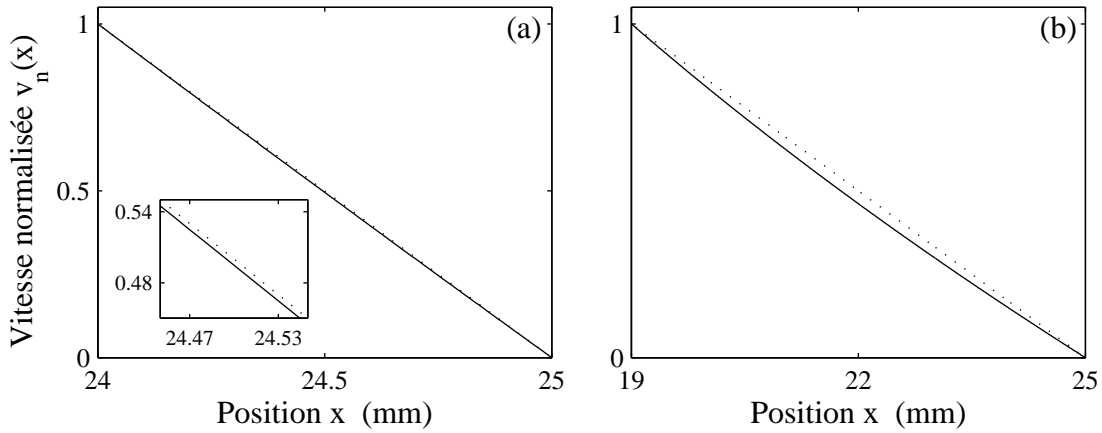


FIG. 1.7 – Vitesses normalisées dans l'écoulement de Couette (traits continus) pour deux géométries différentes. Les courbes pointillées représentent l'approximation linéaire donnée par l'équation 1.18. (a)  $R_1 = 24$ ,  $R_2 = 25$  mm. Insert : zoom mettant en évidence la légère différence avec le profil linéaire. (b)  $R_1 = 19$  et  $R_2 = 25$  mm, la vitesse est clairement différente de l'approximation linéaire.

du rotor  $\Omega \hat{=} v(R_1)/R_1$  permet ainsi de remonter à une mesure de la viscosité  $\eta$ . On peut définir la contrainte moyenne et le cisaillement moyen au sein de l'entrefer de la cellule de Couette par :

$$\begin{cases} \langle \sigma \rangle = \frac{1}{e} \int_{R_1}^{R_2} \sigma_{r\theta}(r) dr = \frac{R_1^2 + R_2^2}{4\pi H R_1^2 R_2^2} \Gamma + \mathcal{O}\left(\frac{e}{R_1}\right)^2, \\ \langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{1}{e} \int_{R_1}^{R_2} r \partial_r \left(\frac{v}{r}\right) dr = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Omega + \mathcal{O}\left(\frac{e}{R_1}\right)^2. \end{cases} \quad (1.19)$$

La contrainte  $\sigma$  et le cisaillement  $\dot{\gamma}$  donnés par les rhéomètres commerciaux correspondent aux approximations (termes de droite des relations (1.19)) des moyennes  $\langle \sigma \rangle$  et  $\langle \dot{\gamma} \rangle$  :

$$\begin{cases} \sigma = \frac{R_1^2 + R_2^2}{4\pi H R_1^2 R_2^2} \Gamma, \\ \dot{\gamma} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Omega. \end{cases} \quad (1.20)$$

De telles définitions permettent que la quantité  $\sigma/\dot{\gamma}$  donnée par le rhéomètre corresponde sans aucune approximation, à la viscosité  $\eta$  du fluide newtonien.

Jusqu'à présent, nous nous sommes limités au cas des faibles nombres de Reynolds. En réalité, l'écoulement de Couette n'est pas toujours stable. Au-delà d'une certaine vitesse de rotation critique  $\Omega_c$ , il se produit une *instabilité hydrodynamique* : l'écoulement devient inhomogène, la vitesse radiale n'est plus nulle et il y a apparition d'un ensemble de rouleaux périodiquement espacés dans la direction de la vorticité  $z$ . Cette instabilité provient d'une composante centrifuge dans l'écoulement de Couette. Dans le cas d'un fluide newtonien, le seuil de cette instabilité est bien connu et caractérisé par le nombre de Taylor :

$$Ta = Re \sqrt{\frac{e}{R_1}} = \frac{\rho \Omega}{\eta} \sqrt{R_1 e^3}, \quad (1.21)$$

et  $Ta_c = 41$  au seuil. Pour des vitesses encore plus élevées, il y a déstabilisation de ces rouleaux et des instabilités dites secondaires, se développent : c'est le *chaos spatio-temporel*. Dans la limite des très grandes vitesses, le champ de vitesse devient *turbulent* [73]. Par la suite, nous nous intéresserons aux propriétés sous écoulement de fluides complexes dans la gamme de vitesse où l'écoulement est supposé *laminaire* (*i.e.*  $Ta < Ta_c$ ).

### 1.1.3 La rhéologie des fluides complexes

#### Courbe d'écoulement

Dans les sections précédentes, nous avons détaillé le cas simple où il existe une relation de proportionnalité entre la contrainte et le cisaillement :  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$ . En ce qui concerne les fluides complexes, ce n'est plus le cas : le fluide ne peut pas être caractérisé par une viscosité  $\eta$  constante. La rhéologie des fluides complexes consiste à déterminer la relation non-linéaire qui existe entre contrainte et cisaillement,  $\sigma = f(\dot{\gamma})$ <sup>5</sup>. Cette relation constitutive peut ensuite être reliée aux théories microscopiques couplant la structure interne du matériau à l'écoulement.

---

<sup>5</sup> Lorsque la structure du matériau étudié est anisotrope, la relation entre contrainte et taux de cisaillement est tensorielle et fait intervenir différentes viscosités, cf. relation (1.5), page 20.

Ainsi, dans une expérience classique de rhéologie, le fluide étudié est cisailé grâce à différentes géométries d'écoulement (Couette, plan-plan. . .). En faisant varier la contrainte appliquée, on obtient la courbe  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}$ , appelée *courbe d'écoulement*. Dans le cas de la géométrie de Couette par exemple, différents couples  $\Gamma$  sont appliqués et les vitesses de rotation stationnaires correspondantes  $\Omega$  sont mesurées. La courbe d'écoulement  $(\sigma, \dot{\gamma})$  est alors obtenue grâce aux relations (1.20). Notons toutefois que dans une expérience de rhéologie, on peut soit décider d'imposer une contrainte et mesurer un taux de cisaillement, soit imposer un taux de cisaillement et mesurer la contrainte nécessaire. Ce choix apparemment équivalent, a en réalité des conséquences importantes dans certains cas particuliers de fluides complexes comme on pourra le voir par la suite.

### Quelques comportements non-newtoniens

Il existe une multitude de comportements non-newtoniens. Le but de cette section est de présenter brièvement ceux qui seront utiles à la lecture de ce manuscrit, tout en soulignant le type de matériau concerné.

#### *Rhéofluidification et rhéoépaississement*

La rhéofluidification est la diminution de la viscosité avec le cisaillement ou la contrainte appliquée (cf. fig. 1.8.a). Ce comportement rhéologique est fréquemment rencontré dans les fluides complexes. C'est le cas notamment des solutions de polymères, où la fluidification est liée à l'alignement des molécules le long du champ de vitesse. C'est aussi le cas des suspensions colloïdales monodisperses où le cisaillement tend à ordonner spatialement les particules, diminuant ainsi la contrainte visqueuse [2, 143]. Le rhéoépaississement correspond à l'effet inverse : la viscosité du fluide augmente avec le taux de cisaillement appliqué. L'origine de ce phénomène rare n'est pas clairement identifiée. Des transitions ordre-désordre induites par le cisaillement sont parfois invoquées, ainsi que le phénomène de *shear-induced jamming*, littéralement « blocage induit par le cisaillement », correspondant à la formation d'arches de forces dans les suspensions colloïdales, bloquant ainsi l'écoulement [28, 38, 79, 80].

#### *Contrainte seuil*

De nombreux matériaux présentent des contraintes seuil : mousses, émulsions, suspensions vitreuses. . . Pour ces fluides, si la contrainte appliquée est inférieure à une contrainte seuil  $\sigma_0$ , le matériau ne coule pas et réagit élastiquement comme un solide. Au-delà, le fluide est cisailé (cf. fig. 1.8.b). C'est cette propriété qui permet à ces matériaux de ne pas

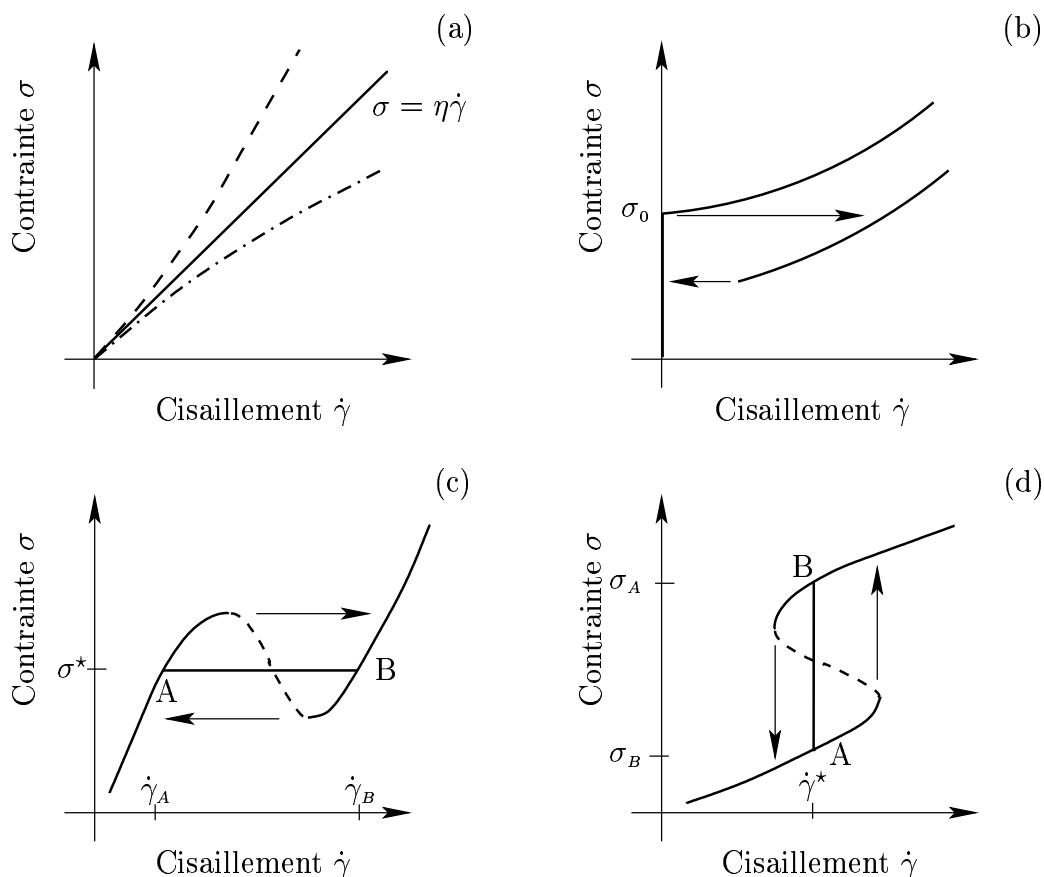


FIG. 1.8 – (a) Rhéofluidification (points et traits-tirés) et rhéoépaississement (traits-tirés) comparés au comportement d'un liquide simple  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$  (ligne continue). (b) Comportements de fluides à seuil. La transition pâte–fluide peut être continue ou discontinue. (c) Courbe d'écoulement classique d'une transition hors-équilibre rhéofluidifiante,  $\sigma^*$  est la contrainte où coexistent les deux bandes de cisaillement  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ . La ligne en traits-tirés correspond à la zone instable de la courbe l'écoulement. (d) Courbe d'écoulement classique d'une transition rhéoépaississante,  $\dot{\gamma}^*$  est le cisaillement où coexistent les bandes de contrainte  $\sigma_A$  et  $\sigma_B$ . La ligne en traits-tirés correspond à la zone instable de la courbe l'écoulement.

s'écouler sous leur propre poids (*e.g.* mayonnaise ou mousse à raser). Les origines de ce genre de comportements sont diverses. Le seuil peut provenir de la présence d'une structure désordonnée et compacte, comme c'est le cas pour une mousse ou une émulsion : il faut une déformation critique pour que les cellules se réarrangent (cf. fig. 1.2, page 16) [17, 76, 100]. L'origine de ce seuil peut aussi être liée aux interactions physiques (comme dans un gel) ne pouvant se briser que sous l'action d'une contrainte suffisante. Dans certains cas, il existe

une transition discontinue entre l'état solide (*pâte*) et l'état fluide; des comportements hystérétiques peuvent être observés (cf. fig. 1.8.b) [41, 46, 117, 118].

### *Structures induites et transitions hors-équilibre*

Dans certains cas de fluides complexes, l'écoulement de cisaillement peut induire de nouvelles organisations microscopiques du matériau (*shear-induced structure*, SIS). Ces transitions ont lieu lorsque le cisaillement  $\dot{\gamma}$  est de l'ordre de grandeur de l'inverse du temps caractéristique  $\tau$  de la structure du fluide, *i.e.* lorsque  $\dot{\gamma}\tau \simeq 1$ . La dynamique de la structure est alors profondément modifiée. Ces nouvelles structures peuvent exister à l'état d'équilibre thermodynamique, on a alors une « transition de phase induite par le cisaillement », ou correspondre à de nouvelles organisations, on parle alors de « texture induite par le cisaillement ». Ce genre de phénomène est couramment observé dans les mélanges de tensioactifs (systèmes *lyotropes*) où de nouvelles structures comme la « texture ognon » sont induites par le cisaillement de phases lamellaires [52, 53, 133] et où des transitions « isotrope–nématique » dans les solutions de micelles géantes ont été observées [25, 139]. Nous y reviendrons longuement dans les chapitres suivants.

Lorsque la transition est discontinue et rhéofluidifiante, la courbe d'écoulement est celle présentée sur la figure 1.8.c<sup>6</sup>. Deux branches correspondant aux deux structures microscopiques sont séparées par une zone instable mécaniquement (traits-tirés). Si la contrainte  $\sigma$  est appliquée, un cycle d'hystérésis peut alors être observé (représenté par les flèches sur la fig. 1.8.c) : il y a *bistabilité* entre les deux structures. Si le cisaillement est appliqué, la courbe d'écoulement présente un *plateau* à une contrainte donnée  $\sigma^*$ . Sur ce plateau, comme représenté schématiquement sur la figure 1.9.a, on pense que le système se sépare dans la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$ , en plusieurs *bandes* de cisaillement locaux différents  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$  (c'est le « gradient-banding »). Ces bandes correspondent par ailleurs, aux structures du fluide aux points *A* et *B*. Dans le cas où la transition est rhéoépaississante (cf. fig. 1.8.d), les rôles sont inversés : si le taux de cisaillement est imposé, un cycle d'hystérésis peut être mesuré et si la contrainte est imposée, un plateau vertical est présent sur la courbe d'écoulement. Le fluide est alors supposé se séparer en bandes de structures et de contraintes différentes le long de la vortacité (direction *z* dans la géométrie de Couette, cf. fig. 1.9.b), c'est le « vorticity-banding ». On regroupe de manière générique ces écoulements inhomogènes sous le terme de « shear-banding » (littéralement « bandes de cisaillement », même si dans le cas rhéoépaississant ce sont en réalité des bandes de

---

<sup>6</sup> L'existence d'une transition hors-équilibre n'est pas une condition nécessaire : de telles courbes d'écoulement sont aussi observées dans les mélanges viscoélastiques où aucune transition structurale n'est présente [146].

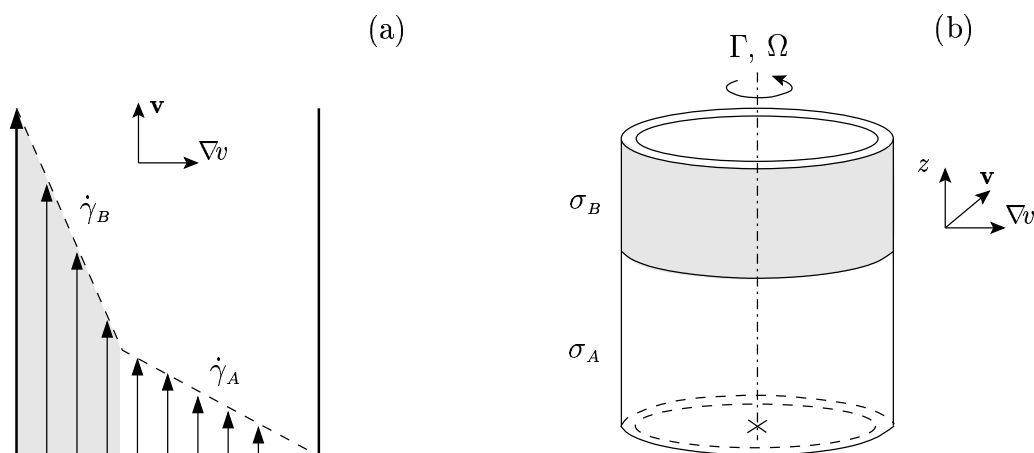


FIG. 1.9 – (a) Cas du « gradient-banding ». L'écoulement se sépare en différentes bandes le long de la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$ . Les cisaillements locaux sont alors  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ . La zone grisée correspond à la structure du fluide au point B (cf. fig. 1.8.c). (b) Cas du « vorticity-banding » dans l'écoulement de Couette. L'écoulement se sépare en bandes de structures différentes et de contraintes  $\sigma_A$  et  $\sigma_B$ . La zone grisée correspond à la structure du fluide au point B (cf. fig. 1.8.d).

contraintes différentes<sup>7</sup>).

Ces comportements de transitions hors-équilibre ont été rapportés dans de nombreux systèmes [24, 25, 29, 30, 53, 57, 93, 114, 126, 135] et il semble désormais clair qu'une approche mécanique phénoménologique permet de comprendre ces observations expérimentales [4, 109, 112, 123, 146]. Malgré un travail expérimental et de modélisation considérable, il reste de nombreuses questions ouvertes [22, 29, 59], nous y reviendrons plus en détail dans les chapitres 4 et 5.

### 1.1.4 Des instabilités temporelles au « rhéochaos »

Il est important de souligner dès à présent, que l'ensemble des comportements cités précédemment correspond à des phénomènes ne dépendant pas du temps : une contrainte est appliquée et après un transitoire, un état stationnaire est mesuré *i.e.*  $\partial_t \dot{\gamma} = 0$ . On parle alors de courbe d'écoulement *stationnaire*.

<sup>7</sup> Des bandes de cisaillement peuvent aussi être observées lors de transitions rhéoépaississantes ainsi que des bandes de vorticité lors de certaines transitions rhéofluidifiantes [22, 66, 82].

### Transitoire *vs.* dynamique ?

En réalité, les structures internes des fluides complexes possèdent des temps de relaxation pouvant être extrêmement longs. Des phénomènes transitoires sont alors observés : relaxation lente vers un état rhéologique stationnaire, temps d'induction et oscillations pré-transitoires pour les structures induites sous cisaillement [22, 29, 82], voire vieillissement dans les suspensions vitreuses<sup>8</sup> [125, 149]. . . Lors de ces comportements transitoires, le cisaillement et le champ de vitesse varient dans le temps. Cependant une description impliquant l'équation de Navier-Stokes n'est pas nécessaire car la dynamique d'établissement du champ de vitesse est généralement bien plus rapide que les changements structuraux du fluide complexe. De manière quantitative,  $\tau_d$  le temps caractéristique de diffusion de la quantité de mouvement sur la distance  $L$  ( $\tau_d = \rho L^2/\eta$ ) est généralement bien plus petit que les temps de relaxation des structures internes. Dans le cas de l'eau par exemple, et sur une distance  $L$  de l'ordre du millimètre (comparable aux entrefers  $e$  des cellules de Couette couramment utilisées),  $\tau_d \simeq 1$  s. La plupart des fluides complexes sont bien plus visqueux, le temps d'établissement du champ de vitesse est alors encore plus faible. C'est pourquoi on peut généralement considérer qu'aux échelles de temps supérieures, la loi de Newton  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$  est constamment vérifiée. Même si ces transitoires renseignent sur la physique du couplage structure-écoulement [23, 67, 115], l'ensemble de la communauté de la rhéologie s'est en premier lieu intéressée aux états stationnaires.

### Instabilités visco-inertielle

Lorsque les nombres de Reynolds sont suffisamment élevés, la simple description impliquant la diffusion de la quantité de mouvement n'est plus suffisante car des instabilités hydrodynamiques peuvent se produire. Le moteur de ces instabilités est l'inertie présente dans l'écoulement ; ce qui tend à les freiner est la dissipation visqueuse. Rappelons que le nombre de Reynolds permet de caractériser l'importance relative des temps de transport de la quantité de mouvement par convection  $\tau_c$  et par diffusion  $\tau_d$ . Lorsque l'instabilité se développe, l'écoulement devient inhomogène. Les temps caractéristiques des transitoires entre l'état de base (stable) et l'état instable, sont de l'ordre de  $\tau_c \sim L/v \sim 1/\dot{\gamma}$ , le temps de convection de la quantité de mouvement sur une distance  $L$ . Dans l'écoulement de Couette par exemple, des rouleaux apparaissent le long de la vorticit  (cf. section 1.1.2, page 21). En augmentant le nombre de Reynolds, les rouleaux se d stabilisent et l' coulement n'est plus stationnaire.   des nombres de Reynolds encore plus  lev s, l' coulement est *turbulent* :

---

<sup>8</sup> Dans ce dernier cas, on ne peut pas r ellement parler de transitoires,  tant donn  que l' tat d' quilibre n'est jamais atteint.

des tourbillons dissipant l'énergie sont présents à toutes les échelles.

Cette transition vers la turbulence a un coût énergétique : un écoulement laminaire dissipe moins d'énergie que la turbulence pleinement développée. Ainsi, un des enjeux majeurs en hydrodynamique est de réduire cette forte dissipation : c'est la réduction de la « force de traînée turbulente ». En modifiant légèrement les fluides simples (en ajoutant des polymères par exemple), on augmente la viscosité et ainsi le seuil d'apparition de ces instabilités visco-inertielles.

La communauté des hydrodynamiciens s'est donc naturellement intéressée à l'effet de la complexité du fluide sur ces instabilités inertielles. Notons par exemple, les travaux théoriques de Khayat *et al.* [11] ou encore les approches expérimentales des travaux cités dans la référence [45]. Insistons cependant sur le fait que ces approches concernent l'effet d'une complexité (contrôlée) sur les instabilités « classiques » de l'hydrodynamique des fluides simples.

### Instabilités viscoélastiques

Une toute autre approche des instabilités temporelles a été celle des rhéologues étudiant les fluides fortement viscoélastiques (essentiellement les mélanges de polymères). Ces matériaux présentent en effet, à des nombres de Reynolds peu élevés, des comportements spatio-temporels surprenants. Le moteur de ces instabilités n'est plus l'inertie mais l'élasticité du matériau : on parle d'instabilité « purement élastique ». Depuis les travaux fondateurs de Shaqfeh, Larson et Muller [86, 106, 141], de nombreuses études expérimentales et théoriques ont été réalisées. De véritables rouleaux de Taylor « viscoélastiques » ont été observés ainsi que des équivalents de « turbulence élastique » [69, 70]. L'origine de ces comportements est relativement bien comprise et liée à l'effet de l'élasticité sur les lignes de courants hydrodynamiques [113]. Soulignons toutefois que l'approche hydrodynamique basée sur l'équation de Navier-Stokes n'est pas nécessaire, une « simple » approche mécanique est suffisante pour décrire cette complexité. En effet des modèles phénoménologiques reproduisant la viscoélasticité de ces matériaux permettent de décrire les comportements expérimentaux [86, 106, 141].

Notons par ailleurs que pour certains systèmes viscoélastiques, comme les micelles géantes, connus pour présenter des courbes d'écoulement du type de celle de la figure 1.8.c (page 27), de nombreux comportements oscillants, similaires aux instabilités élastiques ont été observés [60, 153]. Dans ces cas précis, des « bandes » correspondant aux différentes structures induites par le cisaillement sont présentes dans l'écoulement. Ces bandes oscillent alternativement, et ce avec des fréquences proches de la seconde. Pour expliquer cette dy-



namique périodique, les auteurs pensent qu'un couplage entre l'instabilité de l'écoulement (« shear-banding ») et une instabilité élastique permettrait la création et la destruction alternative de ces structures induites par le cisaillement.

### Le « rhéochaos » ?

Plus récemment, des comportements temporels d'un genre nouveau ont été observés avec différents types de fluides complexes. Ces derniers sont caractérisés par des périodes temporelles pouvant être longues (jusqu'à une heure) et ne semblent pas pouvoir être décrits en terme d'instabilités viscoélastique ou visco-inertielle car un couplage avec la structure du matériau est présent. Ces instabilités temporelles ont été qualifiées de « rhéochaos » pour l'ensemble de ces raisons [35]. Dans la section suivante, nous ferons une revue expérimentale de ces comportements, nous présenterons ensuite, pour clore ce chapitre, les approches théoriques développées et les diverses questions soulevées.

## 1.2 Le « rhéochaos » expérimental

Dans cette section, nous faisons une brève revue des différents systèmes présentant des comportements dynamiques du type « rhéochaos ». Plusieurs classes de systèmes expérimentaux peuvent désormais être identifiées : (i) des comportements fluctuants dans les solutions semi-diluées et diluées de micelles géantes, (ii) des oscillations de relaxation dans les phases de membranes, (iii) enfin différentes oscillations observées dans des matériaux divers : des polymères cristaux liquides aux alliages...

### 1.2.1 Fluctuations de viscosité dans les micelles géantes

#### Phases diluées et semi-diluées

La plupart des systèmes de micelles géantes sont connus pour présenter des transitions hors-équilibre rhéofluidifiantes et rhéoépaississantes comme celles décrites dans la section 1.1.3, page 26. Dans le régime dilué, il y a dans la plupart des cas, apparition discontinue d'une structure visqueuse : la transition est rhéoépaississante [22, 29]. Alors que dans le régime semi-dilué (les micelles sont alors enchevêtrées), la solution est élastique et présente une courbe d'écoulement comme celle de la figure 1.8.c : la transition est rhéofluidifiante. Même si plusieurs expériences ont clairement identifié la présence d'un ordre orientationnel dans le cas semi-dilué [25, 32, 139], la nature microscopique des structures induites par le cisaillement lors de ces transitions reste encore aujourd'hui obscure.

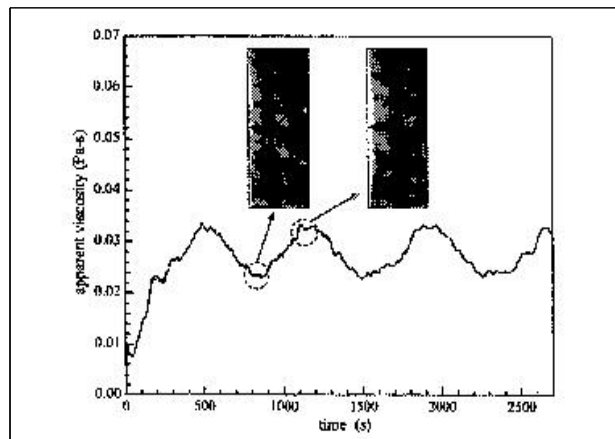


FIG. 1.10 – Évolution temporelle de la viscosité et des images de diffusion de la lumière à une contrainte fixe. La viscosité et l'épaisseur de la structure induite dans l'entrefer fluctuent dans le temps sur des périodes de l'ordre de 10 min. La courbe est issue de la référence [82].

### Fluctuations de viscosité dans le système dilué TTAA/NaSal

Hu *et al.* (Université de Californie, Santa-Barabara) ont réalisé une étude exhaustive d'un système dilué connu pour présenter une transition rhéoépaississante prononcée (7.5/7.5 mM TTAA/NaSal) [29, 81, 82]. Les auteurs ont identifié au voisinage de la transition hors-équilibre, quatre régimes distincts, caractérisés par leurs cinétiques et comportements rhéologiques. Par la diffusion d'une nappe laser sous écoulement de Couette, les auteurs sont capables de suivre la nucléation des structures induites lors des transitions. Grâce à une méthode optique de suivi de particules (« Particle Imaging Velocimetry », PIV), ils ont mesuré le champ de vitesse au voisinage de la transition et montré ainsi le caractère fortement visqueux de la SIS<sup>9</sup> (« Shear-Induced Structure »). Dans ce travail, les auteurs soulignent le fait qu'aucun état stationnaire n'est jamais vraiment atteint lorsque la solution s'est épaissie. Dans certains cas, de grandes fluctuations de viscosité (plus de 35%) ont été mesurées (cf. fig. 1.10). Ces fluctuations sont caractérisées par de très longues échelles de temps, environ 600 s. Un des points les plus remarquables est le couplage entre ces oscillations rhéologiques et le mouvement de la structure induite au sein de l'entrefer de la cellule de Couette (cf. fig. 1.10).

<sup>9</sup> Il s'agirait a priori d'un gel, qui à haut cisaillement subirait de multiples fractures et « cicatrifications » [81].

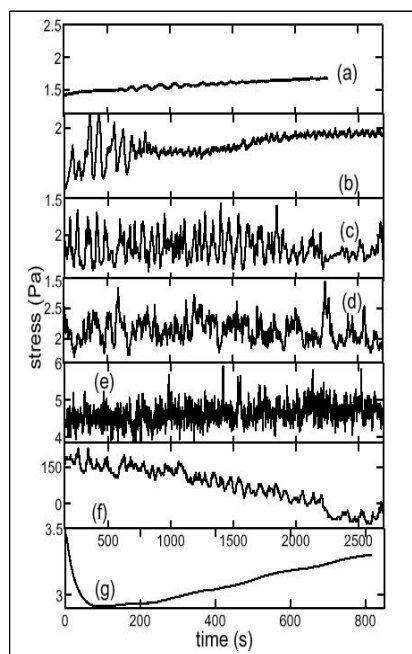


FIG. 1.11 – Comportements de la contrainte (système semi-dilué de CTAT) pour différents cisaillements imposés à 25 °C.  $\dot{\gamma} =$  (a) 22.5, (b) 75, (c) 100, (d) 138 et (e) 175 s<sup>-1</sup>. (f) correspond à la mesure de la contrainte normale pour un cisaillement de  $\dot{\gamma} = 100$  s<sup>-1</sup>. (g) indique que les oscillations disparaissent à 35 °C pour un cisaillement de  $\dot{\gamma} = 100$  s<sup>-1</sup>. La courbe est issue de la référence [13].

### Fluctuations de viscosité dans le système CTAT

Dans un autre système, Bandyopadhyay *et al.* (Département de physique, Bangalore, Inde) [13] ont étudié, après les travaux préliminaires de Soltero *et al.* [145], des fluctuations de cisaillement dans un système semi-dilué de micelles présentant une transition rhéofluidifiante (CTAT,  $c = 1.35\%$ wt.). Au voisinage du plateau de contrainte, la viscosité fluctue temporellement à un cisaillement fixé comme on peut le voir sur la figure 1.11 tirée de la référence [13]. Les fréquences caractéristiques de cette dynamique sont de l'ordre de 10–100 s et n'ont aucun lien apparent avec une simple instabilité élastique. Les auteurs suggèrent plutôt une dynamique spatio-temporelle des bandes de cisaillement qui seraient présentes dans la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$  (cf. section 1.1.3, page 26). Cette dynamique pourrait selon les auteurs, être décrite par un comportement du type « stick-slip » entre la

structure semi-diluée et la structure induite<sup>10</sup>.

Par ailleurs en utilisant des outils de la théorie des systèmes dynamiques, Bandyopadhyay *et al.* affirment que les comportements temporels observés peuvent être décrits par un système dynamique de basse dimensionnalité dont la dimension augmente avec le taux de cisaillement appliqué. Pour des raisons qui seront abordées plus loin dans ce manuscrit, nous pensons que l’approche utilisée n’est pas suffisante pour affirmer un tel résultat (cf. section 2.3.5, page 78).

Enfin, le même système, mais pour des concentrations telles que les micelles géantes ne sont pas enchevêtrées ( $c \simeq 0.5\%$ ), présente une transition rhéoépaississante. Des comportements dynamiques sont encore présents, et avec les mêmes outils que précédemment, Bandyopadhyay *et al.* ont réaffirmé avoir mis en évidence une dynamique chaotique déterministe [14].

## 1.2.2 Oscillations de relaxation dans les phases de membranes

### Diagramme d’orientation et textures induites par le cisaillement

Comme esquissé brièvement dans l’introduction, il existe un couplage très fort entre la texture d’une phase de membranes et l’écoulement de cisaillement. Dans la plupart des phases lamellaires par exemple, il est clairement établi que le cisaillement permet de contrôler la texture [131]. Notamment, il apparaît à faible cisaillement ( $\simeq 1 \text{ s}^{-1}$ ), une structure étonnante où les membranes sont organisées en une assemblée compacte, monodisperse de multivésicules emboîtées, communément appelées *ogbons* (cf. fig. 1.12). Cette structure vitreuse possède une taille caractéristique  $R$  (la taille de l’ognon) de l’ordre du micron et variant avec le cisaillement selon :  $R \sim \dot{\gamma}^{-1/2}$  [53]. À plus haut cisaillement ( $\simeq 1000 \text{ s}^{-1}$ ), la texture ognon disparaît et il y a apparition d’une texture de membranes parfaitement ordonnées le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ <sup>11</sup> [53, 133]. Pour des cisaillements intermédiaires et pour certains systèmes de phases lamellaires lyotropes, des organisations spatiales d’ogbons ont été observées [54, 143]. Soulignons dès à présent que ces « transitions texturales induites par le cisaillement » ont été observées dans un grand nombre de systèmes lyotropes [20, 143]. Par ailleurs, malgré quelques pistes théoriques [154, 158], au-

---

<sup>10</sup> Cette terminologie, généralement utilisée dans le cadre du frottement solide, est ici reprise dans un contexte différent. On peut imaginer par exemple, des événements microscopiques donnant lieu à des dynamiques similaires aux fractures, sans induire pour autant des discontinuités de la contrainte.

<sup>11</sup> Des défauts texturaux persistent cependant le long de la direction de la vorticit . Il est probable que cet  tat soit compos  de long tubes multilamellaires orient s le long de l’ coulement, d’o  la terminologie de « poireaux » que l’on trouve parfois dans la litt rature.

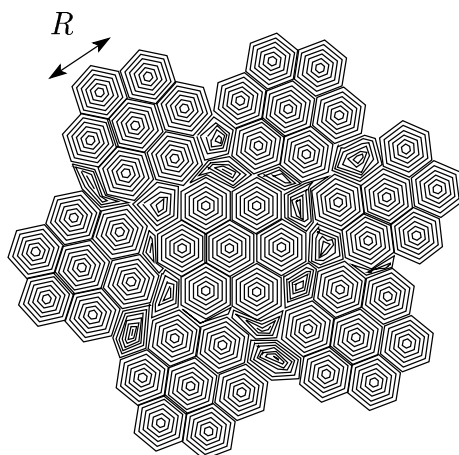


FIG. 1.12 – Texture d’ognons désordonnés. La taille caractéristique  $R$  est de quelques microns.

cune modélisation suffisamment complète n’a été apportée pour comprendre ces transitions (notamment la transition lamelles–ognon).

Une façon commode d’illustrer la complexité de l’effet du cisaillement sur un système lyotrope, est le « diagramme d’orientation ». Ce dernier est une représentation bidimensionnelle des différentes textures obtenues sous cisaillement. Le premier axe est donné par un paramètre pertinent de l’état d’équilibre (température  $T$ , fraction volumique de membranes  $\phi$ , salinité...), le second correspond à une variable rhéologique ( $\sigma$  ou  $\dot{\gamma}$ ) [53, 133].

Il y a une dizaine d’années, Roux *et al.* (Centre de Recherche Paul Pascal, Pessac, France) ont réalisé le premier diagramme d’orientation du système quaternaire composé de Sodium Dodécyl Sulfate (SDS), de pentanol, d’eau et de dodécane [53, 133]. Ce système présente à l’équilibre thermodynamique une phase  $L_\alpha$  dont on peut continûment faire varier le pas smectique  $d$  par dilution. Comme on peut le voir sur la figure 1.13, les différentes textures (lamellaire I, ognon II et lamellaire orientée III) sont séparées par des transitions hors-équilibre discontinues. Ces transitions peuvent être soit rhéofluidifiantes (*e.g.* II  $\rightarrow$  III), soit rhéoépaississantes (*e.g.* I  $\rightarrow$  II). L’ensemble des comportements discutés dans la section 1.1.3 (page 26), à savoir les cycles d’hystérèse ou encore les plateaux de contrainte, ont été mis en évidence sur ce système.

Dans la référence [133], les auteurs rapportent l’existence au voisinage de ces transitions de comportements temporels inhabituels : la viscosité du fluide oscille sur des périodes de l’ordre de 10 min<sup>12</sup>. Ce sont les premiers à supposer que ces oscillations ne correspondent

<sup>12</sup> Plus précisément, ces oscillations ont été observées lors de la transition I  $\rightarrow$  II et pour des pas smectiques  $d$  tels que la transition passe de « continue » à « discontinue » [133].

pas à un simple couplage mécanique avec le rhéomètre, ou encore à une instabilité élastique. Les auteurs suggèrent aussi que la théorie des systèmes dynamiques pourrait constituer un guide pour l'étude de ces transitions hors-équilibre.

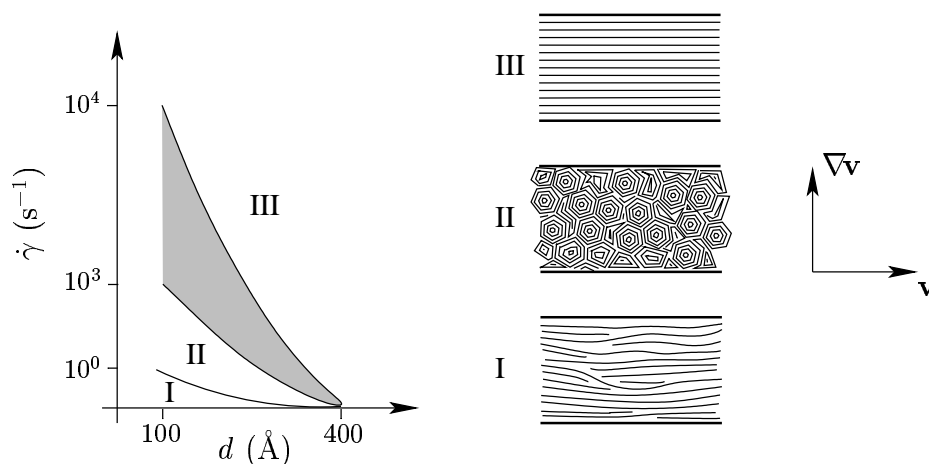


FIG. 1.13 – Diagramme d'orientation du système SDS/Pentanol/Dodécane/Eau. Les différentes textures sont : (I) texture de phase lamellaire partiellement orientée, (II) texture d'ognons désordonnés et (III) phase lamellaire orientée le long de  $\nabla v$  et  $\mathbf{v}$ . La zone grisée indique la coexistence entre les états II et III lorsque le cisaillement est imposé. La courbe est reproduite à partir de la référence [133].

### Oscillations au voisinage de la transition de feuilletage

C'est A.-S. Wunenburger qui réalisa au cours de sa thèse la première étude de ces comportements oscillants, dans le système lyotrope SDS/Octanol/Eau/NaCl [83, 155]. Le diagramme d'orientation de ce système (établi par P. Sierro [142, 143]) est extrêmement riche (cf. fig. 1.14). La température joue un rôle particulièrement important : à  $T = 35^\circ\text{C}$ , un diphasique lamellaire-éponge apparaît<sup>13</sup>. À faible cisaillement, la texture est caractérisée par les défauts classiques d'une phase lamellaire à l'équilibre (état I). À  $\dot{\gamma} \simeq 1 \text{ s}^{-1}$ , la texture ognon apparaît (état II). Lorsque  $\dot{\gamma} \simeq 15 \text{ s}^{-1}$ , les ognons acquièrent un ordre bidimensionnel hexagonal à longue portée. L'écoulement est alors constitué de plans d'ognons orientés orthogonalement au gradient de vitesse  $\nabla v$  (état IV). Cette transition dite de « feuilletage » a été observée dans de nombreux systèmes colloïdaux monodisperses [2].

<sup>13</sup> Cette valeur est donnée à titre indicatif car elle dépend de l'échantillon étudié. La position exacte de cette transition est en effet extrêmement sensible à la fraction d'octanol présente dans la solution.

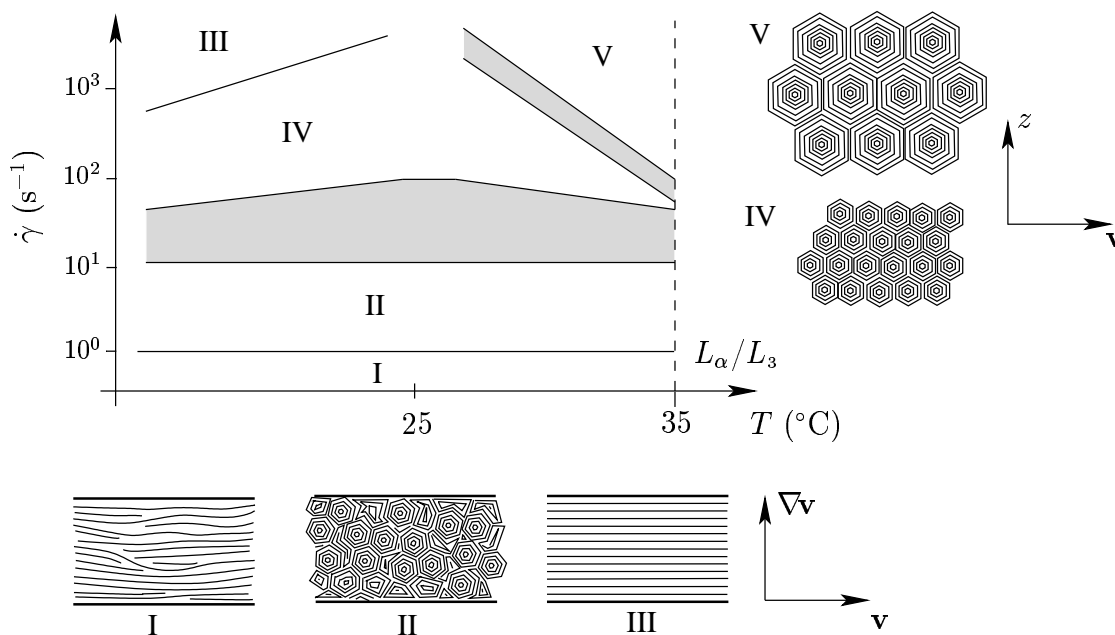


FIG. 1.14 – Diagramme d'orientation du système SDS/Octanol/Eau/NaCl. Les différentes textures sont : (I) texture de phase lamellaire partiellement orientée, (II) texture d'ognons désordonnés, (III) phase lamellaire orientée le long de  $\nabla v$  et  $\mathbf{v}$ , (IV) texture feuilletée d'ognons ordonnés dans le plan  $(z, \mathbf{v})$  et (V) texture feuilletée de gros ognons ordonnés dans le plan  $(z, \mathbf{v})$ . Les zones grisées indiquent les coexistences entre les états lorsque le cisaillement est imposé. La courbe est reproduite à partir de la référence [142].

À plus haut cisaillement et pour des températures inférieures à  $25^\circ\text{C}$ , une phase lamellaire parfaitement orientée dans la direction de l'écoulement (état III de la figure 1.14) est de nouveau observée, comme pour le système précédent. Cependant, pour des températures plus élevées, une transition rhéofluidifiante surprenante a lieu : la taille des ognons augmente discontinûment (jusqu'à  $10\ \mu\text{m}$ ) et l'ordre de feuilletage est préservé (état V). Notons aussi qu'au « feuilletage » des ognons est associée une diminution du pas smectique  $d$  de la phase lamellaire [54, 90, 142]. Les ognons « relarguent » donc de l'eau, permettant ainsi une meilleure lubrification de l'écoulement entre les plans d'ognons ordonnés<sup>14</sup>. Ce relargage d'eau s'accompagne d'une augmentation de la turbidité sous écoulement, liée à la différence d'indice optique entre l'eau et les ognons compressés.

<sup>14</sup> J. Leng a montré une baisse de 20% du pas smectique  $d$  dans la zone V du diagramme 1.14, ce qui est considérable car cela signifie que l'échantillon est alors composé de 80% d'ognons ordonnés et de 20% d'eau [89].

En imposant différentes contraintes au voisinage de la transition de feuilletage II  $\rightarrow$  IV, A.-S. Wunenburger a mis en évidence les comportements temporels suivants [155] :

- loin de la transition, le cisaillement relaxe vers un état stationnaire ;
- à l’approche du feuilletage, le cisaillement présente des oscillations amorties (cf. fig. 1.15.a) ;
- lors de la transition, le cisaillement oscille régulièrement avec une période de l’ordre de 10 min (cf. fig. 1.15.b). Cette dynamique correspond par ailleurs à des oscillations de relaxation : le cisaillement quasiment constant, augmente brutalement vers une autre valeur. Après un certain temps, le cisaillement chute à nouveau. L’oscillation observée n’est donc pas harmonique : elle présente des échelles de temps distinctes ;
- à plus haute contrainte et loin de la transition, le cisaillement relaxe de nouveau vers un état stationnaire ;
- en diminuant à nouveau la contrainte et au voisinage de la transition, les comportements observés sont différents : le cisaillement relaxe vers un état dynamique bruité (cf. fig. 1.15.c).

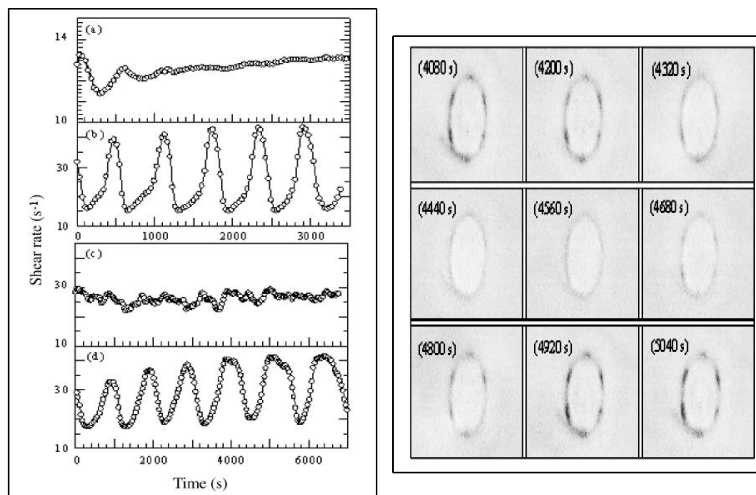


FIG. 1.15 – Comportements temporels du cisaillement pour différentes contraintes appliquées en géométrie cône-plan à 28 °C : (a) oscillations amorties, (b) oscillations de relaxation auto-entretenues, (c) oscillations bruitées de faible amplitude et (d) oscillations de relaxation à 25 °C en géométrie Couette. La figure est tirée de la référence [155]. Les figures de diffraction à droite, ont été obtenues lors des oscillations représentées en (d). Les pics de corrélation présents sur l’anneau de diffraction oscillent en phase avec le cisaillement.

Ce qui est particulièrement surprenant est la corrélation structure-écoulement : non seule-



ment la viscosité oscille, mais l'état microscopique change au cours de cette dynamique. Par diffusion statique de la lumière sous écoulement de Couette, les auteurs ont ainsi pu mettre en évidence que la texture de la phase oscillait entre l'état II (faible cisaillement) et l'état IV (fort cisaillement). Comme on peut le voir sur les figures de diffraction obtenues lors des oscillations (cf. fig. 1.15), la structure oscille entre l'état désordonné (caractérisé par un anneau isotrope de diffraction) et l'état feuilleté (caractérisé par l'apparition de pics intenses sur l'anneau). C'est la première mise en évidence d'une oscillation structurelle en rhéologie des fluides complexes. A.-S. Wunenburger a aussi montré que la température affectait notablement la période des oscillations (cf. fig. 1.15). Cette remarque conforte donc l'idée d'une dynamique complexe, liée aux propriétés microscopiques du fluide.

Par ailleurs, grâce aux outils classiques de la rhéologie, les auteurs ont montré l'existence de bistabilité et donc de comportements hystérétiques au voisinage de la transition de feuilletage. Les auteurs notent de plus, qu'au voisinage de comportements oscillants et hystérétiques, des dynamiques chaotiques ou encore de la quasipériodicité sont prédites par la théorie des systèmes dynamiques [9, 128]. Nous y reviendrons plus loin dans ce manuscrit (cf. page 87).

### Oscillations dans les mélanges $L_\alpha-L_3$

Le groupe de P. Panizza (CPMOH, Université Bordeaux I, France) s'est tout particulièrement intéressé à l'effet du cisaillement sur les diphasiques phase lamellaire-phase éponge. Ces systèmes présentent eux aussi une grande diversité de textures hors-équilibre. Des diagrammes d'orientation ont par ailleurs été réalisés sur divers systèmes [40, 43, 44]. De multiples structures induites comme des cristaux d'ognons dans une phase éponge ou encore de longs tubes multilamellaires ont été caractérisées. G. Cristobal a mis en évidence au cours de sa thèse l'existence d'oscillations de cisaillement à une contrainte fixe, au voisinage d'une transition rhéoépaississante dans le système SDS/Octanol/Eau/NaCl et pour des températures telles que le mélange est diphasique [43]. Par mesure de conductivité sous cisaillement, il a montré que ces oscillations sont corrélées à une oscillation du fluide entre deux textures distinctes<sup>15</sup>. Ces oscillations, une fois de plus, présentent une très longue période temporelle : environ 800 s. Par ailleurs, un changement de température entraîne une diminution de l'amplitude des oscillations. Des hétérogénéités le long de la direction de la vorticit  ont aussi été observées. Ce sont des bandes macroscopiques de turbidités différentes, s'orientant le long de la direction  $z$  dans l'écoulement de Couette et n'ayant aucune taille caractéristique. Il n'est pas cependant clairement établi, que ces bandes correspondent

---

<sup>15</sup> Il s'agit d'une texture de « poireaux » et d'un cristal d'ognons baignant dans une matrice  $L_3$ .

au « vorticity-banding » détaillé précédemment page 26. Enfin, l'auteur souligne aussi le caractère « relaxationnel » de ces oscillations : la dynamique présente différentes échelles de temps, l'oscillation n'est pas harmonique.

Récemment, dans la même équipe, L. Courbin a mis en évidence des oscillations de relaxation structurelles dans le système diphasique composé d'eau salée et d'AOT [39]. Ce

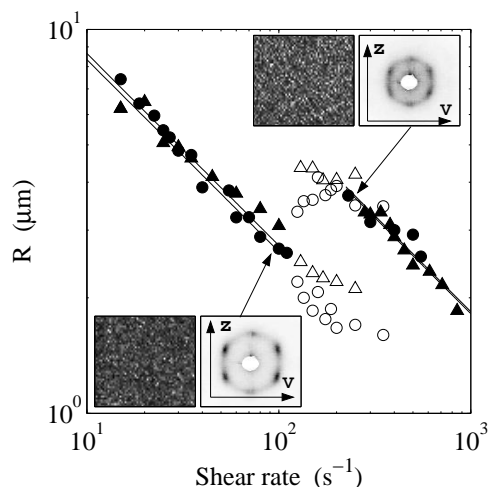


FIG. 1.16 – Variation de  $R$ , la taille caractéristique mesurée en diffusion de la lumière, avec  $\dot{\gamma}$  le cisaillement imposé. Les cercles et triangles correspondent respectivement à deux salinités différentes ( $17 \text{ g.L}^{-1}$  et  $17.15 \text{ g.L}^{-1}$ ). ( $\blacktriangle, \bullet$ ) représentent les états stationnaires et ( $\triangle, \circ$ ) correspondent aux maxima et minima de  $R$  lors des oscillations. Les lignes continues sont des lois de puissance  $R \propto \dot{\gamma}^{-1/2}$ . Inserts : Textures observées sous microscope entre polariseur et analyseur croisés et figures de diffraction correspondantes. La figure est tirée de la référence [39].

système présente une transition rhéofluidifiante marquée, entre deux textures quasiment identiques : deux assemblées monodisperses et organisées d'ognons, baignant dans une matrice éponge. Ces deux états sont seulement caractérisés par un changement discontinu de la taille des ognons à la transition, comme représenté sur la figure 1.16<sup>16</sup>. Lorsque la contrainte est imposée, il n'y a aucun état oscillant au voisinage de la transition. En revanche, lorsque le cisaillement est appliqué, la taille des ognons oscille périodiquement sur une échelle de temps de plusieurs milliers de secondes (cf. fig. 1.17). Ces oscillations présentent une fois de plus un caractère fortement relaxationnel : la taille des ognons augmente continûment sur plus de 1000 s et chute brutalement en quelques secondes. Lors de cette chute, des bandes macroscopiques de différentes turbidités sont encore une fois

<sup>16</sup> Les mesures de taille sont réalisées par diffusion statique de la lumière sous écoulement de Couette.

observées dans la cellule de Couette le long de la direction de la vorticité.

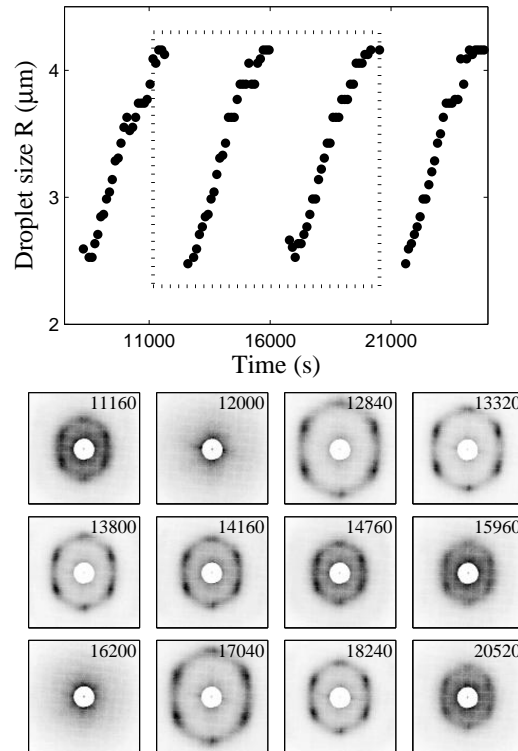


FIG. 1.17 – Évolutions temporelles de  $R$  et des différentes figures de diffraction dans le plan  $(\mathbf{v}, z)$  à  $\dot{\gamma} = 130 \text{ s}^{-1}$ . La figure est issue de la référence [39].

Afin d'expliquer une telle dynamique, les auteurs invoquent un phénomène de « relargage » discontinu de l'eau par les oignons. Cette compression des oignons serait à l'origine de la turbidité observée mais aussi du saut de taille. Une tentative d'approche théorique de ces oscillations est par ailleurs présentée. Ce modèle est basé sur une transition du premier ordre entre un état comprimé et un état non-comprimé d'oignons. Le paramètre pilotant cette transition discontinue est la pression de Laplace au sein de l'oignon :  $\chi/R$ , où  $\chi$  est la tension de surface qui existe entre la goutte multilamellaire et la matrice éponge. En couplant cette équation gouvernant l'état de compression de l'oignon, à une équation dynamique de la taille  $R$  des oignons, des oscillations de taille  $R$  et de compression peuvent avoir lieu.

## D'autres oscillations dans les systèmes de phases de membranes ?

En plus des travaux évoqués, il existe d'autres observations d'états oscillants dans les phases lamellaires et éponges. Notons par exemple le travail de C. Meyer et S. Asnacios sur la transition lamellaire–ognon dans le système CPCI/Hexanol/Saumure. Au voisinage de cette transition, des oscillations de relaxation ont été observées. Ces dernières sont caractérisées par une période d'environ 600 s [103]. Très peu de ces résultats ont été publiés, ceci est probablement lié aux difficultés expérimentales que nous essaierons de souligner au cours des chapitres suivants.

L'ensemble de ces expériences suggère l'existence universelle de ces états dynamiques dans les systèmes de phases  $L_\alpha$  et  $L_3$ . Certaines caractéristiques semblent être communes à toutes ces observations :

- ces oscillations apparaissent toujours au voisinage de transitions de textures ;
- elles ont toujours un caractère relaxionnel ;
- la période impliquée est généralement proche de 10 min, et ce pour des systèmes a priori différents ;
- des instabilités macroscopiques telles que l'apparition de bandes de turbidité, ont été observées plusieurs fois ;
- l'existence de ces oscillations dépend fortement des paramètres pertinents de l'état d'équilibre thermodynamique, comme la température ou la fraction volumique de tensioactifs. C'est une des raisons pour lesquelles il existe peu de publications à ce sujet : les zones d'existence de ces oscillations sont extrêmement étroites, rendant les expériences difficiles, voire peu reproductibles ;
- l'existence des dynamiques observées est conditionnée par la variable rhéologique imposée : *i.e.* les oscillations existent à contrainte (resp. cisaillement) appliquée et n'ont pas lieu à cisaillement imposé (resp. contrainte).

Ces propriétés suggèrent que les phénomènes de « rhéochaos » dans les phases de membranes liquides puissent avoir une origine physique commune. Aucune expérience à ce jour n'a encore permis d'apporter des pistes théoriques quant à un scénario commun.

### 1.2.3 Oscillations diverses en rhéologie

Terminons enfin cette brève revue expérimentale avec différents systèmes que nous n'avons pas pu regrouper dans les deux sections précédentes.

**« Stick-slip » et fluctuations de contrainte dans les matériaux mous vitreux**

Le but de ce paragraphe est de souligner l'existence de comportements non-stationnaires dans les matériaux mous vitreux. Ces derniers sont des assemblées colloïdales diverses telles les gels, les mousses ou encore les suspensions concentrées... Ces matériaux ont la propriété d'être des solides mous fragiles. « Mous » car caractérisés par de faibles modules élastiques et « fragiles » car sous l'action de contrainte suffisante, des réarrangements plastiques permettent au matériau de s'écouler [3, 76]. Les courbes d'écoulement classiques sont celles de la figure 1.8.b (page 27) : ce sont des fluides à seuil. Dans les mousses [48, 121], les phénomènes de contrainte seuil et de réarrangements plastiques ont pu être caractérisés par visualisation directe de l'écoulement. Les réarrangements des bulles produisent des fluctuations temporelles stochastiques de la contrainte globale du matériau [121]. La présence d'une dynamique locale des réarrangements dans ces matériaux peut mener à une dynamique stochastique globale. Ces dynamiques sont a priori éloignées des oscillations de relaxation dans les phases lamellaires. On peut cependant imaginer que les oscillations de relaxation détaillées dans la section précédente, correspondent à des phénomènes collectifs de réarrangements microscopiques. C'est pour cette raison qu'il nous paraît important de classer ce genre de dynamique dans le rhéochaos.

Par ailleurs, des comportement hystérétiques sont parfois observés au voisinage de la contrainte seuil [118]. Des écoulements inhomogènes ont aussi été mis en évidence maintes fois [41, 48]. Dans ces systèmes, la contrainte seuil peut s'interpréter comme une transition pâte–fluide. Des oscillations ont alors été rapportées : le système oscille entre l'état pâteux et l'état fluide [118]. De nombreuses analogies avec un comportement du type « stick-slip » peuvent être faites : lors de l'oscillation, le matériau se fracture, il y a localisation de l'écoulement dans une bande. La fracture se cicatrise et l'écoulement se bloque à nouveau. Encore une fois, il nous semble important de classer ces comportements dans le « rhéochaos » car cette dynamique ne correspond pas à une simple instabilité élastique et la structure du matériau est en jeu. Par ailleurs, une analogie théorique peut être effectuée entre ces transitions pâte–fluide et les transitions de textures dans les systèmes lyotropes [3]. Les origines microscopiques de ces oscillations sont probablement différentes dans les deux cas, mais il existe des propriétés phénoménologiques communes.

Notons enfin la présence de comportements dynamiques et chaotiques dans certaines expériences de tribologie à l'échelle nanométrique. Dans ces travaux, le confinement du fluide est réalisé grâce à une machine de force (« Surface Force Apparatus », SFA) et le fluide est ensuite cisailé : l'écoulement est du type plan-plan. Des comportements de stick-slip ont été observés dans ces milieux confinés où des dynamiques chaotiques ont été caractérisées

dans les bicouches de tensioactifs [55] et dans les hydrocarbures [56] .

### Polymères cristaux liquides

Dans les polymères cristaux liquides, il existe un couplage entre le cisaillement appliqué à la solution et la direction d'alignement des molécules. Des modèles théoriques permettent de décrire ces comportements en considérant par exemple, une assemblée de bâtonnets rigides dans un écoulement de cisaillement. Dans la plupart de ces systèmes, des instabilités temporelles du directeur ont été observées par biréfringence. La direction moyenne des molécules oscille périodiquement (c'est le « tumbling »). Dans certains cas, des comportements plus complexes ont été mis en évidence [102]. Ces dynamiques sont évoquées dans le cadre de cette revue sur le rhéochaos, dans le sens où la structure du matériau se couple à l'écoulement de cisaillement simple et où des dynamiques structurelles sont observées. Par ailleurs les premiers modèles théoriques abordant le rhéochaos concernent ce phénomène [71, 129].

### Les alliages et l'effet Portevin-Le Chatellier

L'effet Portevin-Le Chatellier est un autre exemple de comportements spatio-temporels en rhéologie. Ce dernier concerne la déformation d'un alliage sous une traction à vitesse constante. L'alliage, après la réponse élastique, coule grâce à des réarrangements plastiques. Les déformations sont alors inhomogènes : des bandes macroscopiques (d'une dizaine de microns à quelques millimètres) se forment et se propagent orthogonalement à la direction de la vitesse [61, 84, 101]. Lors de cette instabilité, il a été clairement établi que la contrainte nécessaire aux déformations pouvait présenter des comportements temporels : aucun état stationnaire n'est alors jamais atteint [5, 6]. Il nous paraît important de citer ces travaux, car de nombreuses analogies phénoménologiques existent entre les concepts de la métallurgie et le monde des fluides complexes. Notamment lors de l'effet Portevin-Le Chatellier, les fluctuations temporelles semblent être corrélées à des bandes macroscopiques et des analogues de courbe d'écoulement comme celle présentée sur la figure 1.8.c (page 27) sont aussi présentes. Des analogies microscopiques existent aussi : les modèles théoriques de déformations des alliages reposent sur les concepts de mouvement des défauts caractéristiques (dislocations...), alors que dans de nombreux fluides complexes, les défauts texturaux jouent un grand rôle [104].

Par ailleurs, de nombreux travaux (notamment ceux d'Ananthakrishna *et al.* [5, 6]) ont rapporté l'existence de chaos déterministe lors de cette instabilité temporelle. Plusieurs modèles théoriques basés sur une approche microscopique du mouvement des dislocations,

présentent eux aussi des comportements chaotiques [7, 50]. Cependant, tout comme les travaux concernant les fluctuations dans les micelles géantes (cf. page 34), nous ne pensons pas que les outils utilisés pour caractériser les séries temporelles expérimentales permettent d'affirmer l'existence de chaos déterministe. Parmi l'ensemble des travaux à ce sujet, aucune bifurcation de Hopf ou autre transition vers un état chaotique n'a été mise en évidence à notre connaissance.

## 1.3 Les approches théoriques du « rhéochaos »

Il existe aujourd'hui peu de modèles décrivant les résultats expérimentaux décrits précédemment. Le but de cette section est de présenter brièvement les différents modèles que l'on peut trouver dans la littérature.

### 1.3.1 Les polymères cristaux liquides

Dans ce contexte de « rhéochaos », ce sont les premiers modèles qui ont considéré la dynamique temporelle d'un fluide complexe dans un écoulement de cisaillement. Grosso *et al.* ont décrit le couplage entre le paramètre d'ordre (*i.e.* l'orientation) d'une assemblée de batonnets rigides dans un écoulement de cisaillement simple [71]. Les interactions entre batonnets sont décrites à travers un potentiel du type champ moyen. Ce modèle présente des comportements chaotiques liés à la présence de non-linéarités dues au « volume exclu » du potentiel d'interaction. Les auteurs ont par ailleurs montré que l'état chaotique résultait d'une cascade de dédoublements de période. Citons aussi, un modèle plus récent reposant sur un ensemble d'équations couplant l'alignement des molécules et le tenseur des contraintes, présentant une cascade de dédoublements de période et un scénario de transition par intermittence [129].

### 1.3.2 Les matériaux mous vitreux

Récemment, un grand nombre d'équipes théoriques se sont intéressées aux comportements rhéologiques des matériaux mous vitreux [3, 49, 87, 117, 144, 148] et ce afin d'expliquer une grande diversité de phénomènes expérimentaux observés dans une vaste classe de matériaux désordonnés : contrainte seuil [99], vieillissement et rajeunissement [125, 149], stick-slip [118] et profils de vitesse inhomogènes [41, 48].

## Le modèle SGR et les approches de D. A. Head [35, 74, 75]

Parmi ces modèles, la phénoménologie du modèle SGR (« Soft Glassy Rheology ») a permis de concilier les approches dynamiques des systèmes vitreux (le « modèle de Bouchaud » [105]) et la rhéologie. Ce modèle rend ainsi compte phénoménologiquement, grâce à un unique paramètre  $x$  traduisant l'effet du « bruit » sur les processus de relaxation internes<sup>17</sup> du matériau, de comportements fréquemment observés : rhéofluidification et contrainte seuil [144]. Ce modèle spatialement homogène, décrit la dynamique d'un système vitreux soumis à un cisaillement  $\dot{\gamma}$  dans un paysage énergétique complexe. Ce paysage énergétique permet le phénomène de vieillissement, *i.e.* la relaxation lente vers l'état d'équilibre et la dépendance de cette relaxation avec l'âge du système. La température effective  $x$  et le cisaillement appliqué  $\dot{\gamma}$  permettent aux éléments mésoscopiques, caractérisés par leur énergie  $E$  et leur déformation  $l$ , de se réarranger plastiquement. Une fois qu'un réarrangement se produit, la déformation de l'élément redevient nulle et son énergie prend une valeur aléatoire dans le paysage énergétique.

D. A. Head *et al.* ont repris le modèle SGR en ajoutant une dépendance explicite de la température effective  $x$  en fonction des contraintes  $\sigma$  et des déformations  $l$  [74, 75]. Grâce à cette modification, les auteurs ont ainsi pu mettre en évidence l'existence de transitions rhéoépaississantes et de comportements hystérétiques pour certains choix de dépendance  $x(\sigma, l)$  au voisinage de la contrainte seuil. Pour certaines fonctions  $x(\sigma, l)$  et pour certaines gammes de paramètres, le cisaillement n'atteint jamais un état stationnaire : des oscillations sont alors observées. Dans ces articles, les auteurs soulignent le fait que la courbe d'écoulement ne présente aucune instabilité (comme celles décrites dans la section 1.1.3, page 26) et que le modèle est intrinsèquement spatialement homogène. Les oscillations sont alors proches de dynamiques de populations présentant des temps de retard comme observées en biologie par exemple (cf. références citées dans [74]).

À partir de ces modèles, Cates *et al.* ont écrit une équation permettant de décrire plus simplement ces processus de relaxation dans les matériaux mous [35]. Cette équation phénoménologique permet de mettre en avant les ingrédients nécessaires pour produire un comportement dynamique. Le modèle s'écrit simplement :

$$\begin{cases} \dot{\sigma} = \dot{\gamma} - R(\sigma) - \lambda \sigma_2, \\ \sigma_2 = \int_{-\infty}^t M_2(t - t') \sigma(t') dt'. \end{cases} \quad (1.22)$$

---

<sup>17</sup> Ce paramètre appelé température effective, est l'équivalent de la température pour les systèmes moléculaires.



La première équation décrit un solide élastique ( $\sigma \sim \gamma$ ) subissant des réarrangements plastiques, via des relaxations instantanées  $R(\sigma)$ , et retardées  $\sigma_2$ . Suivant le choix de la fonction  $M_2$  traduisant les réarrangements retardés au sein du matériau, les auteurs ont pu mettre en évidence l'existence de comportements oscillants en rhéologie et même d'une dynamique chaotique de basse dimensionnalité. Il est important de noter que la courbe d'écoulement du modèle (1.22) ne contient pas de zones instables comme celles présentes sur les courbes schématiques 1.8.c–d (page 27). L'origine de l'instabilité temporelle est uniquement liée à la présence de réarrangements retardés au sein du matériau.

L'ensemble de ces approches phénoménologiques a permis de montrer la possibilité de dynamiques oscillantes auto-entretenuës dans les matériaux mous vitreux. Il est important de souligner cependant, que ces modèles ne permettent pas de décrire les hétérogénéités spatiales observées dans certaines expériences [41, 118].

### Stick-slip et écoulements inhomogènes

Avec une toute autre approche, G. Picard *et al.*, suivant les travaux de C. Dercz [49, 117] de modélisation de la transition pâte–fluide dans les matériaux mous vitreux, a mis en évidence des dynamiques oscillantes. Ce modèle rend aussi compte des hétérogénéités spatiales du champ de vitesse observées dans certaines expériences [118]. Les équations reposent sur une relaxation de la contrainte via une équation du type Maxwell :

$$\partial_t \sigma = \dot{\gamma} - a \sigma, \quad (1.23)$$

faisant intervenir le paramètre  $a$ , appelé « fluidité » et obéissant à l'équation dynamique :

$$\partial_t a = -f(a) + g(a, \sigma, \dot{\gamma}), \quad (1.24)$$

où  $f$  et  $g$  sont des fonctions respectant les symétries du problème.

À ce modèle local, permettant de reproduire les phénomènes de vieillissement, de contrainte seuil et de rajeunissement sous cisaillement [49], G. Picard a ajouté des termes spatiaux traduisant la « diffusion » de la fluidité au sein de l'écoulement. Ce modèle spatial permet de remonter aux grandeurs globales  $\langle \sigma \rangle$  et  $\langle \dot{\gamma} \rangle$  mesurées en rhéologie (*e.g.* le couple  $\Gamma$  et la vitesse de rotation  $\Omega$  dans le cas de la géométrie de Couette). Le modèle rend compte notamment de comportements hystérétiques et de courbes d'écoulement comme celle de la figure 1.8.b (page 27). Pour certaines gammes de paramètres, le comportement rhéologique est non-stationnaire et présente des oscillations de relaxation, le profil de vitesse est alors inhomogène. Cette dynamique est proche du stick-slip : le matériau se fluidifie et s'épaissit périodiquement au sein de bandes localisées. Ces résultats (profils

de vitesse inhomogènes et stick-slip) sont aussi reproduits par les simulations numériques récentes effectuées par Varnik *et al.* [148].

Enfin, citons les travaux de A. Lemaître [87, 88] qui, à partir de la théorie phénoménologique des réarrangements plastiques (« shear transformation zone », STZ) et de processus activés, ont permis de poser un modèle d'équations pour la rhéologie des matériaux vitreux. Pour certaines gammes de paramètres, ce modèle spatialement homogène mène à un état oscillant via une bifurcation de Hopf. L'interprétation est alors donnée une fois de plus en termes de stick-slip. Notons que les expériences citées par cet auteur concernent plus la nanotribologie que la (macro-)rhéologie des fluides complexes. Comme souligné précédemment (cf. section 1.2.3, page 44), des comportements dynamiques chaotiques ont par ailleurs été observés dans des expériences de SFA [55, 56].

### 1.3.3 D'autres modèles théoriques ?

La liste dressée dans la section précédente n'est évidemment pas exhaustive. Elle concerne uniquement l'ensemble des travaux que nous avons rencontrés lors de cette thèse expérimentale. Il existe certainement d'autres modèles prédisant des comportements dynamiques en rhéologie. Cependant, il reste a priori de nombreuses questions ouvertes. En effet, la plupart de ces modèles sont basés sur des approches phénoménologiques et non microscopiques. Les ingrédients nécessaires pour construire des modèles susceptibles de décrire les dynamiques observées, notamment dans les systèmes lyotropes, n'ont pas été identifiés. Ceci est probablement lié au manque de données expérimentales qui permettraient à terme de mettre en avant des pistes théoriques pour l'élaboration de scénarii microscopiques.

## Objectifs de la thèse et organisation du manuscrit

L'objectif de cette thèse est de réaliser une étude expérimentale, aussi exhaustive que possible, sur une instabilité temporelle du type « rhéochaos ». Nous avons décidé pour cela d'étudier plus en avant la dynamique observée au cours de la transition de feuilletage dans le système lyotrope SDS/Octanol/Eau/NaCl. Le choix de ce fluide complexe est motivé par l'existence des travaux préliminaires effectuées par A.-S. Wunenburger sur les oscillations proprement dites [83, 155], mais aussi par la diversité des études expérimentales réalisées sur ce même fluide [89, 90, 142, 143]. Un des objectifs de cette thèse est de s'appuyer sur la théorie des systèmes dynamiques pour identifier les paramètres pertinents de ce phénomène. Comme suggéré dans les travaux d'A.-S. Wunenburger [155], des dynamiques complexes telles que des comportements chaotiques, sont attendues. Enfin, un objectif majeur est aussi

de connaître l'influence des degrés de libertés spatiaux. En effet, comme souligné tout au long cette revue, il semble impossible de pouvoir « découpler » la dynamique temporelle observée des hétérogénéités spatiales. Nous pensons a priori, qu'un des enjeux majeurs est de savoir si oui ou non, l'espace est une dimension pertinente dans les phénomènes de rhéochaos. C'est pour cette raison que nous avons développé un montage optique de diffusion dynamique de la lumière sous écoulement afin d'accéder aux profils de vitesse lors de l'instabilité.

Le reste de ce manuscrit est organisé de la manière suivante :

- dans le chapitre suivant, nous présenterons des mesures rhéologiques globales sur le système de phase lamellaire lyotrope SDS/Octanol/Eau/NaCl connu pour présenter des comportements dynamiques (cf. section 1.2.2, page 37). Nous mettrons en avant différents régimes dynamiques : des oscillations de relaxation aux comportements aperiodiques. Une étude quantitative du couplage entre la structure et l'écoulement sera présentée. Nous concluons cette partie en présentant une étude de cette instabilité à l'aide de la théorie des systèmes dynamiques. Les conclusions intermédiaires nous imposeront d'aller vers une approche locale de l'instabilité temporelle ;
- le troisième chapitre concernera la mise en place d'un dispositif de diffusion dynamique hétérodyne de la lumière (« Dynamic Light Scattering », DLS) sous écoulement de Couette. Ce dispositif permet d'accéder localement à la vitesse du fluide complexe en différents points de l'entrefer de la cellule de Couette et de mesurer ainsi des profils de vitesse. Les résolutions spatiales et temporelles y seront discutées ainsi que le problème théorique de la diffusion de la lumière par une assemblée de particules dans un écoulement de cisaillement. Ce montage nous permettra d'effectuer simultanément la mesure des profils de vitesse et d'enregistrer la rhéologie globale et ainsi d'accéder *localement* à la rhéologie du fluide ;
- le quatrième chapitre sera dédié aux concepts de « rhéologie locale » à l'aide de deux exemples : une solution diluée de micelles géantes et une émulsion concentrée. Les modèles locaux de « shear-banding » ainsi que les notions de lubrification y seront abordées. Ce chapitre permet aussi de montrer la capacité du montage de vélocimétrie à résoudre les phénomènes de glissement et de shear-banding ;
- enfin le dernier chapitre concernera l'approche locale du rhéochaos à l'aide du montage de DLS présenté précédemment. Nous mettrons alors en évidence la phénoménologie du shear-banding lorsque les réponses rhéologiques sont stationnaires au voisinage de la transition de feuilletage. Ce dernier chapitre apportera alors la preuve que la complexité temporelle étudiée au chapitre 2 résulte d'une complexité spatio-temporelle de l'écoulement.

## Chapitre 2

# Comportements dynamiques au voisinage d'une transition induite par le cisaillement : approche globale du rhéochaos

Ce chapitre concerne une étude exhaustive des comportements dynamiques d'une phase lamellaire lyotrope au voisinage d'une transition induite par le cisaillement. On appellera par la suite « comportements dynamiques », toute réponse non-stationnaire observée dans une expérience de rhéologie. Les travaux préliminaires d'A.-S. Wunenburger [83, 155] ont mis en évidence différents régimes dynamiques du cisaillement, au voisinage d'une transition de « feuilletage » dans la texture oignon de la phase lamellaire SDS/Octanol/Eau/NaCl. Dans une première partie, nous présenterons le fluide étudié, brièvement décrit dans la section 1.2.2 (page 37), ainsi que le montage expérimental utilisé pour étudier cette transition hors d'équilibre. Dans une seconde partie, les dynamiques observées ainsi que la corrélation entre les oscillations de viscosité et la texture du fluide seront présentées. Dans une troisième partie, nous introduirons les concepts fondamentaux de la théorie des systèmes dynamiques. Malgré de nombreux éléments indiquant la présence de chaos déterministe, nous verrons que nous *ne* sommes *pas* en mesure de conclure que les oscillations observées sont décrites par un système dynamique de basse dimensionnalité. Enfin, ces conclusions intermédiaires nous amèneront à aborder l'influence des degrés de liberté spatiaux sur cette instabilité. La référence [136] constitue une partie des résultats présentés dans ce chapitre.

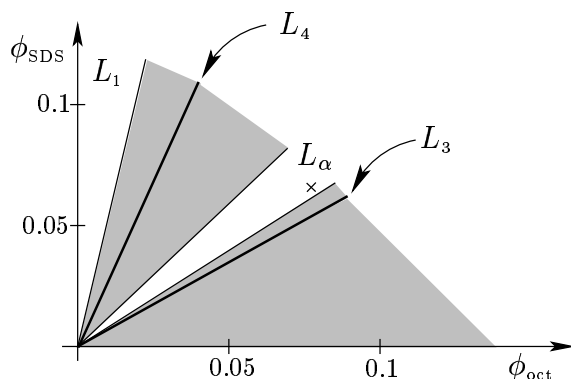


FIG. 2.1 – Diagramme de phase du système SDS/Octanol/Eau salée à  $20 \text{ g.L}^{-1}$  à température ambiante. En diminuant le taux d’alcool, on obtient successivement une phase éponge  $L_3$ , une phase lamellaire  $L_\alpha$ , une phase de vésicules  $L_4$  et une phase de micelles  $L_1$ . Les zones grisées indiquent les coexistences entre les différentes phases. La croix indique la position de la phase étudiée au cours de cette thèse. Le diagramme est issu de la référence [78].

## 2.1 Le système et les outils expérimentaux

### 2.1.1 La phase lamellaire lyotrope SDS/Octanol/Eau/NaCl

Le système pseudo-ternaire composé de Sodium Dodécyl Sulfate (SDS), d’octanol et d’eau salée (NaCl) est connu pour présenter une grande diversité de structures auto-assemblées [78]. La figure 2.1 présente les différentes phases de ce système en fonction des fractions massiques de SDS et d’octanol pour la concentration en sel de  $20 \text{ g.L}^{-1}$ . Pour les fractions massiques suivantes :  $\phi_{\text{SDS}} = 6.5\%$ ,  $\phi_{\text{oct}} = 7.8\%$ , ce système présente une phase diluée de membranes du type  $L_\alpha$ . Le pas smectique  $d$  de cette phase est  $15 \text{ nm}$  et l’épaisseur des bicouches est  $2 \text{ nm}$ . Ce système est stabilisé par les interactions stériques entre les membranes fluctuantes : ce sont les interactions dites d’« Helfrich » [77]. Ce système est particulièrement sensible à la température : à  $T = 35^\circ\text{C}$ , un diphasique  $L_\alpha$ - $L_3$  apparaît. La valeur de cette transition est extrêmement sensible à la fraction d’octanol présente dans la solution.

L’effet du cisaillement sur la texture de cette phase lamellaire a été étudié par P. Sierro au cours de sa thèse [142, 143]. Ces résultats sont schématiquement représentés sur le diagramme d’orientation de la figure 2.2. Nous ne nous intéresserons par la suite qu’à la transition  $\text{II} \rightarrow \text{IV}$ , dite transition de « feuilletage » décrite dans la section 1.2.2 (page 37), où des oscillations de viscosité ont été mises en évidence par A.-S. Wunenburger [155].

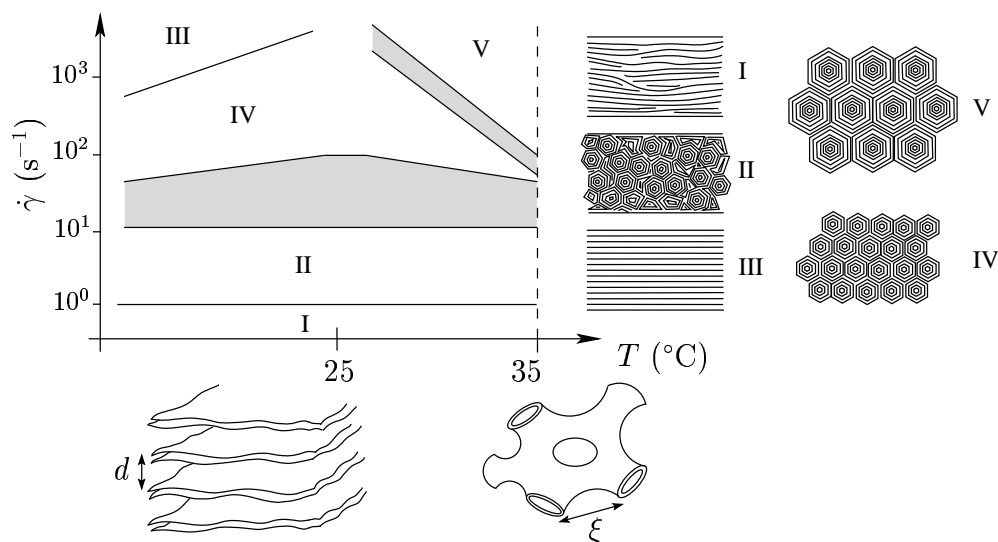


FIG. 2.2 – Diagramme d'orientation ( $\dot{\gamma}$  vs.  $T$ ) du système SDS/Octanol/Eau/NaCl. Les différentes textures sont : (I) texture de phase lamellaire partiellement orientée, (II) texture d'ognons désordonnés, (III) phase lamellaire orientée, (IV) texture feuilletée d'ognons ordonnés et (V) texture feuilletée de gros oignons ordonnés. Les zones grisées indiquent les coexistences entre les états lorsque le cisaillement est imposé. Pour des températures  $T < 35^\circ\text{C}$ , la phase lamellaire est l'état d'équilibre thermodynamique. Pour  $T > 35^\circ\text{C}$ , un diphasique  $L_\alpha$ - $L_3$  apparaît.  $d$  est le pas smectique de la phase  $L_\alpha$  et  $\xi$  la distance moyenne entre les pores de la phase  $L_3$ . La courbe est reproduite à partir de la référence [142].

Les propriétés sous cisaillement de cette phase dépendent très fortement de la concentration en octanol. Pour gagner en reproductibilité, les résultats présentés dans ce chapitre ont tous été obtenus à partir d'une unique formulation d'un litre de phase lamellaire. Pour toute nouvelle formulation, la température de transition  $L_\alpha$ - $L_3$  ainsi que les positions des transitions de textures sont complètement différentes.

### 2.1.2 Dispositif expérimental : couplage structure-écoulement

Afin d'accéder aux propriétés rhéologiques du fluide, nous utilisons le montage décrit sur la figure 2.3. Pour mesurer la viscosité, nous utilisons un montage classique de rhéologie avec différentes géométries de Couette<sup>1</sup> : entrefers d'épaisseurs  $e = 1$  et  $e = 0.5$  mm,

<sup>1</sup> Ce sont plus précisément des géométries de Mooney-Couette. Ces dernières sont constituées d'un cylindre dont la base est conique et caractérisé par un angle  $\alpha$ . Cet angle est choisi de sorte que le cisaillement sous la partie conique soit égal au cisaillement du fluide entre les deux cylindres. Ce dispositif

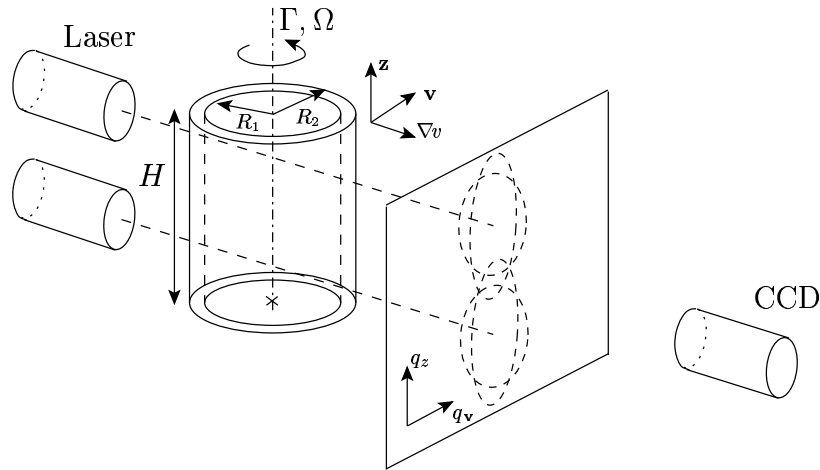


FIG. 2.3 – Montage expérimental. Les mesures rhéologiques sont obtenues en géométrie de Couette et les informations structurales par diffusion statique de la lumière. Une circulation d'eau autour de la cellule permet de thermostatier le fluide. Un chapeau thermostaté couvrant la cellule permet d'éviter l'évaporation de l'eau présente dans le fluide cisailé. Les paramètres géométriques des deux cellules utilisées sont données par :  $H = 30$  mm,  $R_2 = 25$  mm,  $R_1 = 24$  et  $24.5$  mm.

rayon externe  $R_2 = 25$  mm et hauteur  $H = 30$  mm. Soulignons que les géométries utilisées sont usinées en Plexiglas et permettent ainsi une visualisation directe du fluide. Un rhéomètre commercial (AR 1000N, TA Instruments) permet d'imposer un couple  $\Gamma$  sur l'axe du rhéomètre et mesure simultanément sa vitesse de rotation  $\Omega$ . De ces deux grandeurs *globales* sont déduites les deux quantités *locales*, contrainte  $\sigma$  et cisaillement  $\dot{\gamma}$ , moyennées sur l'entrefer de la cellule de Couette grâce aux relations :

$$\begin{cases} \sigma = \frac{R_1^2 + R_2^2}{4\pi H R_1^2 R_2^2} \Gamma, \\ \dot{\gamma} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Omega. \end{cases} \quad (2.1)$$

Avec ces définitions,  $\sigma/\dot{\gamma}$  correspond sans aucune approximation à la viscosité  $\eta$  lorsqu'un fluide newtonien est cisailé (cf. page 25).

Afin de mesurer l'effet du cisaillement sur la texture du fluide, deux faisceaux laser (He-Ne,  $\lambda = 632.8$  nm, puissance 15 mW) traversent la cellule selon la direction  $\nabla v$ . L'utilisation de deux faisceaux distincts permet de connaître l'état de la structure du fluide pour différentes hauteurs dans la cellule. Les figures de diffraction sont collectées sur assure un cisaillement homogène dans toute la cellule et augmente ainsi la sensibilité des mesures de viscosité.

un écran dans le plan  $(q_z, q_v)$ , puis numérisées grâce à une caméra CCD (« charge-coupled device », Cohu). Comme on peut le voir sur la figure 2.3, les faisceaux traversent deux fois la cellule de Couette. Pour chaque laser, deux figures de diffraction superposées sont donc observées. La première figure est déformée par les différents dioptries optiques constituant la cellule de Couette.

Un système de circulation d'eau autour de la cellule de Couette permet la thermostatation du fluide avec une précision de  $\pm 0.1^\circ\text{C}$ . La phase étudiée est très sensible aux fractions massiques d'octanol et de SDS. Si aucune précaution n'est prise, l'évaporation de l'eau rend toute expérience de plus de 2–3 h complètement irréproductible. Les réponses rhéologiques du système étudié sont particulièrement longues : les expériences typiques que nous avons réalisées durent plus d'une journée. Il était donc crucial de contrôler parfaitement l'évaporation afin de conserver une fraction massique d'octanol constante dans l'échantillon. Pour des questions d'encombrements, il est difficile de saturer l'atmosphère de travail. Nous avons donc décidé afin d'éviter la condensation de l'eau sur le haut de la cellule de Couette, de réaliser un « chapeau », lui-même thermostaté à  $1^\circ\text{C}$  de plus que la circulation d'eau. Pour éviter tout contact entre le fluide étudié et l'extérieur de la cellule, un joint « tournant » est réalisé entre le chapeau thermostaté et le rotor, à l'aide d'une rigole creusée dans le rotor et remplie d'huile silicone. Grâce à ce système, des expériences de plus de 80 h ont pu être réalisées sans effets notables de l'évaporation. Une photo de ce système est présentée dans l'annexe A, page 233.

### 2.1.3 La transition de feuilletage

Une courbe d'écoulement caractéristique de la phase étudiée à une température  $T = 26^\circ\text{C}$  est présentée sur la figure 2.4, ainsi que les différentes figures de diffraction correspondantes dans différentes zones de cisaillement. Cette courbe a été obtenue pour différents paliers de contrainte espacés de  $\delta\sigma = 0.5$  Pa et durant chacun  $\delta t = 2$  h. Les réponses temporelles du cisaillement sont présentées sur la figure 2.5. Les mesures  $\dot{\gamma}(t)$  permettent la définition approximative d'un état stationnaire pour chaque palier de contrainte appliquée. Les cisaillements reportés sur la courbe d'écoulement correspondent donc aux mesures des valeurs stationnaires extraites des séries  $\dot{\gamma}(t)$ . Dès le premier palier de contrainte et après un transitoire d'une dizaine de minutes, la texture d'ognons désordonnés apparaît (cf. fig. 2.6.a). La figure de diffraction correspondante est un anneau isotrope dans le plan  $(q_z, q_v)$  (cf. fig. 2.4). Le rayon moyen  $q_m$  de l'anneau est relié à la taille moyenne des ognons



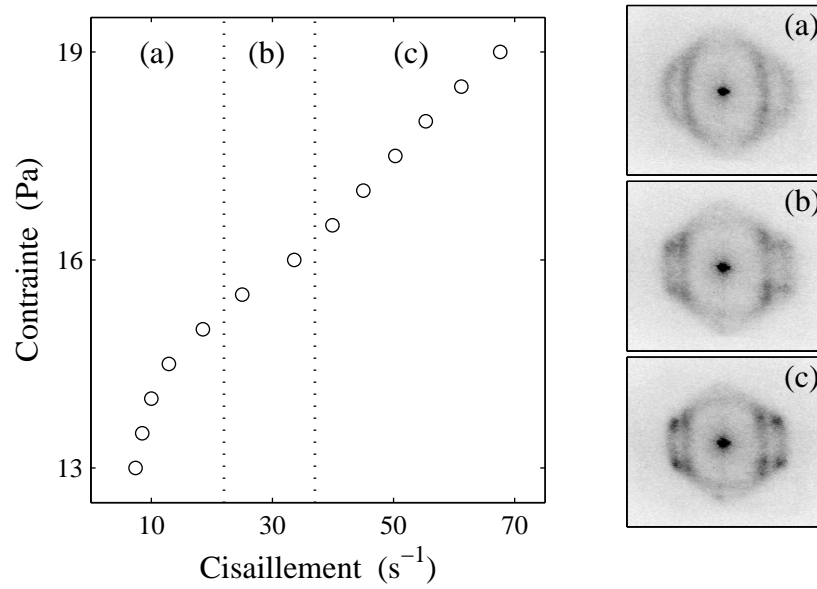


FIG. 2.4 – Courbe d'écoulement obtenue à  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $e = 1\text{ mm}$ . Les régions (a), (b) et (c) sont caractérisées par différentes figures de diffraction. Les figures de diffraction correspondent à (a)  $\dot{\gamma} \simeq 10\text{ s}^{-1}$ , (b)  $\dot{\gamma} \simeq 30\text{ s}^{-1}$  et (c)  $\dot{\gamma} \simeq 40\text{ s}^{-1}$ .

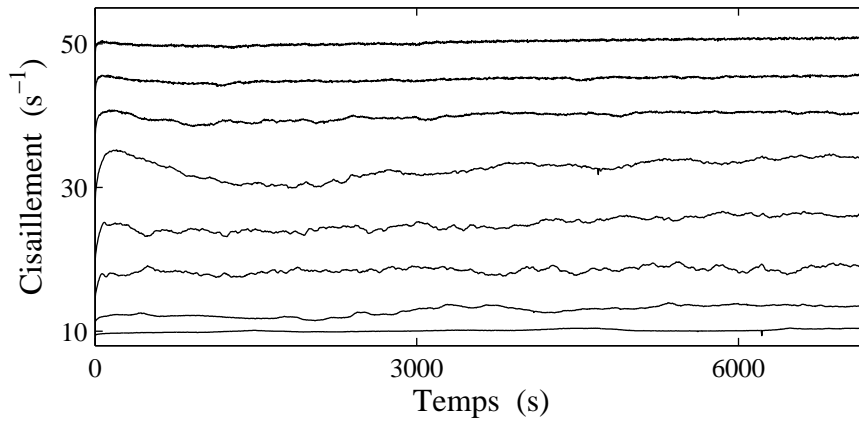


FIG. 2.5 – Réponses temporelles du cisaillement pour l'intervalle de contrainte  $14 \rightarrow 17.5\text{ Pa}$ , correspondant à la courbe d'écoulement de la figure 2.4 obtenue à  $T = 26^\circ\text{C}$ .

via la relation<sup>2</sup> :

$$R \simeq \frac{2\pi}{q_m}. \quad (2.2)$$

<sup>2</sup> Cette dernière doit être en réalité corrigée des effets optiques induits par la géométrie de Couette, cf. chapitre 3, page 118.

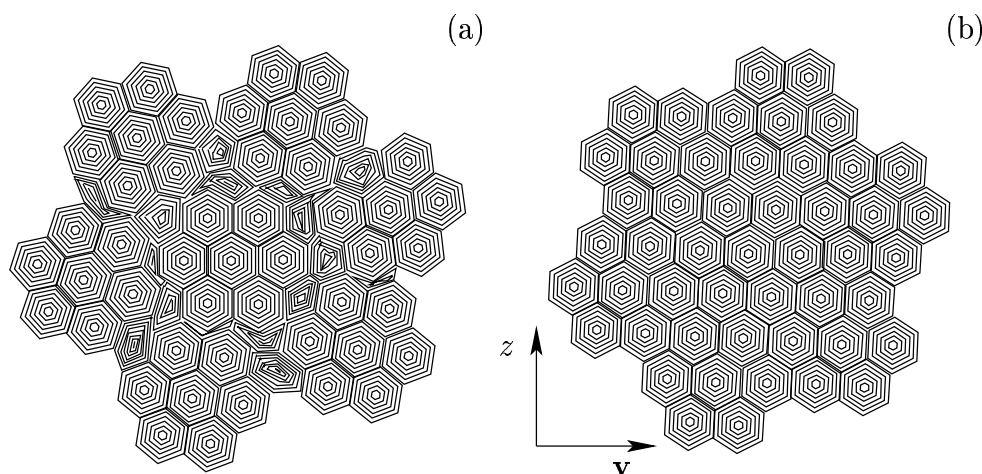


FIG. 2.6 – (a) Texture d'ognons désordonnés et (b) état feuilleté.

La taille de l'anneau augmente avec le cisaillement et la loi  $R \propto \dot{\gamma}^{-0.5}$  a été vérifiée expérimentalement sur ce système [142]. À une contrainte critique  $\sigma_c \simeq 15$  Pa (on mesure alors  $\dot{\gamma}_c \simeq 20$  s<sup>-1</sup>), six pics de diffraction faiblement marqués, apparaissent sur l'anneau. Ces derniers traduisent dans l'espace réel, l'apparition de corrélations spatiales à grande distance entre les ognons. Les ognons sont alors organisés dans des plans orthogonaux au gradient de vitesse  $\nabla v$  selon un réseau hexagonal (cf. fig. 2.6.b). Chaque plan est orienté suivant la même direction. Notons que les deux pics dans la direction  $q_z$  sont quasiment inexistantes : ceci est probablement lié au mouvement du type « zig-zag » des plans d'ognons dans l'écoulement de cisaillement, induisant des décorrélations spatiales dans la direction de la vorticit   $z$  [2, 54].   plus haut cisaillement ( $\dot{\gamma} \geq 40$  s<sup>-1</sup>), les pics deviennent de plus en plus contrast s comme on peut le voir sur la figure de diffraction de la figure 2.4. Il est impossible avec le montage utilis , de savoir si cet effet est li    des corr lations spatiales de plus en plus marqu es, ou   un m canisme de nucl ation et de croissance d'une zone ordonn e dans une structure d sordonn e. Notons enfin, que cette transition est caract ris e par une signature rh ologique nette : l' chantillon se fluidifie. La viscosit  chute approximativement de 1   0.3 Pa.s lorsque le cisaillement augmente de  $\dot{\gamma} \simeq 10$     $\dot{\gamma} \simeq 50$  s<sup>-1</sup>.

Les r ponses temporelles du cisaillement et la courbe d' coulement d pendent de mani re drastique de la temp rature. Pour des temp ratures  $T < T_c = 27^\circ\text{C}$ , les courbes rh ologiques sont continues et il est toujours possible de d finir approximativement un  tat stationnaire. En effet, comme on peut le voir sur la figure 2.5, o  les r ponses temporelles du cisaillement correspondant   la figure 2.4 sont pr sent es, l'intervalle  $\delta t$  pendant lequel la contrainte est impos e permet la d finition d'un  tat asymptotique stationnaire,

*i.e.*  $\partial_t \dot{\gamma} \simeq 0$ .

En réalité, au voisinage de la transition (*i.e.*  $\dot{\gamma} \simeq 30 \text{ s}^{-1}$ ), l'état stationnaire devient légèrement bruité. Aucune fréquence caractéristique ne peut être extraite de ces séries temporelles. À la précision  $\delta t$  de cette expérience, il ne nous est pas permis de déterminer la nature mathématique de ce bruit : ce dernier pourrait correspondre à une dynamique brownienne, comme le suggère les analyses de Fourier réalisées. De grandes précautions doivent cependant être prises étant donné le peu de statistique étudiée (7200 points). L'origine de ce bruit provient probablement de l'augmentation de la susceptibilité du fluide à l'approche de la transition hors-équilibre.

Lorsque la température est augmentée ( $T \geq T_c = 27^\circ\text{C}$ ), les réponses temporelles changent de manière surprenante : il devient parfois impossible de définir un état stationnaire. Une réponse typique du cisaillement à  $T = 31^\circ\text{C}$ , sur un échantillon non préalablement cisailé et à une contrainte fixe  $\sigma = 15 \text{ Pa}$  proche de  $\sigma_c$ , est présentée sur la figure 2.7. Après un transitoire de l'ordre de 30 min environ, la texture d'ognons désordonnés apparaît, comme on peut le voir grâce aux figures de diffraction enregistrées. À partir de 10000 s, le cisaillement présente de petites oscillations caractérisées par une période d'environ 600 s et une amplitude de l'ordre de  $4 \text{ s}^{-1}$ . Ces oscillations transitoires disparaissent enfin à  $t = 25000 \text{ s}$ , un état stationnaire peut alors être défini. L'effet de

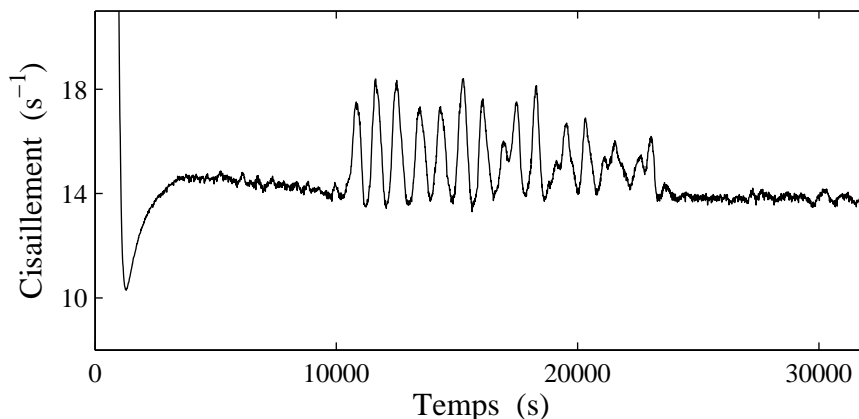


FIG. 2.7 – Réponse typique du cisaillement au voisinage de la transition de feuilletage pour des températures  $T > T_c$  ( $\sigma = 15 \text{ Pa}$  et  $T = 31^\circ\text{C}$ ).

la température au voisinage de la transition de feuilletage est présenté sur la figure 2.8. Pour des températures  $T \geq T_c$ , des oscillations de cisaillement sont présentes au voisinage de la transition, il est alors difficile de définir un état stationnaire. Loin de la transition hors-équilibre, le cisaillement relaxe toujours vers un état stationnaire même pour  $T \geq T_c$ .

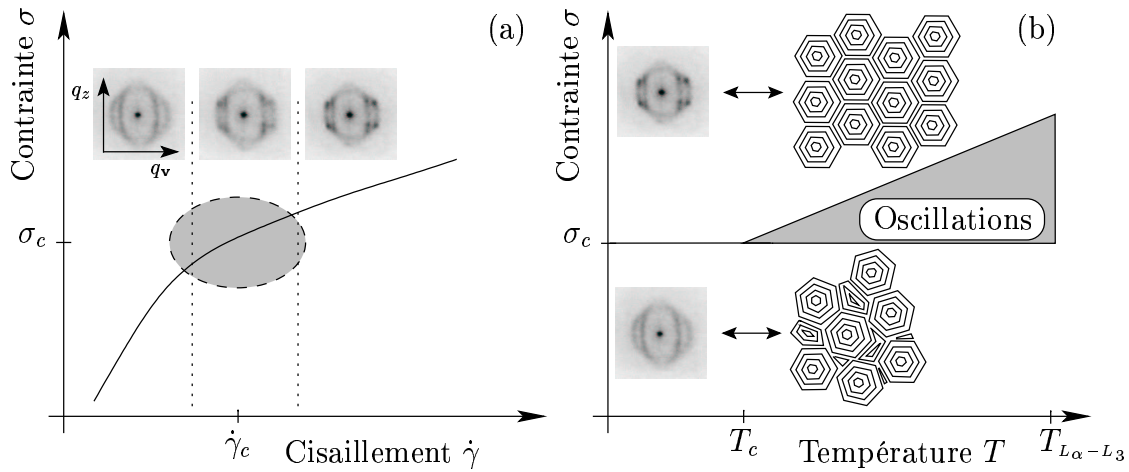


FIG. 2.8 – (a) Courbe d'écoulement classique au voisinage de la transition de feuilletage. À bas cisaillement, la figure de diffraction dans le plan  $(q_z, q_v)$  est un anneau isotrope. À  $\sigma_c \simeq 15$  Pa et  $\dot{\gamma}_c \simeq 20$  s<sup>-1</sup> des pics apparaissent sur l'anneau. Ces derniers sont de plus en plus contrastés lorsque le cisaillement est augmenté. La zone grisée correspond aux comportements dynamiques du cisaillement observés pour des températures  $T \geq T_c = 27^\circ\text{C}$ . (b) Diagramme d'orientation  $\sigma$  vs.  $T$ . Pour  $T \geq T_c$ , le cisaillement présente des oscillations au voisinage de la transition. La transition entre la phase lamellaire et la phase éponge a lieu à  $35^\circ\text{C}$  dans le système étudié.

La section suivante présente une étude systématique des différents régimes dynamiques présents dans la zone grisée du diagramme 2.8.

## 2.2 Comportements dynamiques et couplage structure-écoulement

Afin de mettre en avant les différentes dynamiques asymptotiques (*i.e.* non-transitoires) au voisinage de la transition de feuilletage, des protocoles rhéologiques bien définis doivent être utilisés pour gagner en reproductibilité. En effet, comme souligné précédemment, les transitoires peuvent être extrêmement longs au voisinage de la transition : le temps d'attente  $\delta t$  de chaque palier de contrainte appliquée est donc un paramètre pertinent. Si  $\delta t < 1000$  s, aucun état stationnaire ne peut clairement être défini : les courbes d'écoulement correspondantes sont complètement irreproductibles et dépendent des conditions initiales de l'expérience. Un compromis avec l'évaporation doit donc être trouvé afin d'utiliser les intervalles  $\delta t$  les plus longs possibles. Un autre paramètre s'avère crucial : il s'agit

de l'incrément de contrainte  $\delta\sigma$  entre chaque palier. Si  $\delta\sigma > 1$  Pa, les comportements temporels peuvent être manqués à cause de l'étroitesse de la région dynamique. Un protocole caractérisé par un petit incrément  $\delta\sigma$  et par un long temps d'attente  $\delta t$  correspond à une approche quasistatique de la transition. Soulignons une fois de plus qu'un compromis doit être trouvé, car l'évaporation même légère de l'échantillon impose une durée maximale pour l'expérience (environ 80 h). Dans les sections suivantes, nous présentons les résultats obtenus pour différents protocoles à  $T = 30^\circ\text{C}$  dans la géométrie de Couette possédant un entrefer d'épaisseur  $e = 1$  mm.

### 2.2.1 Protocole I : $\delta\sigma = 0.5$ Pa, $\delta t = 7200$ s, entrefer $e = 1$ mm

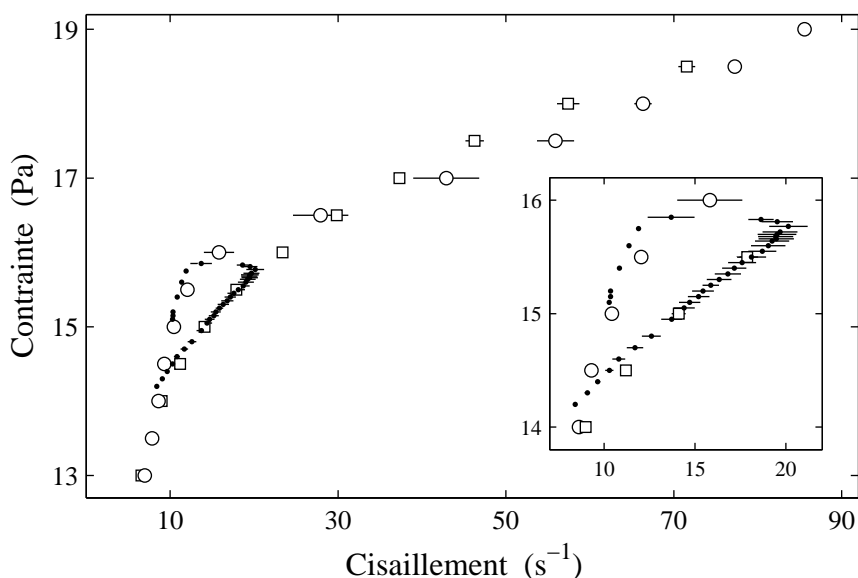


FIG. 2.9 – Courbe d'écoulement à  $T = 30^\circ\text{C}$ . Valeurs moyennes ( $\circ, \square$ ) du cisaillement avec le protocole I, pour deux chemins différents : ( $\circ$ ) montée de la contrainte appliquée et ( $\square$ ) descente. Les points ( $\cdot$ ) correspondent au protocole II. Les barres d'erreurs sont les déviations standard des états oscillants. L'insert est centré sur la boucle d'hystérèse au voisinage de la transition de feuilletage.

Lors de ce protocole (noté I, par la suite), la contrainte est appliquée de façon croissante de 13 à 19 Pa, puis de manière décroissante de 19 à 13 Pa. L'incrément de contrainte entre chaque palier est  $\delta\sigma = 0.5$  Pa et la durée de ces derniers est  $\delta t = 7200$  s. La courbe rhéologique est représentée sur la figure 2.9, chaque valeur correspond à la valeur moyenne du

cisaillement mesuré. Pour plus de clarté la figure 2.10 présente schématiquement les résultats suivants. La courbe d'écoulement comporte différents régimes de réponses temporelles

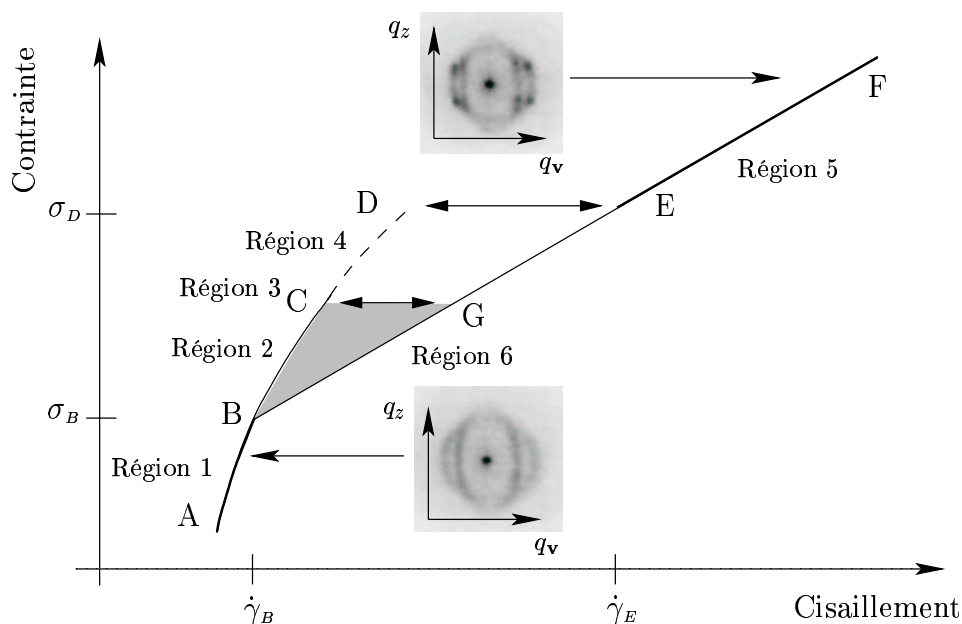


FIG. 2.10 – Courbe d'écoulement schématique pour  $T \geq T_c$ . Les flèches indiquent les oscillations entre les branches  $B \rightarrow D$  et  $B \rightarrow E$ . Lignes continues épaisses : états stationnaires. Lignes fines : minima et maxima des oscillations. Courbe pointillée : branche métastable. La zone grisée est la zone bistable.

(cf. fig. 2.11). Lorsque la contrainte est augmentée, les régions suivantes sont observées successivement.

- Région 1 ( $A \rightarrow B$ ) : le cisaillement relaxe vers un état stationnaire d'ognons désordonnés (cf. fig. 2.11.a).

- Région 2 ( $B \rightarrow C$ ) : du bruit apparaît sur cette branche stationnaire (cf. fig. 2.11.b). Ce dernier est caractérisé par de petites oscillations de période 600 s environ. L'amplitude de ces oscillations est de l'ordre de  $1 \text{ s}^{-1}$ .

- Région 3 ( $C$ ) : après un transitoire, le cisaillement présente de petites oscillations régulières caractérisées par une période de 600 s (cf. fig. 2.11.c). Des pics faiblement contrastés apparaissent sur l'anneau de diffraction, indiquant l'apparition de corrélations spatiales entre les ognons.

- Région 4 ( $C \rightarrow D$ ) : le cisaillement présente de grandes oscillations caractérisées par une amplitude de  $15 \text{ s}^{-1}$  environ (cf. fig. 2.11.d). Lors de ce régime, les figures de diffraction indiquent clairement une corrélation entre la dynamique rhéologique et une oscillation de

la texture du fluide : le système oscille entre un état peu ordonné (faible cisaillement) et un état ordonné (fort cisaillement). Ces oscillations sont *métastables* : si on attend suffisamment longtemps ( $\delta t \simeq 2-3$  h), le cisaillement relaxe vers la branche  $G \rightarrow F$ .

– Région 5 ( $E \rightarrow F$ ) : le cisaillement relaxe vers une branche stationnaire légèrement bruitée (cf. fig. 2.11.e). La figure de diffraction est caractéristique de l'état feuilleté. Lorsque la contrainte est appliquée de façon décroissante, les régions observées sont différentes.

– Région 6 ( $E \rightarrow B$ ) : un état dynamique complexe apparaît (cf. fig. 2.11.f). Ce dernier comporte une multitude de fréquences centrées autour de 300 s. L'amplitude moyenne de ces oscillations est de l'ordre de  $5 \text{ s}^{-1}$ . Cet état dynamique disparaît à l'approche du point B. Au-delà, le cisaillement relaxe à nouveau vers la branche stationnaire  $B \rightarrow A$ .

Nous reviendrons longuement sur la question de l'analyse de ces dynamiques temporelles dans la section 2.4. Certaines remarques peuvent être formulées : (i) la branche suivie lorsque la contrainte est appliquée de façon croissante ( $A \rightarrow D \rightarrow F$ ) est différente de celle suivie lorsque la contrainte est diminuée ( $F \rightarrow A$ ). La courbe semble donc présenter un comportement hystérétique ; (ii) différentes oscillations présentant des périodes de l'ordre de 600 s sont présentes au voisinage de la transition.

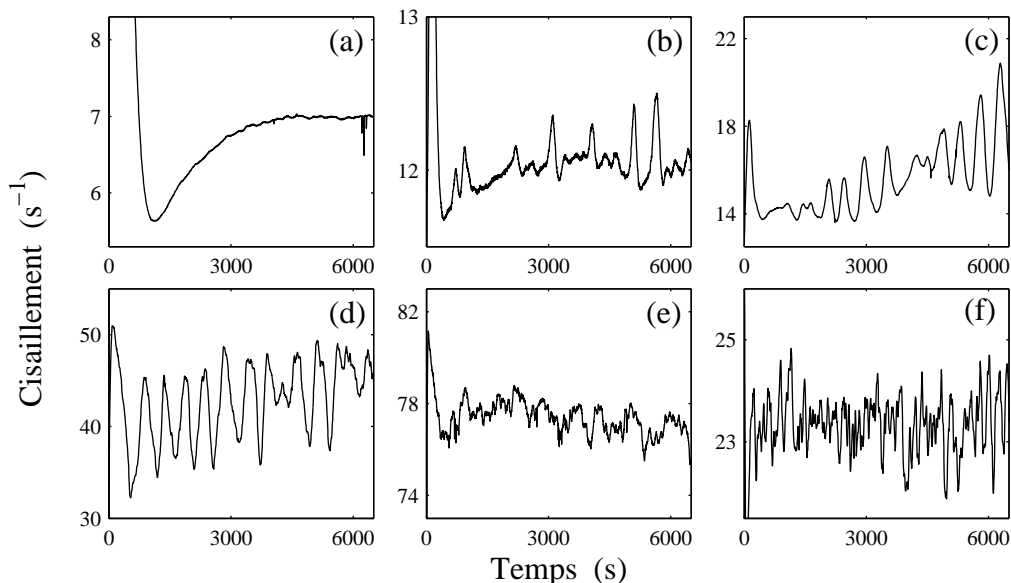


FIG. 2.11 – Réponses temporelles du cisaillement correspondant aux différentes régions de la courbe d'écoulement de la figure 2.9. (a) Région 1,  $\sigma = 13$  Pa. (b) Région 2,  $\sigma = 15.5$  Pa. (c) Région 3,  $\sigma = 16$  Pa. (d) Région 4,  $\sigma = 17$  Pa, (e) Région 5,  $\sigma = 18.5$  Pa et (f) Région 6,  $\sigma = 16$  Pa.

Comme le prédit la théorie des systèmes dynamiques, au voisinage de comportements hystérétiques et oscillants, des dynamiques riches telles que la quasipériodicité ou des comportements chaotiques sont attendues (cf. section 2.4.1, page 87) [9, 128]. Cependant comme le montre le protocole I, le temps d'attente  $\delta t$  n'est probablement pas suffisamment long pour pouvoir étudier des comportements asymptotiques. Cela est particulièrement clair pour la dynamique présente au point C (cf. fig. 2.11.c), ou encore pour les oscillations observées dans la région métastable  $C \rightarrow D$  (cf. fig. 2.11.d). Afin de pouvoir mettre en évidence les dynamiques prédites par la théorie des systèmes dynamiques, nous avons réitéré ces expériences avec un protocole quasistatique défini par  $\delta\sigma \simeq 0.1$  Pa et  $\delta t \simeq 15000$  s, en espérant ainsi obtenir des états asymptotiques.

### 2.2.2 Protocole II : $\delta\sigma \simeq 0.1$ Pa, $\delta t \simeq 15000$ s, entrefer $e = 1$ mm

L'incrément de contrainte et l'intervalle de temps sont approximativement :  $\delta\sigma \simeq 0.1$  Pa et  $\delta t \simeq 15000$  s respectivement. Ces valeurs correspondent au plus grand intervalle de temps et au plus petit incrément de contrainte utilisés. Avec ce protocole (noté II), il est évidemment impossible d'explorer toutes les régions dynamiques en une unique expérience (cf. fig. 2.9). La partie intéressante concerne les régimes présentant des oscillations. Nous avons donc décidé d'appliquer la contrainte du point B au point C. Au-delà de C, le cisaillement dérive très lentement vers le point G. Avec ce protocole, la branche  $C \rightarrow D$  observée précédemment n'existe plus : les grandes oscillations observées avec le protocole I sont métastables. Le chemin suivi est donc : région 2  $\rightarrow$  région 3  $\rightarrow$  région 6. Lorsque la contrainte est imposée de manière décroissante, le chemin suivi est région 6  $\rightarrow$  région 1. Ce protocole confirme le comportement hystérétique de la courbe d'écoulement au voisinage de la transition de feuilletage (cf. fig. 2.9). Par ailleurs, ce protocole nous a permis d'enregistrer les états asymptotiques dynamiques suivants.

- La région 2 correspond comme pour le protocole I, à une branche légèrement bruitée. Comme on peut le voir sur la figure 2.12, ce bruit est caractérisé par des oscillations de faible amplitude ( $1 \text{ s}^{-1}$ ) et de période 600 s environ. Soulignons qu'à la précision  $\delta t$  du protocole II (soit  $\simeq 5$  h), cet état semble asymptotique.

- Au point C, on observe des oscillations apériodiques du cisaillement (cf. fig. 2.13). Ces dernières sont caractérisées par une fréquence moyenne de l'ordre de 600 s et une amplitude d'environ  $3 \text{ s}^{-1}$ . Cet état apériodique présente une fréquence bien définie comme le montre le spectre de puissance de la figure 2.14.a. Cette série temporelle correspond à une oscillation entre une ligne de base quasiment constante ( $\dot{\gamma} \simeq 12 \text{ s}^{-1}$ ) et différentes valeurs du cisaillement comprises entre 13 et  $15 \text{ s}^{-1}$ . Par ailleurs, la zone d'existence de ces



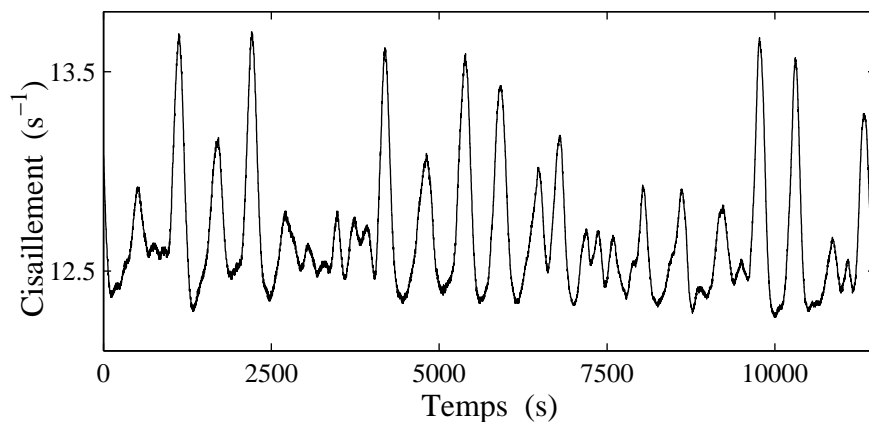


FIG. 2.12 – Dynamique bruitée observée dans la région 2 (B → C) avec le protocole II. Ce bruit est composé de petites oscillations de période 600 s environ.

oscillations est extrêmement étroite, environ 0.05 Pa et les transitoires de ces dynamiques atteignent plusieurs heures. Il est donc difficile d'étudier la dynamique observée au point C : malgré tout nos efforts, l'évaporation induit une dérive du cisaillement vers la dynamique complexe de la région 6. Malgré ce problème, des séries temporelles de plus de 80 oscillations ont pu être enregistrées (soit  $\simeq 10$  h).

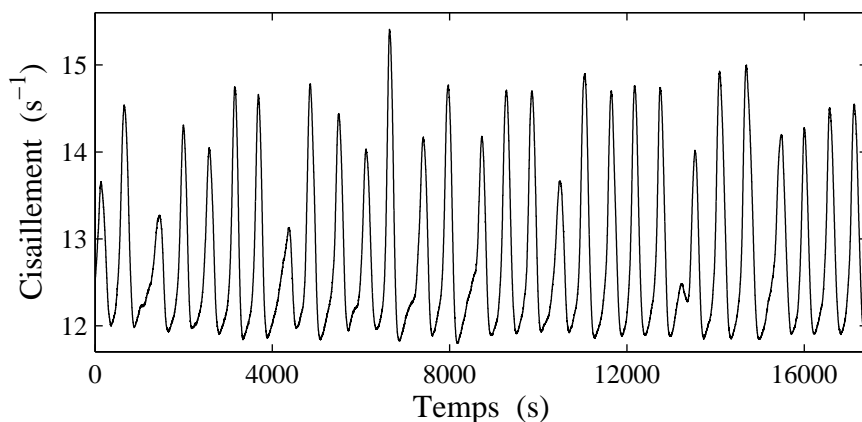


FIG. 2.13 – Dynamique apériodique observée au point C de la région 3 avec le protocole II.

– La région 6 correspond à une dynamique très complexe comme on peut le voir sur la figure 2.15. Cette dernière est caractérisée par un ensemble de fréquences distribuées autour de 300 s (cf. fig. 2.14.b). Cet état asymptotique est extrêmement « robuste » et s'étend du point G au point B. Contrairement à la région 3, les dynamiques de la région 6

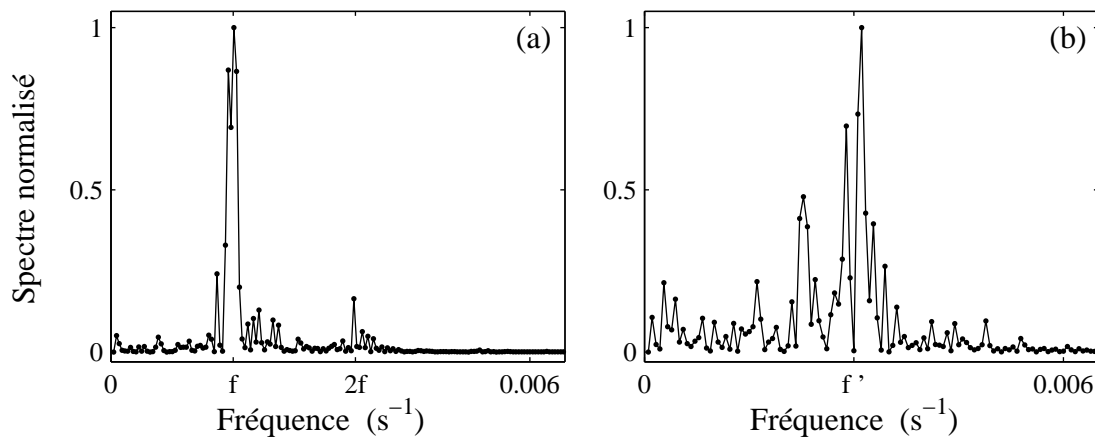


FIG. 2.14 – Spectres de puissance des dynamiques observées dans les régions 3 et 6. (a) Région 3 : le spectre indique clairement la présence d’une période fondamentale de l’ordre de  $1/f \simeq 600$  s. (b) Région 6 : la dynamique présente une période plus rapide ( $1/f' \simeq 300$  s).

ne présente pas de ligne de base.

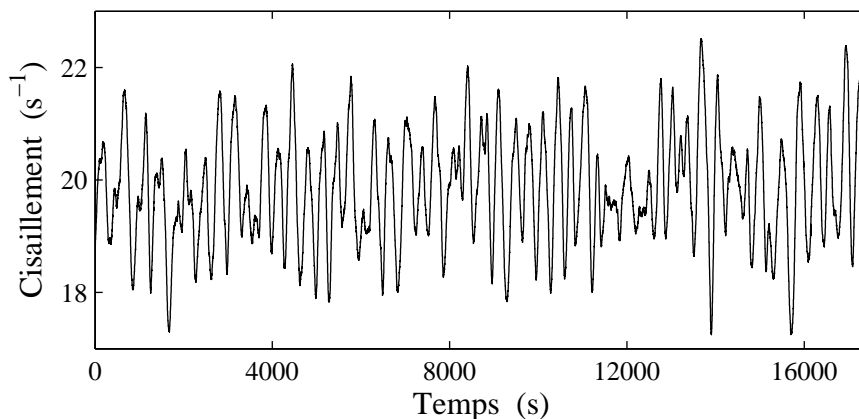


FIG. 2.15 – Dynamique complexe apériodique de la région 6 ( $G \rightarrow B$ ) observée avec le protocole II.

– Lorsque la contrainte approche  $\sigma_B$ , le protocole II permet d’observer la simplification de la dynamique complexe de la région 6 vers la dynamique stationnaire de la branche  $B \rightarrow A$  (cf. fig. 2.16). Lors de ce transitoire, le cisaillement oscille par « intermittence » entre une ligne de base continue et une valeur a priori aléatoire : la fréquence des sauts diminue jusqu’à ce que l’état stationnaire soit atteint.

Soulignons qu'à la précision du protocole II ( $\delta\sigma \simeq 0.1$  Pa,  $\delta t \simeq 15000$  s) et malgré nos efforts, aucune dynamique plus simple comme un état périodique par exemple, n'a été mise en évidence. Nous y reviendrons dans la section 2.4, car ce résultat implique des conséquences importantes sur l'existence d'une dynamique chaotique au voisinage de la transition de feuilletage. La différence notable entre le protocole I et le protocole II est la

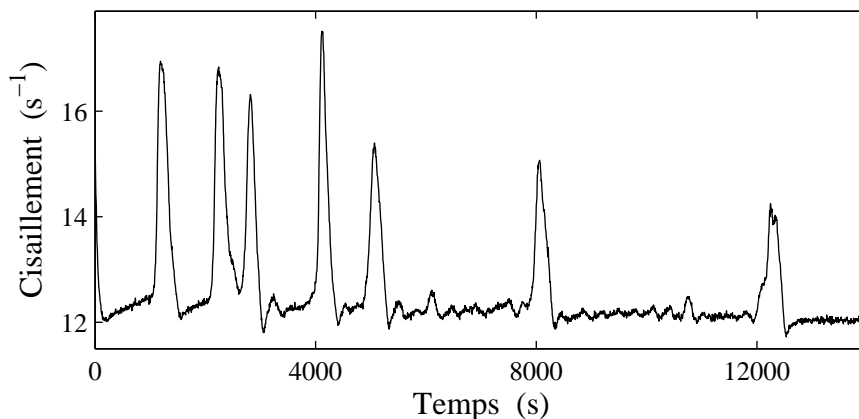


FIG. 2.16 – Transitoire observé avec le protocole II au voisinage du point B. Le cisaillement relaxe vers la branche stationnaire  $B \rightarrow A$ .

disparition de la branche métastable  $C \rightarrow D$ . Ce résultat est une caractéristique bien connue des comportements hystérétiques : le cycle d'hystérèse est plus grand ( $B \rightarrow D \rightarrow E \rightarrow B$ ) dans le cas de faibles intervalles de temps d'attente  $\delta t$ , que dans le cas d'approche des états asymptotiques (grand  $\delta t$ , protocole II,  $B \rightarrow C \rightarrow G \rightarrow B$ ). Ce comportement a été observé par ailleurs dans différentes transitions induites par le cisaillement [67, 114, 133]. Notons cependant que le cycle  $B \rightarrow C \rightarrow G \rightarrow B$  correspond réellement à un cycle d'hystérèse, car les dynamiques des branches  $B \rightarrow C$  et  $G \rightarrow B$  sont asymptotiques. Ce cycle d'hystérèse n'est donc pas lié au protocole utilisé.

### 2.2.3 Couplage structure-écoulement et instabilité macroscopique

Décrivons maintenant le couplage entre la structure du fluide mesurée par diffusion statique de la lumière, l'aspect macroscopique de la cellule de Couette et les différentes régions dynamiques des courbes d'écoulement pour  $T \geq T_c$ . Le montage utilisé est celui de la figure 2.3, décrit dans la section 2.1.2, page 53.

## Région 1

La branche  $A \rightarrow B$  correspond à un anneau isotrope de diffraction (cf. fig. 2.10, page 61). Dans les états transitoires, des bandes macroscopiques sont souvent présentes le long de la vortacité (direction  $z$  dans la cellule de Couette). Elles correspondent le plus souvent à des différences de turbidité et parfois à des états structuraux différents (*e.g.* différentes organisations et tailles d'ogons). Lorsque l'état stationnaire est atteint la cellule de Couette est homogène le long de la vortacité.

## Région 2

Lorsque  $\sigma \geq \sigma_B$  (région 2) de faibles pics apparaissent sur l'anneau indiquant le seuil de l'instabilité de feuilletage. Soulignons de plus que des bandes plus ou moins turbides apparaissent le long de la vortacité comme on peut le voir sur la figure 2.17. Ces bandes

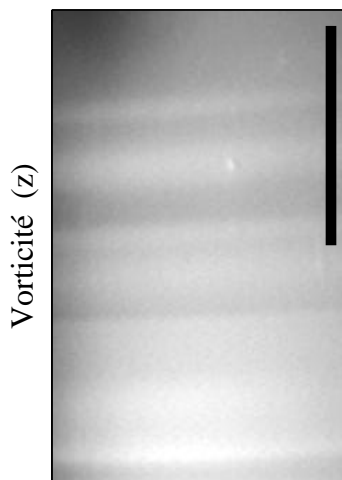


FIG. 2.17 – Aspect macroscopique de la cellule de Couette observée à l'œil nu pour des contraintes  $\sigma \geq \sigma_B$ . Des bandes macroscopiques sont présentes le long de la vortacité. La barre verticale représente 1 cm.

possèdent un très faible contraste optique et sont difficiles à filmer. Aucune longueur d'onde ne semble sélectionnée : la taille de ces bandes varie typiquement de  $100 \mu\text{m}$  à 2–3 mm. Lorsque le faisceau laser est déplacé à travers ces bandes, aucune corrélation évidente ne peut être faite entre la figure de diffraction et ces structures macroscopiques. Ces bandes ont une dynamique de l'ordre de 10–100 s, *i.e.* elles disparaissent et réapparaissent sur des temps de l'ordre de la minute. Cette dynamique est donc plus rapide que la période des

oscillations du cisaillement.

### Région 3

À l'approche de la région 3, la structure est légèrement feuilletée comme on peut le voir grâce aux figures de diffraction. Par ailleurs, l'aspect macroscopique de la cellule devient granuleux. On distingue en effet à l'oeil nu de faibles hétérogénéités d'indice optique, donnant une impression de granulose caractérisée par une taille de 100  $\mu\text{m}$  environ.

### Région 4

Dans la région 4 (grandes oscillations de cisaillement), il apparaît clairement grâce aux figures de diffraction que la texture du fluide oscille entre l'état feuilleté (fort cisaillement) et l'état désordonné (faible cisaillement). Pour mesurer quantitativement cette corrélation, un paramètre  $\phi$  caractéristique de la texture du fluide peut être extrait des figures de diffraction. Il s'agit de la différence entre les intensités moyennes dans les zones où apparaissent les pics de diffraction ( $I_{\text{max}}$ ) et dans les zones où aucun pic n'apparaît ( $I_{\text{min}}$ ), *i.e.*  $\phi = I_{\text{max}} - I_{\text{min}}$ . Ce paramètre est nul lorsque l'anneau est isotrope ( $\phi \simeq 0 \leftrightarrow$  texture désordonnée) et positif lorsque les pics apparaissent ( $\phi > 0 \leftrightarrow$  texture feuilletée). La valeur de ce paramètre indique alors le contraste des pics sur la figure de diffraction.

La figure 2.18.a présente la corrélation entre ce paramètre  $\phi$  et les oscillations de cisaillement de la région 4. Les deux séries temporelles oscillent en phase. Les oscillations de viscosité observées correspondent donc à une oscillation structurelle du fluide. Soulignons cependant que la texture n'oscille pas entre l'état complètement désordonné ( $\phi \simeq 0$ ) et l'état ordonné ( $\phi > 0$ ) mais entre deux états plus ou moins ordonnés ( $\phi > 0$ ).

L'aspect de la cellule de Couette présente toujours à l'échelle macroscopique une structure en bandes organisées le long de la vorticité. Cependant, comme on peut le voir sur la figure 2.18.b, où deux paramètres  $\phi_1$  et  $\phi_2$  ont été mesurés à différentes hauteurs  $z_1$  et  $z_2$  de la cellule de Couette ( $\|z_1 - z_2\| \simeq 1 \text{ cm}$ ), la corrélation entre la structure et le cisaillement ne semble pas être affectée par la présence de ces bandes macroscopiques. En effet, les trois séries temporelles  $\phi_1(t)$ ,  $\phi_2(t)$  et  $\dot{\gamma}(t)$  oscillent en phase. L'oscillation de structure observée est donc homogène le long de la vorticité et ne semble pas couplée à la dynamique rapide des bandes.

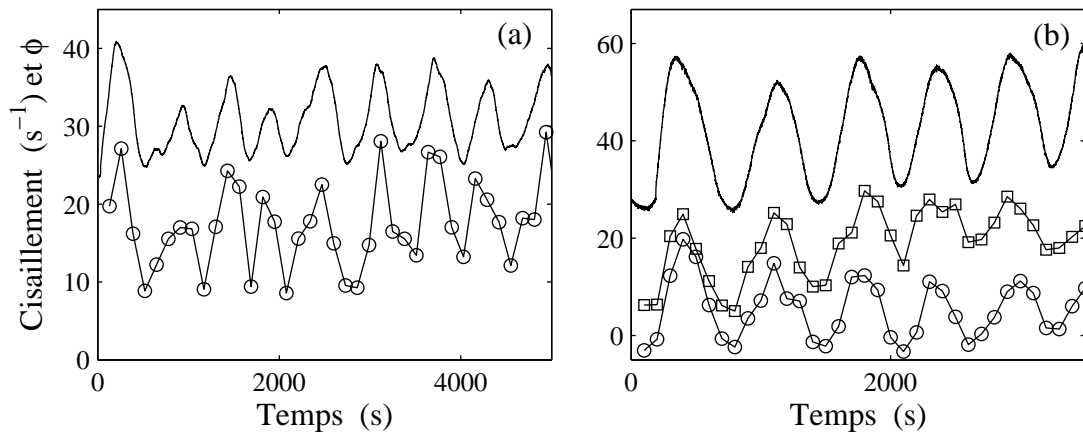


FIG. 2.18 – (a) Paramètre  $\phi$  et grandes oscillations de cisaillement  $\dot{\gamma}$  (région métastable 4) en fonction du temps. Les deux séries temporelles sont corrélées en phase. (b) Corrélations en phase entre deux paramètres  $\phi$  mesurés à deux hauteurs distinctes de la cellule de Couette et les oscillations de cisaillement. Cette dernière expérience a été réalisée dans un entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm.

### Région 5

Dans cette région, les bandes le long de la vorticit  sont toujours pr sentes. La figure de diffraction est caract ristique de la structure feuillet  (cf. fig. 2.10, page 61). La granulosit  est toujours pr sente et de plus en plus contrast e : le fluide semble structur  en petits « paquets » dont la taille varie typiquement de 100  $\mu\text{m}$    1 mm.

### R gion 6

Dans la r gion 6, la structure microscopique du fluide correspond   la texture feuillet e d'ognons. La r solution des images et du montage optique utilis  ne nous permet pas de mesurer un changement significatif de  $\phi$  pour des oscillations de faible amplitude ( $\simeq 3\text{--}5$   $s^{-1}$ ). C'est pourquoi aucune corr lation entre le param tre  $\phi$  et les oscillations de cisaillement n'est mesur e dans cette r gion. Les bandes macroscopiques et la granulosit  disparaissent progressivement   l'approche du point B, o  le cisaillement relaxe vers la branche stationnaire  $B \rightarrow A$ . La structure des ognons est alors   nouveau d sordonn e.

Pour r sumer, nous avons mis en  vidence au voisinage d'une transition de texture, diff rentes dynamiques du taux de cisaillement lorsque la contrainte est appliqu e. L'existence de ces comportements d pend tr s fortement de la temp rature : pour  $T < T_c = 27^\circ\text{C}$ , aucune oscillation du cisaillement n'a  t  observ e. En utilisant diff rents protocoles rh olo-

giques, nous avons observé la présence d'un cycle d'hystérèse qui persiste lorsque les temps d'attente  $\delta t$  sont augmentés. Par ailleurs grâce aux mesures de diffusion de la lumière, nous avons montré quantitativement que la texture du fluide oscille en phase avec la mesure rhéologique : faible viscosité  $\iff$  texture ordonnée et forte viscosité  $\iff$  texture désordonnée. Cette dynamique ne semble pas être affectée par la présence de bandes macroscopiques observées le long de la vorticit .

Dans les sections suivantes, nous allons utiliser les outils de la th orie des syst mes dynamiques pour  tudier les diff rents r gimes dynamiques observ s. Nous verrons alors que les comportements mesur s ne correspondent pas simplement   une instabilit  purement temporelle et que les degr s de libert  spatiaux jouent probablement un r le important.

## 2.3 Notions de th orie des syst mes dynamiques

Avant de pouvoir d crire les diff rentes oscillations observ es gr ce   la th orie des syst mes dynamiques, il convient de d crire bri vement les concepts de cette th orie et de souligner en quoi ils peuvent servir dans le cadre exp rimental du rh ochaos. Il existe  norm ment d'ouvrages et de revues d di s   la th orie des syst mes dynamiques [19, 42, 63, 72, 96]. L'unique objectif de ce chapitre est d'introduire les outils n cessaires   l'analyse des dynamiques observ es.

Avant cela, on peut  videmment se demander pourquoi analyser les oscillations mesur es. Plus pr cis ment : que peut nous apporter la th orie des syst mes dynamiques ? En r alit , utiliser les outils de cette th orie permet de r pondre aux questions fondamentales telles que : est-ce que la dynamique est d terministe ? est-ce qu'un petit nombre d' quations suffit pour mod liser le syst me ? ou encore, est-ce que l'espace est une dimension pertinente du probl me ? Nous insisterons donc sur le cadre d' tude de cette th orie tout en soulignant pourquoi il est l gitime de s'attendre, dans le cas qui nous int resse,   des comportements susceptibles d' tre d crits par un syst me dynamique.

### 2.3.1 Systèmes dynamiques déterministes

La théorie des systèmes dynamiques est une théorie mathématique décrivant les solutions des équations du type :

$$\begin{cases} \dot{x}_1 = f_1(x_1, \dots, x_j, \dots, x_N, \mu), \\ \dots \\ \dot{x}_j = f_j(x_1, \dots, x_j, \dots, x_N, \mu), \\ \dots \\ \dot{x}_N = f_N(x_1, \dots, x_j, \dots, x_N, \mu). \end{cases} \quad (2.3)$$

Ces équations sont des « équations différentielles ordinaires ».  $x = [x_1, \dots, x_N]$  est un vecteur à  $N$  composantes décrivant l'état du système.  $N$  est le nombre de degrés de liberté du système.  $f$  est une fonction, appelée « flot », permettant de faire évoluer l'état du système  $x$  dans le temps. Le flot  $f$  est caractérisé par un ensemble de paramètres  $\mu$  décrivant les contraintes du milieu extérieur. Le système d'équations (2.3) constitue un « système dynamique » déterministe<sup>3</sup>. De nombreux systèmes dynamiques sont présents dans les domaines scientifiques : oscillateurs, systèmes proie-prédateur, réactions chimiques, modèles boursiers... Les solutions du système (2.3) sont facilement calculables dans le cas où ce dernier est linéaire. En effet, trouver les solutions du système linéaire se réduit alors à un simple problème de calcul des valeurs propres. C'est l'existence de non-linéarités qui permet l'apparition de la complexité dans ces systèmes. C'est pour aborder cette richesse de comportements que de nombreuses approches théoriques ont été consacrées à l'étude des solutions des systèmes non-linéaires du type (2.3).

Faisons d'emblée quelques remarques :

- la solution d'un système dynamique peut être vue comme une trajectoire dans un espace de dimension  $N$ , appelé « espace des états » et noté  $\mathcal{E}$ . En effet, on peut considérer les variables  $\{x_i\}_{1 \leq i \leq N}$  comme les composantes d'un vecteur dans un espace de dimension  $N$ . L'ensemble des trajectoires d'un système dynamique constitue un « portrait de phase » ;
- en vertu du théorème d'unicité des solutions, aucune trajectoire ne peut s'intersecter : à une condition initiale donnée  $x(t = 0)$ , il n'existe qu'une trajectoire donnée  $x(t)$  ;
- la dynamique est déterministe : les solutions sont a priori calculables soit analytiquement, soit numériquement.

---

<sup>3</sup> Sont écartés les systèmes dynamiques stochastiques tels l'équation de Langevin :  $\dot{x} = f(x) + \xi(t)$  où  $\xi$  est une composante aléatoire.



Notons que la dimension finie  $N$  de l'espace des états n'exclut pas les cas physiques dont les descriptions sont continues (comme l'équation de Navier-Stokes). Ces dernières impliquent un nombre infini de degrés de liberté et donc a priori, la notion de champ. Cependant dans la plupart des cas, les contraintes spatiales permettent de réduire la complexité des équations à un nombre fini d'équations aux dérivées ordinaires : la théorie des systèmes dynamiques peut alors s'appliquer [96].

### 2.3.2 Systèmes dynamiques dissipatifs

Faisons désormais une grande simplification en ne considérant que les flots dissipatifs. Dans ces cas, la dynamique est irréversible : les équations ne sont pas invariantes sous le changement  $t \rightarrow -t$  [19, 96]. En physique cette propriété est liée à la dissipation de l'énergie. Cette non-invariance a une conséquence importante quant aux solutions des systèmes dynamiques dissipatifs : c'est la « contraction des aires ». Si on considère un ensemble de trajectoires issues d'un petit domaine  $\mathcal{V}$  de l'espace des états (cf. fig. 2.19.a pour le cas  $N = 3$ ), il y a contraction de ce volume dans le temps [19, 96]. Ainsi, après un transitoire, l'ensemble des trajectoires aura « asymptotisé » sur un sous-espace  $\mathcal{A}$  de  $\mathcal{E}$  appelé « attracteur »<sup>4</sup>. Ce dernier a un volume nul dans  $\mathcal{E}$  :

$$\dim(\mathcal{A}) < N. \quad (2.4)$$

Un exemple d'attracteur est donné sur la figure 2.19.b pour le cas  $N = 3$  : les trajectoires asymptotisent sur un cycle de dimension 1. L'hypothèse dissipative permet de simplifier l'étude des solutions de ces systèmes dynamiques : pour étudier les solutions asymptotiques, il « suffit » de caractériser la topologie de l'attracteur  $\mathcal{A}$ . « Contraction des aires » dans l'espace des états ne signifie pas pour autant « contraction des longueurs » : comme on peut le voir sur la figure 2.19.c et dans le cas  $N = 3$ , le volume dans l'espace des phases peut se dilater dans certaines directions et se contracter dans d'autres, de sorte que son volume diminue au cours du temps.

### 2.3.3 Bifurcations et formes normales

Ce paragraphe présente les notions clés de bifurcations et de formes normales. Ces concepts permettent de comprendre pourquoi les comportements décrits par la théorie des systèmes dynamiques sont universels.

---

<sup>4</sup> Il peut y avoir plusieurs solutions asymptotiques pour un même système dynamique. Il faut dans ce cas invoquer la notion de bassin d'attraction, comme l'ensemble des conditions initiales qui mènent à une solution donnée.

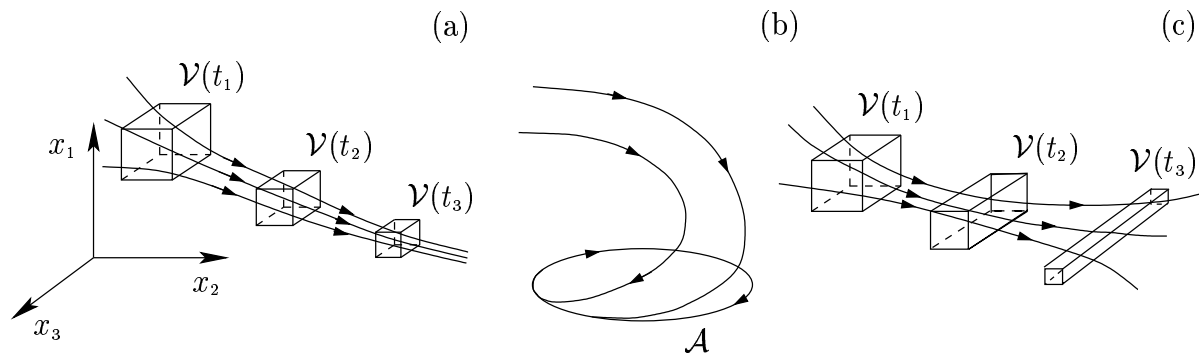


FIG. 2.19 – (a) Contraction d'un volume  $\mathcal{V}$  dans l'espace des états  $\mathcal{E}$ .  $t_1 < t_2 < t_3$ . (b) Après un transitoire, les solutions asymptotisent sur un cycle limite de dimension 1. (c) Contraction des volumes ne signifie pas contraction des longueurs, car le volume peut se dilater dans certaines directions et se contracter dans d'autres, de sorte que  $\mathcal{V}$  diminue au cours du temps ( $t_1 < t_2 < t_3$ ).

### Notion de bifurcation

La notion de bifurcation est extrêmement importante en théorie des systèmes dynamiques. On dit qu'il se produit une *bifurcation*, lorsque la topologie de l'attracteur  $\mathcal{A}$  change en faisant varier les contraintes  $\mu$ . Pour illustrer cette notion, prenons l'exemple suivant correspondant à l'équation du mouvement d'un oscillateur entretenu [19] :

$$\ddot{\theta} = \gamma \left( 1 - \frac{\theta^2}{\theta_0^2} \right) \dot{\theta} - \omega^2 \theta, \quad (2.5)$$

où  $\theta$  est l'amplitude des oscillations et  $\theta_0$  une amplitude donnée. L'oscillateur est entretenu car le terme de frottement visqueux de l'équation (2.5) dépend de  $\theta$  : si  $\theta > \theta_0$ , le système dissipe l'énergie et l'amplitude  $\theta$  décroît, alors que si  $\theta < \theta_0$ ,  $\theta$  augmente. En adimensionnant l'amplitude  $\theta$  par  $\theta_0 \sqrt{\omega/\gamma}$  et le temps par  $1/\omega$ , le système (2.5) s'écrit sous la forme suivante, appelée équation de Van der Pol :

$$\begin{cases} \dot{x} = y, \\ \dot{y} = (\epsilon - x^2)y - x, \end{cases} \quad (2.6)$$

où l'on a posé  $x = \theta$ ,  $y = \dot{\theta}$  et  $\epsilon = \gamma/\omega$ . Lorsque  $\epsilon < 0$ , l'état asymptotique est un point fixe stable dans l'espace des états  $\mathcal{E}$  (cf. fig. 2.20.a). Lorsque  $\epsilon > 0$ , la solution stationnaire est instable, les variables  $x$  et  $y$  oscillent alors à une fréquence déterminée, la topologie de l'attracteur est alors un cycle limite (cf. fig. 2.20.b). Le passage de  $\epsilon < 0$  à  $\epsilon > 0$  est une *bifurcation* : la dimension (et donc la topologie) de  $\mathcal{A}$  a changé lorsque un paramètre du

système dynamique a été continûment varié. Lorsque la bifurcation correspond au passage d'un état stationnaire à un état périodique, comme c'est le cas ici, on parle de « bifurcation de Hopf ». Notons que c'est la présence de non-linéarités (comme celle en  $x^2 y$  dans le système (2.6)) qui permet l'existence des bifurcations. En effet dans un système linéaire, les solutions ne peuvent être que stables ou instables. Seules les non-linéarités permettent l'existence de nouvelles solutions lors de la perte de stabilité linéaire d'une d'entre elles.

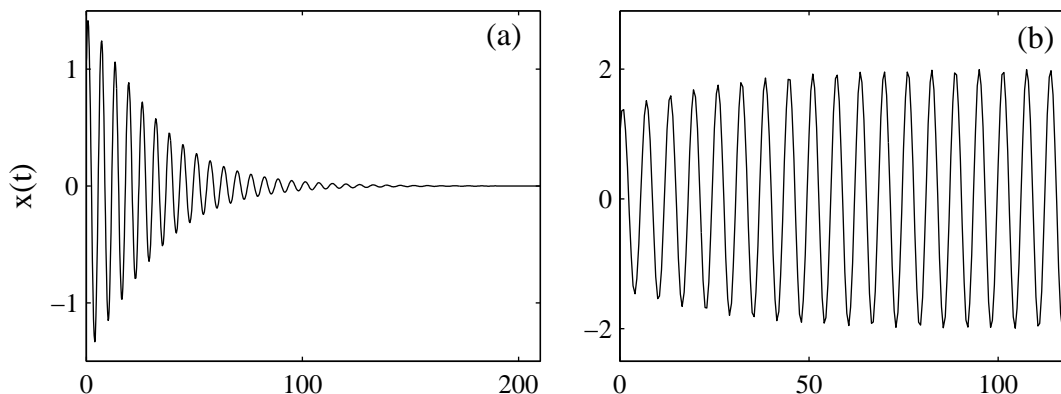


FIG. 2.20 – Exemple d'une bifurcation dans le cas de l'équation de Van der Pol (2.6). (a) Relaxation vers un point fixe dans le cas  $\epsilon = -0.08$ . (b) Relaxation vers un cycle limite dans le cas  $\epsilon = 0.05$ .

### Notions de théorie des formes normales

La théorie des formes normales permet de réduire un système dynamique de dimension quelconque au voisinage de toute bifurcation, à un nombre petit d'équations différentielles ordinaires, appelées forme normale. L'universalité de la théorie des formes normales a pour conséquence directe que tous les systèmes dynamiques expérimentaux (des réactions chimiques oscillantes aux instabilités hydrodynamiques) présentent des comportements dynamiques similaires au voisinage des bifurcations, décrits par les mêmes équations différentielles ordinaires. Les développements théoriques de cette approche sont évidemment très complexes [10], les quelques lignes ci-dessous permettent simplement d'illustrer la notion d'universalité de la technique de réduction à la forme normale.

Considérons le système dynamique de dimension  $N$  suivant :

$$\dot{X} = f(X, \mu), \quad (2.7)$$

où  $\mu$  est un ensemble de paramètres et  $f$  un flot dissipatif. Plaçons nous dans le cas où  $X_0$  est un état stationnaire *i.e.* :

$$\dot{X}_0 = f(X_0, \mu) = 0. \quad (2.8)$$

Si on considère une infime perturbation sur cet état :  $X = X_0 + \xi$ , on peut linéariser le système (2.7) :

$$\dot{\xi} = J_{X_0} \xi, \quad (2.9)$$

où  $J_{X_0}$  est la matrice jacobienne du flot  $f$  au point  $X_0$ . On peut alors diagonaliser le

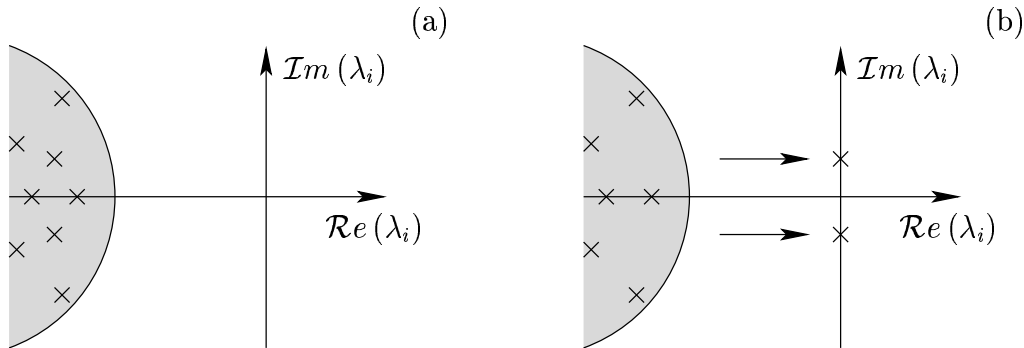


FIG. 2.21 – (a) Valeurs propres ( $\times$ ) d'un système dynamique linéarisé au voisinage d'un point fixe. Toutes les valeurs propres ont des parties réelles négatives lorsque le point fixe est stable. (b) Lorsqu'une bifurcation se produit, un ensemble fini de ces valeurs propres traverse l'axe  $\mathcal{R}e(\lambda_i) = 0$ .

système (2.9) et calculer les solutions grâce aux modes propres  $\{\xi_i(t)\}$ . En effet, la dynamique de ces derniers est simplement donnée par :  $\xi_i(t) = \xi_i(t=0) \exp(-\lambda_i t)$  où les  $\{\lambda_i\}$  sont les valeurs propres de la matrice jacobienne. Dans le cas où  $X_0$  est un point fixe stable, toutes les valeurs propres  $\{\lambda_i\}$  de  $J_{X_0}$  ont des parties réelles négatives (cf. 2.21.a). La dynamique de la relaxation vers l'état stationnaire  $X_0$  correspond alors à de simples relaxations exponentielles de temps caractéristiques  $1/\mathcal{R}e(\lambda_i)$ .

Lorsque les contraintes  $\mu$  sont variées, il se peut qu'un ensemble fini de valeurs propres croisent l'axe des parties réelles positives (cf. fig. 2.21.b). La solution stationnaire est alors instable, il se produit une bifurcation. La dynamique au voisinage de cette bifurcation contient plusieurs échelles de temps distinctes : les valeurs propres ayant des parties réelles fortement négatives correspondent à des relaxations rapides, alors que les valeurs propres croisant l'axe  $\mathcal{R}e(\lambda_i) = 0$  correspondent à des modes lents. La dynamique des modes rapides est alors « esclave » de la dynamique de ces modes de déstabilisation. On peut alors grâce à des techniques mathématiques [10], réduire la complexité du système dynamique (2.7)

au voisinage de la bifurcation, à un ensemble d'équations simples appelées *forme normale*. La dimension de la forme normale correspond au nombre de valeurs propres croisant l'axe  $\mathcal{R}e(\lambda_i) = 0$ . De plus, la forme normale ne dépend pas du détail des modes rapides et correspond donc à un système dynamique *universel*.

### Bifurcation de Hopf

La bifurcation de Hopf correspond au passage d'un état stationnaire à une dynamique périodique. L'attracteur passe ainsi d'un point fixe stable à un cycle limite. La forme normale de la bifurcation de Hopf s'écrit de manière générale :

$$\dot{z} = (\mu + i\Omega)z - kz|z|^2, \quad (2.10)$$

où  $\mu$ ,  $k$  et  $\Omega$  sont des paramètres et  $z$  une amplitude complexe. La forme normale (2.10) peut aussi s'écrire sous la forme suivante :

$$\begin{cases} \dot{\rho} = \mu\rho - \mathcal{R}e(k)\rho^3, \\ \dot{\theta} = \Omega - \mathcal{I}m(k)\rho^2, \end{cases} \quad (2.11)$$

où  $\rho$  et  $\theta$  correspondent à l'amplitude et à la phase dans le cas du cycle limite :

$$z = \rho e^{i\theta}. \quad (2.12)$$

Lorsque  $\mu < 0$  et  $\mathcal{R}e(k) > 0$ , la seule solution est le point fixe stable  $z = 0$  (cf. fig. 2.22.a). Lorsque  $\mu > 0$ , le point fixe perd sa stabilité et il apparaît une solution périodique d'amplitude  $\rho$  et de fréquence  $\theta$ . On montre aisément au voisinage du seuil que  $\rho \propto \sqrt{\mu}$  et  $\theta \simeq \Omega$  : l'oscillation est harmonique. Dans le cas présent, la transition vers le cycle limite est continue, on parle de bifurcation de Hopf *supercritique*.

Lorsque  $\mathcal{R}e(k) < 0$ , la transition est discontinue comme cela est représenté sur la figure 2.22.b. Il existe un intervalle  $\mu_c < \mu < 0$  où deux solutions coexistent : un cycle limite instable et un point fixe stable. Généralement, la présence de non-linéarités d'ordre supérieur permettent l'existence d'un cycle limite stable. Lorsque le paramètre  $\mu$  varie continûment autour de l'instabilité, un cycle d'hystérèse est alors observé. On parle alors de bifurcation de Hopf *sous-critique*.

La bifurcation de Hopf est extrêmement importante en théorie des systèmes dynamiques car elle constitue la première étape vers la complexité temporelle. Elle permet en effet de passer d'un état stationnaire à une dynamique périodique. Les bifurcations successives sur cet état périodique peuvent ensuite mener à des dynamiques plus riches. C'est le cas

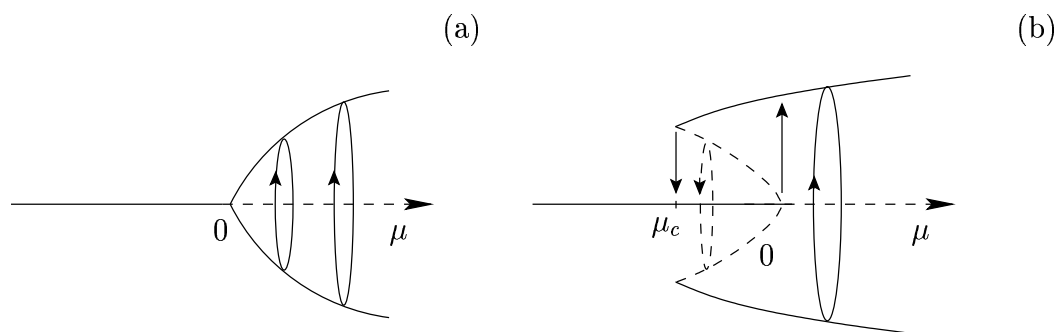


FIG. 2.22 – (a) Bifurcation de Hopf supercritique. Les points en traits-tirés correspondent à des solutions instables et les lignes continues à des solutions stables. (b) Bifurcation de Hopf sous-critique. Un cycle d’hystérèse (représenté par les flèches) est observé lorsque  $\mu$  est varié.  $\mu_c$  dépend des paramètres de la bifurcation et des non-linéarités d’ordre supérieur.

par exemple des dynamiques quasipériodiques où de nouvelles fréquences apparaissent. Dans certains cas, on observe parfois un continuum de fréquences, la dynamique est alors apériodique, on parle de « chaos ».

### 2.3.4 Comportements chaotiques

Le terme de « chaos » est couramment employé dans les domaines scientifiques pour décrire tout phénomène irrégulier, erratique ou désordonné. En théorie des systèmes dynamiques, le terme de chaos a un sens bien précis. On parle de comportements chaotiques lorsque les solutions d’un système dynamique présentent les propriétés suivantes :

- les solutions sont apériodiques : les spectres de Fourier correspondant comportent une infinité continue de fréquences ;
- les solutions sont extrêmement sensibles aux conditions initiales : deux trajectoires infiniment voisines dans l’espace des états  $\mathcal{E}$  divergent en un temps fini.

Il en résulte que dans un système dynamique chaotique, il est impossible de prédire les solutions même dans le cas où les conditions initiales sont connues avec une grande précision.

En considérant les propriétés précédentes, on peut facilement croire que les seuls systèmes dynamiques pouvant présenter des comportements chaotiques sont composés d’un grand nombre d’équations non-linéaires aux dérivées ordinaires. En effet, dans la limite de  $N$  oscillateurs couplés avec  $N \gg 1$ , les spectres de Fourier des solutions du système sont quasiment continus. En réalité, on sait depuis les travaux fondateurs de E. N. Lorenz que la dimension minimale d’un système dynamique pour observer des comportements cha-

tiques est uniquement 3 [91]. On parle alors de chaos de *basse dimensionnalité*. Dans ces systèmes particuliers, l'attracteur  $\mathcal{A}$  possède des propriétés topologiques bien spécifiques. En effet (cf. relation (2.4), page 72), les attracteurs des systèmes dynamiques dissipatifs sont de volume nul dans l'espace des états, *i.e.*  $\dim(\mathcal{A}) < \dim(\mathcal{E}) = N$ . Lorsque la solution est chaotique, la propriété de « sensibilité aux conditions initiales » impose, en vertu du théorème d'unicité des solutions, que  $\dim(\mathcal{A}) > 2$ . Il est en effet impossible pour des raisons topologiques de construire un attracteur chaotique en dimension 2 [19]. Dans le cas où  $N = 3$ , la dimension de l'attracteur chaotique est alors contraint par la relation suivante :

$$2 < \dim(\mathcal{A}) < 3. \quad (2.13)$$

L'attracteur est alors un objet « fractal » caractérisé par une dimension non-entière. On parle d'attracteur « étrange ». C'est cette topologie particulière qui conduit à la sensibilité aux conditions initiales dans le cas d'un système dynamique de basse dimensionnalité.

Prenons un exemple concret qui reviendra tout au long de ce chapitre, le système de Rössler [130]. Ce dernier est composé des trois équations couplées suivantes :

$$\begin{cases} \dot{x} = -y - z, \\ \dot{y} = x + ay, \\ \dot{z} = b + xz - cz. \end{cases} \quad (2.14)$$

La seule non-linéarité de ce système est le terme  $xz$  dans la troisième équation. Pour certaines gammes de paramètres  $(a,b,c)$ , le système présente des solutions chaotiques. Un exemple de ces solutions est représenté sur les figures 2.23.a–c où les variables  $x(t)$ ,  $y(t)$  et  $z(t)$  ont été calculées numériquement pour les paramètres  $(a,b,c)=(0.3,0.3,4.5)$ . Aucune période ne peut être définie et il est impossible, au vu de ces séries temporelles, de prédire les solutions pour des temps supérieurs. L'attracteur correspondant est représenté sur la figure 2.23.d. Ce dernier correspond à une organisation « feuilletée » dans l'espace des états  $\mathcal{E}$ .

### 2.3.5 Comment caractériser un comportement chaotique ?

De nombreux systèmes expérimentaux présentent des comportements dynamiques irréguliers et aperiodiques. Une question se pose alors naturellement : comment savoir si ces dynamiques sont décrites par un système dynamique de basse dimensionnalité ? Pour répondre à cette question, il existe différentes méthodes : la première consiste à mettre

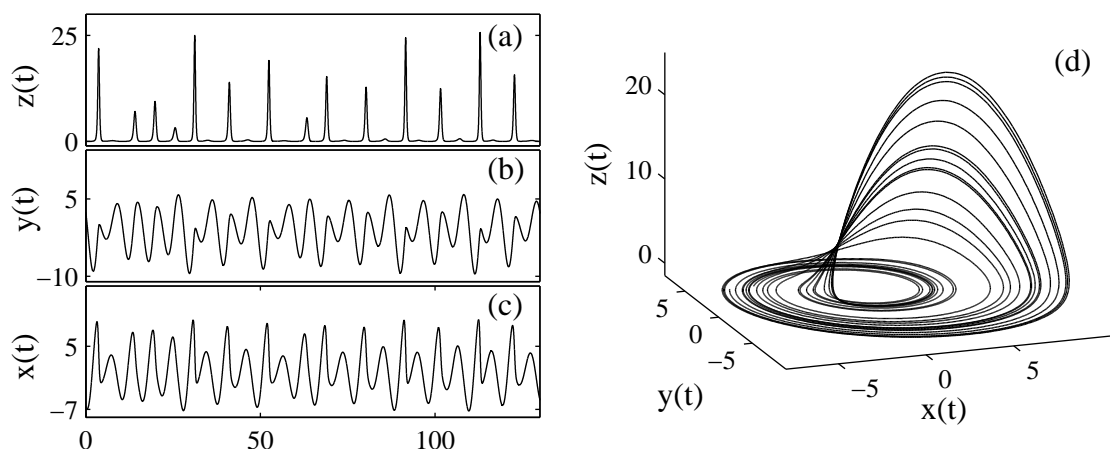


FIG. 2.23 – (a)–(c) Solutions asymptotiques  $x(t)$ ,  $y(t)$  et  $z(t)$  du système de Rössler (2.14), calculées numériquement pour les paramètres  $(a,b,c)=(0.3,0.3,4.5)$ . (d) Attracteur étrange correspondant représenté dans l'espace des états défini par les variables  $x$ ,  $y$  et  $z$ .

en évidence la « route » vers le chaos, les autres méthodes sont basées sur les invariants métriques et topologiques des attracteurs étranges.

### « Route » vers le chaos

La route vers le chaos, encore appelée « transition » vers le chaos, est l'ensemble des bifurcations nécessaires pour passer d'un état stationnaire à un état chaotique. Comme précédemment esquissé, la théorie des formes normales impose en effet que tout changement topologique des solutions d'un système dynamique soit décrit par un petit nombre d'équations différentielles ordinaires appelée forme normale et correspondant à une bifurcation donnée. En particulier, le passage d'un état stationnaire (point fixe,  $\dim(\mathcal{A}) = 0$ ) à une solution périodique (cycle limite,  $\dim(\mathcal{A}) = 1$ ) correspond à une bifurcation de Hopf. Expérimentalement, cette transition « doit » toujours exister lorsqu'un système présente des comportements dynamiques (*i.e.* décrits par un attracteur de dimension supérieure à 2). La mise en évidence expérimentale de cette bifurcation peut évidemment être difficile : tout dépend de l'existence d'un paramètre qui peut être continûment (et facilement) varié autour de cette transition.

La transition entre cet attracteur périodique et le chaos (attracteur étrange) est l'ensemble des bifurcations successives qui mènent à la complexité. La route choisie dépend de la façon dont le cycle limite perd sa stabilité. On distingue alors différentes transitions vers le chaos : la « cascade sous-harmonique », « la quasipériodicité » et les « intermittences » I,



II et III [19, 96]. Mettre en évidence expérimentalement un de ces scénarii est une preuve irréfutable de la présence de chaos déterministe de basse dimensionnalité.

### Les invariants métriques et topologiques

Dans certains cas, il peut être difficile de mettre en avant un scénario complet de transition vers le chaos. Il existe alors différentes méthodes permettant à partir d'une série temporelle donnée, de déterminer si cette dernière est décrite par un système dynamique dissipatif de basse dimensionnalité. Ces méthodes sont toutes basées sur le fait que la dynamique est alors décrite par un attracteur étrange dans l'espace des états  $\mathcal{E}$ . On distingue deux méthodes distinctes : (i) l'extraction des séries temporelles d'invariants métriques tels que la dimension fractale de l'attracteur étrange, (ii) la mise en évidence de la topologie particulière de l'attracteur étrange menant à la propriété de sensibilité aux conditions initiales.

*Le théorème de Takens [147] : la méthode de « plongement »*

Toutes ces méthodes requièrent la construction de l'attracteur à partir d'une donnée expérimentale. La plupart des expériences accèdent à une seule mesure dynamique donnée  $x_i(t)$ . La connaissance de l'ensemble des variables du système dynamique est complètement hors de portée. Un problème se pose alors : comment à partir de la mesure d'une seule composante  $x_i(t)$  construire l'attracteur correspondant ? F. Takens a montré que pour tout système dynamique de dimension  $N$  possédant un attracteur  $\mathcal{A}$  de dimension  $m$ , on peut « reconstruire » un portrait de phase préservant les propriétés topologiques à partir des trajectoires suivantes :

$$[x_i(t), x_i(t + \tau), \dots, x_i(t + j\tau), \dots, x_i(t + D\tau)] , \quad (2.15)$$

où  $\tau$  un décalage temporel arbitraire et  $D$  est la « dimension de plongement » contrainte par la relation :

$$D > 2m + 1 . \quad (2.16)$$

C'est la méthode de reconstruction par décalage temporel. Il existe d'autres reconstructions équivalentes comme par exemple :

$$[x_i(t), d_t(x_i(t)), \dots, d_t^j(x_i(t)), \dots, d_t^D(x_i(t))] , \quad (2.17)$$

où  $d_t^j = d^j/dt^j$ . Cette dernière est plus difficile à mettre en oeuvre expérimentalement car elle nécessite de déterminer les dérivées successives d'une mesure  $x_i(t)$ . Le théorème de

Takens assure que les propriétés métriques et topologiques de l'attracteur  $\mathcal{A}$  sont inchangées. Ce théorème est intuitif dans le cas d'une dynamique triviale telle un cycle limite (cf. fig. 2.19.b, page 73) : l'attracteur est une ellipse dans les cas suivants  $[x_1, x_2]$ ,  $[x_1, \dot{x}_1]$  ou encore  $[x_1(t), x_1(t + \tau)]$ .

Dans le cas d'un attracteur étrange d'un système dynamique de dimension 3, *i.e.*  $m = 2 + \epsilon$  avec  $0 < \epsilon < 1$ , le théorème de Takens donne une dimension minimale pour le plongement de la dynamique :  $D = 6$ . En réalité, la plupart des attracteurs étranges des systèmes de basse dimensionnalité sont constitués d'une structure particulière dans  $\mathcal{E}$ . La structure fractale de ces derniers est confinée dans la dimension transverse à une surface<sup>5</sup> (cf. fig. 2.23.c). La dimension de plongement  $D$  peut alors être choisie égale à 3. Un exemple est donné sur la figure 2.24 où la méthode de reconstruction par décalage (cf. relation (2.15)) a été appliquée avec  $\tau = 0.2$  pour construire un portrait de phase à partir de la seule variable  $z(t)$  du système de Rössler (2.14). Le théorème de Takens assure que les propriétés topologiques des attracteurs présentés sur les figures 2.23.d et 2.24.b sont équivalentes.

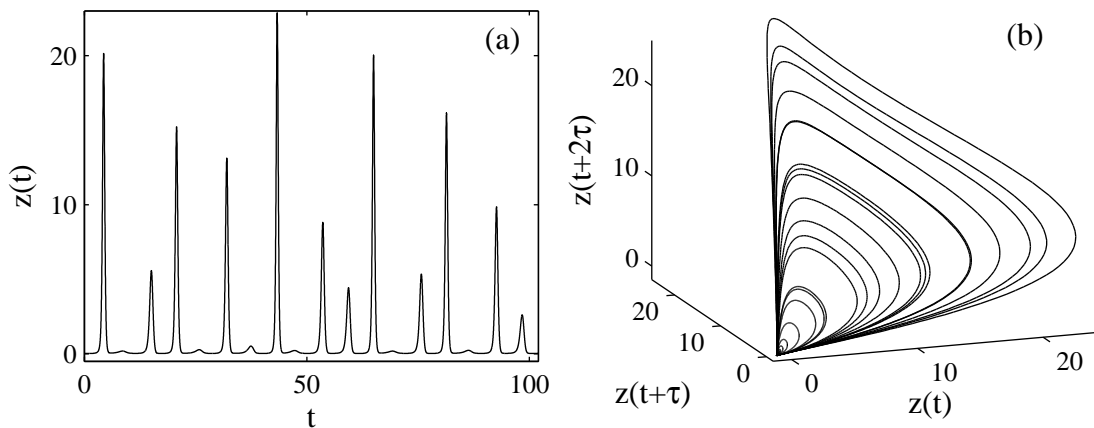


FIG. 2.24 – (a) Solution asymptotique  $z(t)$  du système de Rössler (2.14), calculée numériquement pour les paramètres  $(a,b,c)=(0.3,0.3,4.5)$ . (b) Attracteur étrange correspondant reconstruit par la méthode de décalage temporel ( $\tau = 0.2$ ).

### *Les invariants métriques : cas de la dimension fractale $m$*

Dans le cas où la dynamique correspond à du chaos dissipatif de basse dimensionnalité, l'attracteur  $\mathcal{A}$  possède une dimension fractale  $m = d + \epsilon$  avec  $d$  entier et  $0 < \epsilon < 1$ . On peut

<sup>5</sup> L'attracteur  $\mathcal{A}$  a alors une topologie de type « surface  $\otimes$  fractal de dimension  $< 1$  ».

alors grâce à la construction explicitée dans le paragraphe précédent, estimer la dimension  $m$  à partir de la fonction suivante [68] :

$$C(r) = \lim_{n \rightarrow \infty} \frac{1}{n^2} \sum_{i,j=1}^n H(r - \|\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j\|), \quad (2.18)$$

où  $\{\mathbf{x}_i\}_{1 \leq i \leq N}$  sont des points de l'attracteur,  $r$  une distance dans  $\mathcal{E}$  et  $H(x)$  la fonction de Heaviside :  $H(r - \|\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j\|) = 0$  si les points  $\mathbf{x}_i$  et  $\mathbf{x}_j$  sont distants de  $r$  et  $H(r - \|\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j\|) = 1$  sinon. Dans le cas d'un attracteur étrange, la loi d'échelle suivante est attendue :

$$C(r) \sim r^\nu, \quad (2.19)$$

où  $\nu$  est une approximation de la « vraie » dimension fractale<sup>6</sup>.

La méthode classique pour calculer cette dimension est la suivante [12, 68] :

- à partir de la mesure d'une série temporelle  $x(t)$ , on construit dans un espace de dimension  $D$ , un attracteur  $\mathcal{A}$  par la méthode de Takens ;
- on estime grâce aux relations (2.18) et (2.19), la dimension fractale de  $\mathcal{A}$  ;
- on augmente  $D$  et on recommence le calcul de  $\nu$  ;
- lorsque la dimension  $\nu$  ne dépend plus de la dimension de plongement  $D$ , on a alors une estimation de la dimension fractale de l'attracteur et de la dimension de plongement  $D$  (cette dernière correspond au nombre minimal de degrés de liberté du système dynamique sous-jacent).

La mise en place de cet algorithme est malheureusement difficile dans la plupart des expériences. En effet, il n'existe aucune théorie permettant de calculer l'erreur commise sur ce genre d'estimation de la dimension fractale [63]. Le manque de statistique peut être à l'origine d'une mauvaise utilisation de cette méthode [12]. En effet, l'algorithme est basé sur la saturation de la dimension  $\nu$  pour de grandes dimensions de plongement  $D$ . Si un signal stochastique est comparé à un signal déterministe, on doit toujours mesurer  $\nu = D$ , quelque soit la dimension de plongement  $D$ , car le bruit permet à la trajectoire d'« explorer » la totalité de l'espace de plongement. Cependant si le signal étudié est relativement court, un effet de saturation est observé même dans le cas d'une dynamique stochastique. Pour illustrer cet effet, prenons le cas de la bifurcation de Hopf, à laquelle un bruit blanc gaussien  $\xi(t)$  a été rajouté :

$$\begin{cases} \dot{x} = -y + x [\mu - (x^2 + y^2)], \\ \dot{y} = x + y [\mu - (x^2 + y^2)] + \Delta \xi(t). \end{cases} \quad (2.20)$$

---

<sup>6</sup> Cette dernière est appelée dimension de « Hausdorff »  $d_H$ , l'estimation  $\nu$  est toujours inférieure *i.e.*  $\nu \leq d_H$  [12].

L'intégration du système (2.20) dans le cas  $\Delta = 1/4$  et  $\mu = 0.0001$  est présentée pour la variable  $y(t)$ , sur la figure 2.25.a. L'algorithme décrit précédemment a été utilisé pour

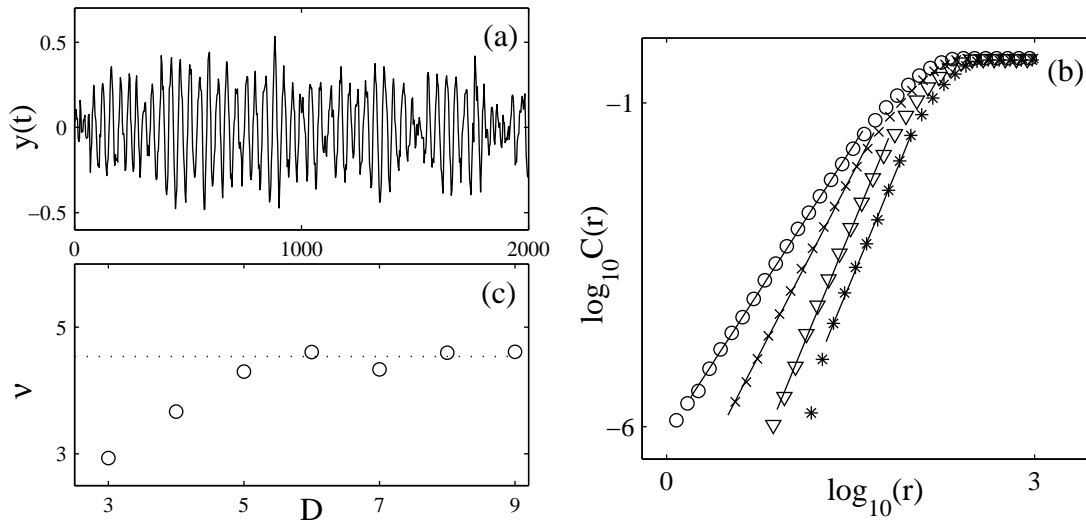


FIG. 2.25 – (a) Variable  $y(t)$  intégrée à partir du système (2.20). La série compte 2000 points. (b)  $C(r)$  vs.  $r$  (échelle log–log) pour différentes dimensions de plongement.  $D=3$  ( $\circ$ ),  $D=4$  ( $\times$ ),  $D=6$  ( $\nabla$ ) et  $D=9$  ( $*$ ). Les dimensions de corrélations  $\nu$  sont extraites des ajustements linéaires (traits continus). (c) Dimensions de corrélation  $\nu$  vs.  $D$ .  $\nu$  converge vers la valeur  $\nu_c \simeq 4.53$  (ligne pointillée) pour les plongements de dimension  $D \geq 6$ .

estimer la dimension  $\nu$  de l'attracteur. Les résultats sont présentés sur les figures 2.25.b–c. Comme on peut le voir sur cet exemple trivial, l'algorithme converge vers une valeur finie de la dimension de corrélation. Il est donc tentant de conclure que la série temporelle  $y(t)$  correspond à un attracteur étrange de dimension  $\nu_c \simeq 4.53$  et que le nombre de variable du système dynamique sous-jacent est  $D = 6$ . En réalité il n'en est rien, l'effet d'une valeur finie de  $\nu$  provient de la longueur statistique étudiée (2000 points  $\rightarrow \simeq 60$  oscillations).

Dans les différentes expériences de rhéologie présentant des comportements dynamiques du type rhéochaos, les périodes impliquées sont de l'ordre de la minute. Il est donc complètement impossible de faire converger cet algorithme. C'est pour cette raison que ces méthodes d'extraction d'invariants métriques ne nous semblent pas pertinentes pour le cas expérimental qui nous intéresse. C'est aussi pour cette raison que nous pensons que les travaux des références [13, 14] rapportant l'existence de comportements rhéologiques dynamiques de solutions de micelles géantes, n'apportent pas de preuves suffisamment quantitatives quant à la nature mathématique des dynamiques observées. En effet, dans

la référence [13] par exemple, les auteurs rapportent l'existence d'une dynamique lente de l'ordre de 100 s. Les auteurs utilisent alors la méthode précédente permettant l'évaluation de la dimension de corrélation  $\nu$ . Aucune longueur statistique des séries étudiées n'est donnée dans ces articles. Toutefois si l'on suppose que les expériences les plus longues ont été réalisées pendant plusieurs heures, le nombre d'oscillations (moins de 100) ne permet en aucun cas l'utilisation de cette méthode.

*Les invariants topologiques : coupe de Poincaré et application de premier retour*

La méthode la plus fiable pour prouver le caractère chaotique d'une série temporelle est de mettre en avant les ingrédients topologiques de l'attracteur  $\mathcal{A}$  conduisant à la propriété de sensibilité aux conditions initiales. L'analyse est basée sur la notion de « coupe de Poincaré » et d'« application de premier retour ». Pour illustrer ces notions, prenons l'exemple du système de Rössler (2.14). Une coupe de Poincaré correspond à l'ensemble des intersections des trajectoires dans l'espace des états  $\mathcal{E}$  avec un plan donné  $\mathcal{P}$ . Un sens est donné pour compter les intersections.

Un exemple est donné sur la figure 2.26. L'équation du plan choisi est donné par  $\alpha z(t) + \beta z(t + \tau) + \gamma z(t + 2\tau) = 0$  avec  $(\alpha, \beta, \gamma) = (-1, 0, 1)$ . La coupe de Poincaré est un ensemble discret de points distribués sur une « ligne » (cf. fig. 2.26.b). Cette caractéristique est liée à

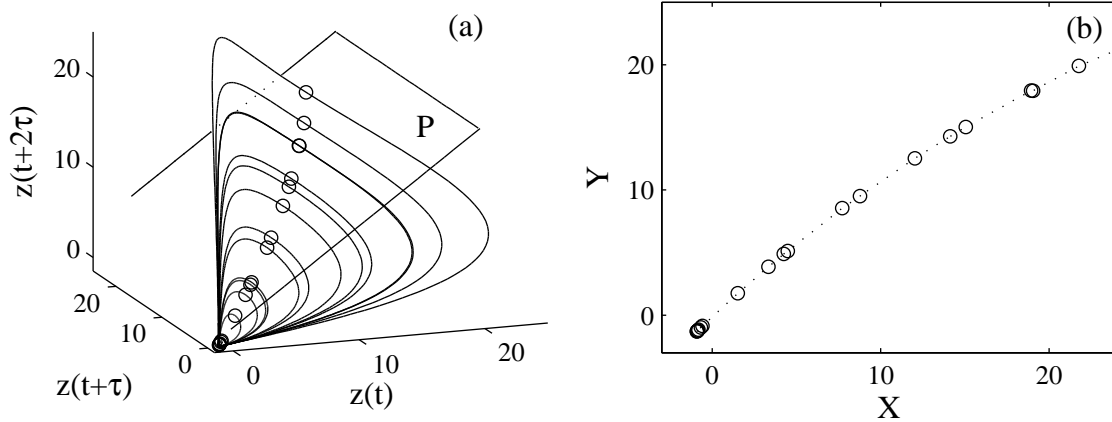


FIG. 2.26 – (a) Attracteur construit à partir de la variable  $z(t)$  du système de Rössler,  $\mathcal{P}$  est le plan de coupe de Poincaré d'équation  $-z(t) + z(t + 2\tau) = 0$ . Les ronds vides ( $\circ$ ) indiquent les différentes intersections du portrait de phase avec  $\mathcal{P}$ . (b) Coupe de Poincaré,  $X$  et  $Y$  sont deux axes orthogonaux arbitraires du plan  $\mathcal{P}$ . Les points sont distribués sur une ligne (pointillée).

la dissipation dans le système de Rössler. En effet, un volume  $\mathcal{V}$  dans l'espace des états se

contracte sous l'action du flot. Comme précédemment expliqué, cette propriété n'empêche pas la dilatation des longueurs dans  $\mathcal{E}$  (cf. fig. 2.19.c, page 73). Cette dilatation est par ailleurs essentielle pour avoir la sensibilité aux conditions initiales. La coupe de Poincaré n'a donc pas d'« épaisseur » dans l'espace des états car les volumes  $\mathcal{V}$  se réduisent à une simple ligne sous l'action du flot.

La coupe de Poincaré permet de simplifier grandement le problème. Grâce à cette dernière, l'application tridimensionnelle est réduite à une application du plan dans le plan. Le caractère dissipatif permet de simplifier encore une fois le problème. On appelle « application de premier retour » l'application  $g$  qui à  $X_k$  fait correspondre  $X_{k+1}$ , *i.e.*  $X_{k+1} = g(X_k)$  où  $X$  est une coordonnée de la coupe de Poincaré et l'indice  $k$  indique la  $k$ -ième intersection avec  $\mathcal{P}$ . Une telle application est présentée sur la figure 2.27.b. Les points ne sont pas dis-

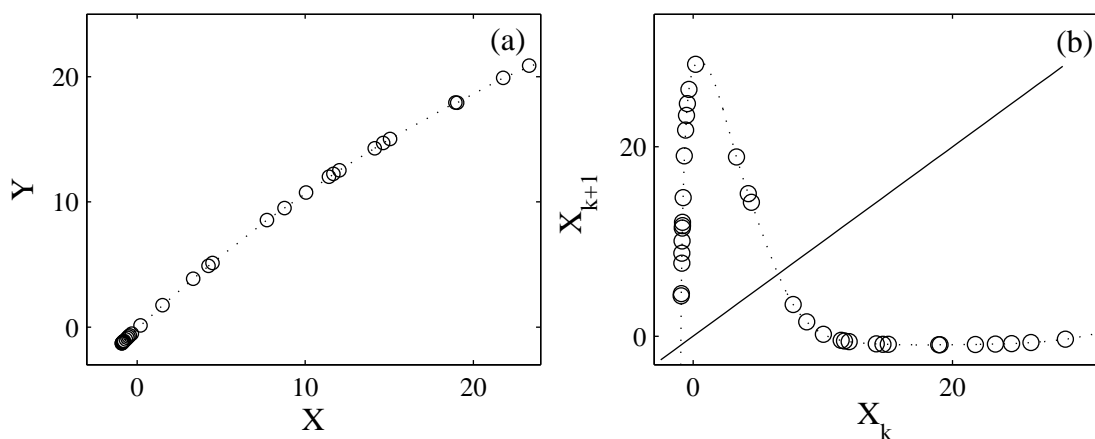


FIG. 2.27 – (a) Coupe de Poincaré de la figure 2.26.b, les axes  $X$  et  $Y$  sont arbitraires. (b) Application de premier retour  $X_{k+1}$  vs.  $X_k$ . Les points sont distribués sur une courbe de forme bien particulière (ligne pointillée). La ligne continue est la bissectrice  $X_{k+1} = X_k$ .

tribués de manière uniforme, mais sur une courbe de forme bien particulière. Si l'on connaît l'intersection  $X_k$ , alors on peut calculer grâce à cette courbe, la  $(k+1)$ -ième intersection : l'application de premier retour permet de mettre en avant le caractère déterministe du flot (2.14).

Une question se pose alors : comment l'attracteur permet-il la sensibilité aux conditions initiales et donc le chaos ? C'est la forme particulière de l'application de premier retour qui permet aux trajectoires de diverger dans l'espace des états. Il n'y a en effet aucun point fixe dans le système, car la pente de l'application de premier retour est supérieure à un (en valeur absolue) à l'intersection avec la bissectrice (point  $O$ , cf. fig. 2.28). Si on

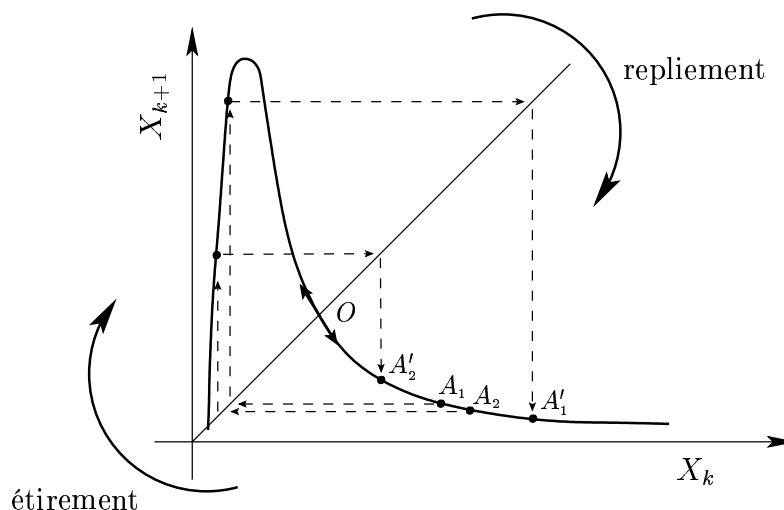


FIG. 2.28 – Application de premier retour du système de Rössler. La forme de l'application permet l'étirement et le repliement des trajectoires dans l'espace des états. Les points  $(A_1, A_2)$  initialement proches sur la coupe de Poincaré se sont éloignés après uniquement deux itérations de l'application de premier retour  $(A'_1, A'_2)$ .

prend deux conditions initiales proches dans l'espace des états, comme représenté schématiquement sur la figure 2.28, après seulement deux itérations de l'application de premier retour, les nouvelles intersections sont très éloignées sur la coupe  $\mathcal{P}$ . La première itération permet l'« étirement » des trajectoires et la seconde le « repliement » de ces dernières dans l'espace des états  $\mathcal{E}$ . « Étirement » et « repliement » sont les deux ingrédients nécessaires pour créer la topologie d'un attracteur étrange permettant la propriété de sensibilité aux conditions initiales [19, 63]. Mettre en évidence ces ingrédients topologiques sur l'application de premier retour est une preuve irréfutable de la présence d'un attracteur étrange de basse dimensionnalité.

## 2.4 Application de la théorie des systèmes dynamiques au rhéochaos

L'objectif de cette section est d'utiliser les outils décrits précédemment pour savoir si les dynamiques observées au voisinage de la transition de feuilletage peuvent être décrites par un système dynamique dissipatif. En particulier, nous essayerons de savoir si la dynamique aperiodique observée au point C de la courbe d'écoulement de la figure 2.10 (page 61)

correspond à du chaos déterministe de basse dimensionnalité.

### 2.4.1 Pourquoi s'attend-on à une dynamique riche ?

La transition de feuilletage présente de nombreux comportements dynamiques : des oscillations a périodiques, des dynamiques complexes et des oscillations de relaxation. Par ailleurs, des comportements hystérétiques ont aussi été observés : lorsque la contrainte est continûment variée autour de la transition, une boucle d'hystérèse révèle l'existence de deux « branches » correspondant à deux structures différentes (ognons désordonnés et ordonnés). D'un point de vue qualitatif, les dynamiques observées sont semblables à celles présentes dans les réactions chimiques oscillantes (du type Belousov-Zhabotinskii) où des phénomènes de bistabilité et d'oscillation de relaxation sont aussi présents [8, 9, 128, 150].

D'un point de vue de la théorie des systèmes dynamiques, le voisinage d'une transition hystérétique (décrit par la forme normale de la bifurcation hystérèse) et de comportements oscillants (décrits par la forme normale de Hopf) est connu pour présenter des dynamiques chaotiques. La figure 2.29 illustre schématiquement cette idée et permet de donner une interprétation géométrique au chaos dans ces systèmes.

- La figure 2.29.a présente une bifurcation hystérèse nécessaire pour produire la bistabilité entre deux états différents (ognons désordonnés et ognons feuilletés). Lorsqu'un paramètre de contrôle (*e.g.* contrainte  $\sigma$ ) est continûment varié, une boucle d'hystérèse est observée et il existe un intervalle de paramètre où les deux états coexistent.

- Un cycle limite naît par une bifurcation de Hopf sur une des branches (cf. fig. 2.29.b). La dynamique est alors confinée sur une surface.

- Lorsque le cycle limite grandit, les trajectoires se rapprochent du bord jusqu'à finalement basculer sur l'autre branche. Un phénomène de réinjection non-linéaire permet à ces trajectoires de revenir sur la branche initiale. On observe alors des comportements d'oscillations de relaxation (cf. fig. 2.29.c).

- Si les trajectoires sont réinjectées au voisinage du point fixe instable, elles spiralent autour du point fixe avant de repartir sur l'oscillation de relaxation. On observe alors une dynamique composée de petites oscillations suivies d'une oscillation de relaxation (cf. fig. 2.29.d).

- Lorsque les trajectoires sont réinjectées très près du point instable, les trajectoires spiralent plusieurs fois autour de ce dernier avant de retomber sur l'autre branche. Les deux ingrédients nécessaires au chaos sont alors présents : oscillations en spirale autour du point fixe (« étirement ») et réinjection au voisinage de ce dernier (« repliement »). La dynamique peut alors être chaotique et est composée d'oscillations de différentes amplitudes (comme



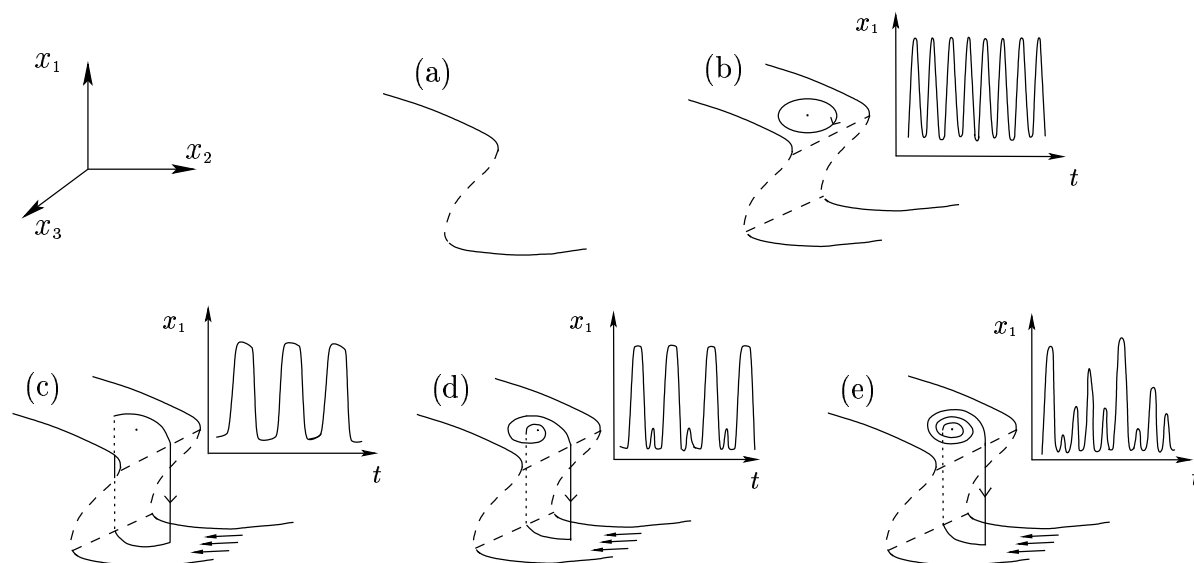


FIG. 2.29 – (a) Bifurcation hystérèse. Les lignes en traits-tirés représentent les états instables, les lignes continues les états stables. (b) Un cycle limite naît sur une des deux branches. La dynamique est confinée sur une surface plissée. (c) Oscillation de relaxation entre les deux branches, les flèches représentent le mécanisme de réinjection non-linéaire. (d) Dynamique composée d'une petite oscillation suivie d'une oscillation de relaxation. (e) Chaos spirant : les non-linéarités réinjectent les trajectoires au voisinage du point instable.

celle de la variable  $z(t)$  de la fig. 2.24.a). C'est l'interprétation géométrique donnée par Rössler pour expliquer la nature *spirante* de l'attracteur étrange.

La première étape de ce scénario vers le chaos est la naissance d'un cycle limite sur une des deux branches via une bifurcation de Hopf. Dans le paragraphe suivant, des arguments seront donnés quant à l'existence d'une telle bifurcation dans les expériences.

## 2.4.2 Transition vers la complexité temporelle dans les expériences

Dans l'ensemble des dynamiques observées au voisinage de la transition de feuilletage et à la précision des différents paramètres variés ( $\sigma$  et  $T$ ) *i.e.*  $\delta\sigma \simeq 0.01$  Pa et  $\delta T \simeq 0.1^\circ\text{C}$ , aucun état asymptotique périodique n'a été observé. Ce résultat peut paraître surprenant si l'on s'en tient au fait que toute transition vers la complexité temporelle (telle celle de la région 3 ou de la région 6) doit comporter, comme toute première étape, une bifurcation de Hopf.

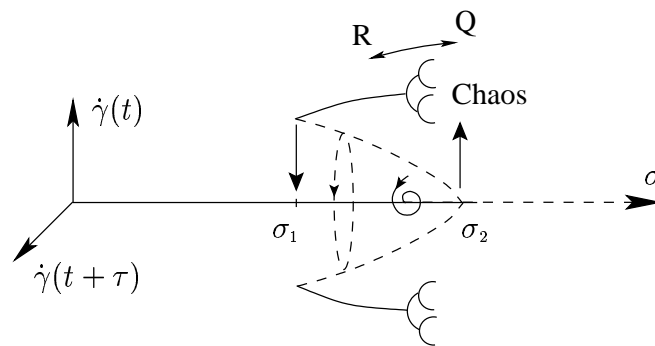


FIG. 2.30 – Scénario de transition probable dans les expériences. La bifurcation de Hopf sous-critique permet la coexistence entre un état chaotique et un état stationnaire. Lorsque  $\sigma_1 < \sigma < \sigma_2$ , à l’approche de la transition, le bruit permet de voir la relaxation spiralante vers le point fixe. Entre  $R$  et  $Q$ , un ensemble de bifurcations sur le cycle limite peuvent mener au chaos.

En réalité d’un point de vue formel, il existe une façon simple d’avoir une transition brutale vers le chaos grâce à une bifurcation de Hopf sous-critique. Un tel scénario est représenté sur la figure 2.30. Lorsque le paramètre de contrôle est varié, le point fixe stable coexiste avec l’état oscillant ( $\sigma_1 < \sigma < \sigma_2$ ). À l’approche de  $\sigma_2$ , la susceptibilité diverge et le bruit de l’expérience est de moins en moins amorti. Ce bruit permet alors de « voir » la dynamique oscillante de relaxation sur le point fixe, c’est la « résonance stochastique ». Cette caractéristique est bien présente dans nos expériences, c’est la dynamique de la région 2 (cf. fig 2.12, page 64). Cette dernière correspond à une dynamique bruitée comportant les fréquences caractéristiques de l’instabilité à venir. Lorsque la contrainte est augmentée, des bifurcations successives sur le cycle limite peuvent mener au chaos (branche  $R \rightarrow Q$ ). On a alors une coexistence entre le chaos et le point fixe. Lorsque  $\sigma > \sigma_2$ , le point fixe perd sa stabilité et on observe alors une complexité temporelle (région 3). Les arguments quant à un tel scénario sont évidemment minces : on observe uniquement la présence de bruit oscillant dans la région 2. Un argument fort serait l’observation du scénario inverse lorsque la contrainte est continûment diminuée de la région a périodique 3 (branche  $Q \rightarrow R$ ). Cependant, à la précision de nos expériences ( $\delta\sigma \simeq 0.01$  Pa,  $\delta T \simeq 0.1^\circ\text{C}$  et  $\delta t \simeq 15000$  s), aucun état asymptotique périodique n’a été observé en diminuant la contrainte ou la température. Ce résultat n’est cependant pas en désaccord avec le scénario d’une bifurcation de Hopf sous-critique : l’intervalle sur lequel coexiste le point fixe et le cycle limite peut en effet être petit devant la précision de notre expérience, *i.e.*  $\|\sigma_2 - \sigma_1\| \ll \delta\sigma$ .

De manière similaire, lorsque la contrainte est diminuée de la région 6 vers la branche

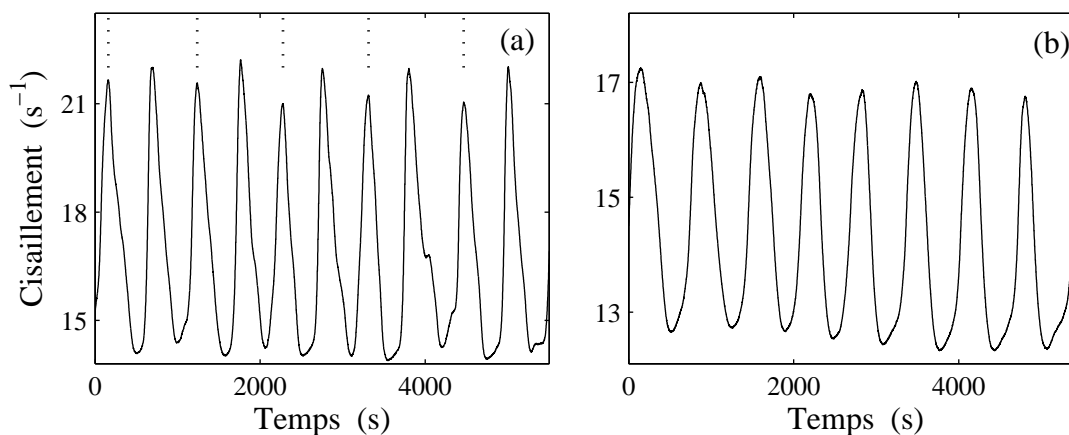


FIG. 2.31 – (a) Oscillations transitoires de période  $2T$  au voisinage du point B. Les lignes pointillées indiquent le doublement de la période. (b) Transitoire au voisinage du point B. Le cisaillement oscille périodiquement.

stationnaire  $B \rightarrow A$ , une transition du chaos vers la simplicité doit être présente. Encore une fois, aucun cycle limite stable n'a été observé. Ce résultat suggère une fois de plus le scénario de la figure 2.30. Un tel scénario est en accord avec la dynamique de relaxation vers le point fixe observée au voisinage du point B (cf. fig. 2.16, page 66) : le cisaillement relaxe par « intermittence » vers le point fixe stable, suggérant la coexistence du cycle limite et du point fixe. Encore une fois les arguments avancés sont trop minces pour confirmer une telle hypothèse. En revanche, plusieurs séries temporelles transitoires confortent une telle hypothèse. Par exemple, la dynamique transitoire (*i.e.* non-asymptotisée) de la figure 2.31.a suggère un cycle limite de période 2 nécessairement présent dans la transition vers le chaos par doublements de période (cascade sous-harmonique, cf. section. 2.3.5, page 79). Le transitoire de la figure 2.31.b est relativement commun dans les expériences menées, un état périodique est généralement observé sur moins de 10 périodes.

### 2.4.3 Utilisation des outils topologiques

Aucun scénario complet de transition vers le chaos n'ayant été mis en évidence, nous avons décidé d'utiliser les outils précédemment décrits pour savoir si les dynamiques complexes observées correspondent à du chaos déterministe de basse dimensionnalité. En particulier, les séries temporelles présentes dans la région 3 (cf. fig. 2.13, page 64) partagent de nombreuses similitudes avec le chaos spiralant de Rössler. Nous avons décidé d'utiliser les outils topologiques pour analyser le caractère déterministe de ces dynamiques. Toute

estimation numérique des invariants métriques est complètement impossible à cause du manque évident de statistique (environ 30 oscillations au maximum).

Un exemple de construction d'un attracteur, à partir du théorème de Takens, est présenté sur la figure 2.32. Le temps de décalage choisi est  $\tau = 45$  s. D'un point de vue théorique, soulignons que le choix de  $\tau$  est arbitraire. D'un point de vue pratique cependant, une « bonne » construction est donnée avec des temps  $\tau \simeq T_0/5 - T_0/10$  où  $T_0$  est la période fondamentale de la dynamique. D'autres choix de  $\tau$  donnent une représentation du véritable attracteur sans « épaisseur » ( $\tau \ll T_0/10$ ) ou trop « confuse » ( $\tau \gg T_0/5$ ) [19]. Pour reconstruire cet attracteur, la série temporelle a été lissée légèrement (convolution

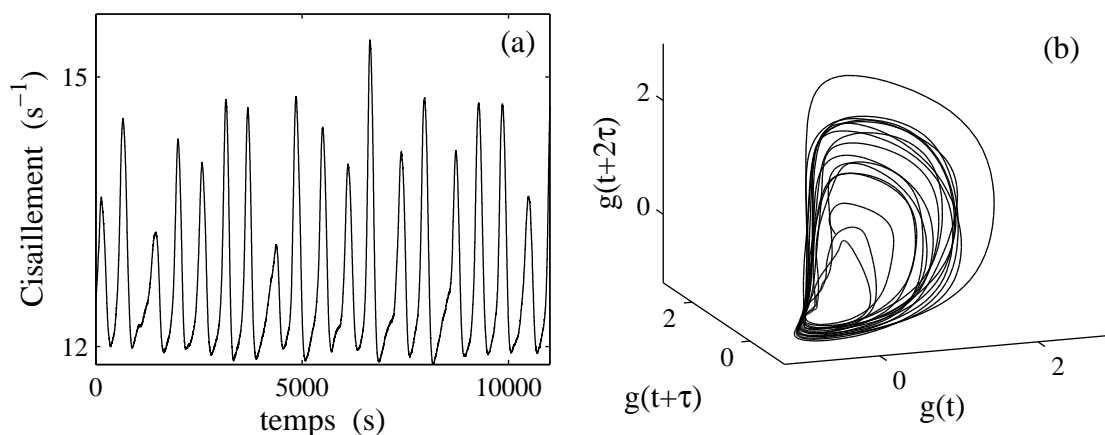


FIG. 2.32 – (a) Série temporelle apériodique de la région 3. (b) Construction de l'attracteur étrange par la méthode du décalage temporel (cf. relation (2.15), page 80) avec  $\tau = 45$  s.  $g(t)$  correspond au cisaillement mesuré après convolution par une gaussienne et soustraction de la moyenne.

avec une gaussienne) et la moyenne a été retirée. L'attracteur ressemble fortement à celui de Rössler présenté sur la figure 2.24.b. Cependant, comme le montrent la coupe de Poincaré et l'application de premier retour calculées à partir de cet attracteur (cf. fig. 2.33), aucune forme précise de l'application de premier retour ne peut être mise en évidence. Ce résultat suggère que la dynamique observée ne correspond pas simplement à du chaos déterministe de dimension 3. Plus d'une dizaine de séries temporelles différentes ont été étudiées, les méthodes de lissage des données ainsi que les temps  $\tau$  de construction ont été variés, mais aucune forme simple de l'application de premier retour n'a été observée. Il nous est donc impossible de savoir si la dynamique du point C correspond bien à un attracteur étrange. Soulignons que la dynamique complexe de la région 6 (cf. fig. 2.15, page 65) ne correspond

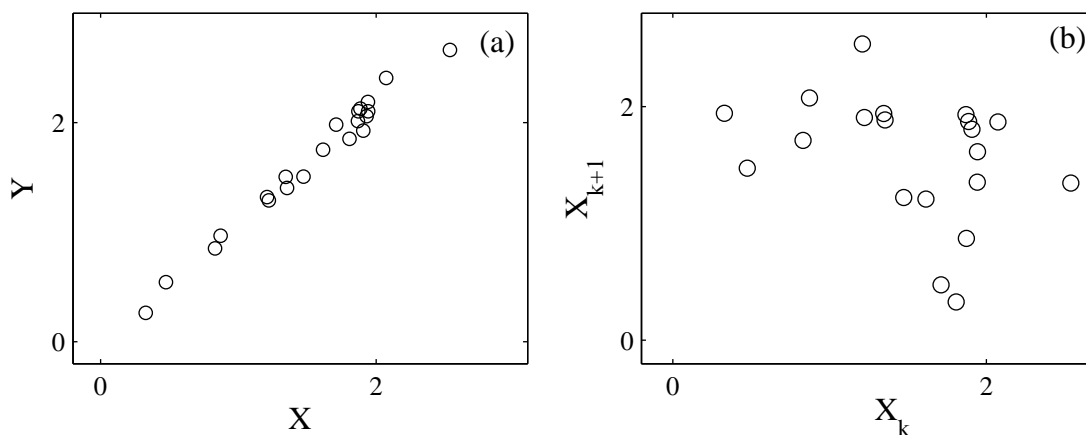


FIG. 2.33 – (a) Coupe de Poincaré de l’attracteur de la figure 2.32.b, les axes  $X$  et  $Y$  sont arbitraires. La coupe correspond au plan de coordonnées :  $\alpha g(t) + \beta g(t + \tau) + \gamma g(t + 2\tau) = 0$  avec  $(\alpha, \beta, \gamma) = (-1, 0, 1)$ . (b) Application de premier retour  $X_{k+1}$  vs.  $X_k$ . Contrairement à la figure 2.27.b, page 85, aucune forme précise ne dégage de l’application de premier retour.

pas elle non plus, à du chaos déterministe de basse dimensionnalité. La section suivante présente différentes pistes quant à la nature mathématique des phénomènes observés.

#### 2.4.4 Quelques hypothèses sur la nature des dynamiques observées

Les paragraphes précédents ont montré que les dynamiques observées au voisinage du point C ne correspondaient pas simplement à du chaos dissipatif de basse dimensionnalité. Cependant les attracteurs reconstruits à partir des expériences (cf. fig. 2.32.b) ne sont qualitativement très différents des attracteurs étranges, tels celui de Rössler (cf. fig. 2.24.b, page 81). Il est donc légitime de penser que les comportements observés sont proches de ceux décrits par un système chaotique de basse dimensionnalité. L’objectif des paragraphes suivants n’est pas de déterminer la véritable nature des dynamiques mesurées mais de donner quelques pistes suivies au cours de la thèse pour interpréter les résultats donnés par l’analyse topologique précédente.

##### Manque de statistique et dérive liée à l’évaporation

Le premier fait marquant est le manque de statistique étudiée. En effet, les plus longues séries temporelles enregistrées comportent une trentaine d’oscillations. Cependant dans le

meilleur des cas, cette statistique peut suffire pour l'étude topologique menée. Le problème principal ne concerne pas réellement la statistique, mais les dérives inhérentes de l'expérience liées à l'évaporation. La zone d'existence des dynamiques aperiodiques de la région 3 est extrêmement étroite (à peine 0.1 Pa) et rend toute dérive (même infime) perceptible sur les signaux. Il se peut donc qu'aucun état asymptotique n'ait jamais été atteint. La figure 2.34 présente une longue série temporelle enregistrée au voisinage du point C. Cette dernière compte près de 80 oscillations ( $\simeq 13$  h). Comme on peut le voir, une dérive très nette tend à augmenter l'amplitude moyenne des oscillations. Les analyses topologiques précédemment effectuées ont toutes été réalisées sur des séries comportant au maximum 30 oscillations afin de minimiser cet effet de dérive lente. Nous ne pouvons toutefois exclure de notre analyse la possibilité que l'évaporation des constituants masque une forme précise des applications de premier retour.

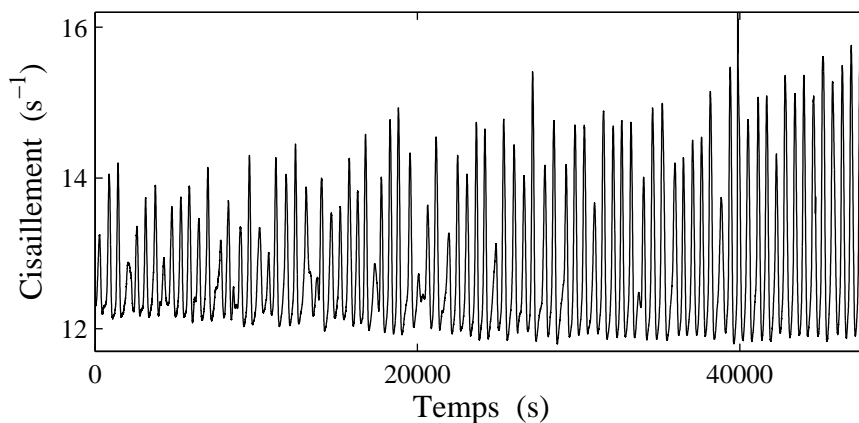


FIG. 2.34 – Série temporelle aperiodique observée dans la région 3 ( $\simeq 13$  h). La contrainte et la température sont maintenues constantes au cours de l'expérience. La dérive très nette de la forme des oscillations est liée à l'évaporation.

### Une dynamique stochastique ?

Une seconde hypothèse est l'existence d'une dynamique stochastique. On peut par exemple imaginer que le bruit inhérent à la mesure du cisaillement « détruit » la véritable forme de l'application de premier retour. Cette hypothèse est cependant peu probable car la précision mécanique du rhéomètre utilisé est bien supérieure aux erreurs qu'il faudrait introduire pour perturber significativement l'analyse topologique.

On peut aussi imaginer que les signaux enregistrés correspondent à une oscillation périodique (de période proche de 600 s), modulée lentement par un processus stochastique. Ce scénario est impossible à vérifier à cause du manque de statistique. Pour illustrer naïvement un processus purement stochastique, nous avons simulé numériquement une bifurcation de Hopf bruitée, au voisinage du seuil. Les équations utilisées sont les suivantes :

$$\begin{cases} \dot{x} = -y + x [\mu - (x^2 + y^2)], \\ \dot{y} = x + y [\mu - (x^2 + y^2)] + \Delta \xi(t), \end{cases} \quad (2.21)$$

où  $\xi(t)$  est un bruit blanc gaussien. Sur la figure 2.35.a l'intégration du système (2.21) est présentée dans le cas  $\Delta = 1/60$  et  $\mu = 0.001$ . Le carré de variable  $y(t)$  normalisée est présenté afin de pouvoir comparer cette dynamique avec les signaux expérimentaux. L'attracteur correspondant (construit par la méthode du décalage temporel,  $\tau = 0.3$ ) est présenté sur la figure 2.35.b. À la statistique étudiée ( $\simeq 25$  oscillations), la coupe de Poincaré et l'application de premier retour ne sont pas très différentes des données expérimentales (cf. fig. 2.35.c-d). Cet exemple permet d'illustrer simplement la possibilité qu'une dynamique stochastique puisse être présente dans nos expériences.

### Du chaos de plus haute dimensionnalité ?

L'analyse topologique menée dans cette section visait la mise en évidence d'un attracteur étrange  $\mathcal{A}$  de dimension  $\dim(\mathcal{A}) = 2 + \epsilon$  (avec  $0 < \epsilon < 1$ ). La reconstruction de Takens a en effet été effectuée dans un espace des états de dimension 3. On peut objecter que la dynamique apériodique observée corresponde en réalité à du chaos de plus haute dimensionnalité. Cette hypothèse une fois de plus, ne peut être vérifiée vu les longueurs des séries temporelles étudiées. Soulignons cependant qu'une telle hypothèse est hautement improbable. En effet, la théorie des formes normales implique que la complexité temporelle naît par bifurcations successives menant du point fixe à l'attracteur étrange. En conséquence, un attracteur de dimension  $3 + \epsilon$  requière l'existence préalable d'un attracteur de dimension  $2 + \epsilon$  (de la même manière que ce dernier requière la présence d'un cycle limite né par une bifurcation de Hopf).

### Quelques comportements en faveur d'une interprétation en termes de systèmes dynamiques de basse dimensionnalité

Les comportements présentés sur la figure 2.36 ont été observés au voisinage du point B. Ces séries temporelles confortent l'hypothèse d'une dynamique déterministe au voisinage de

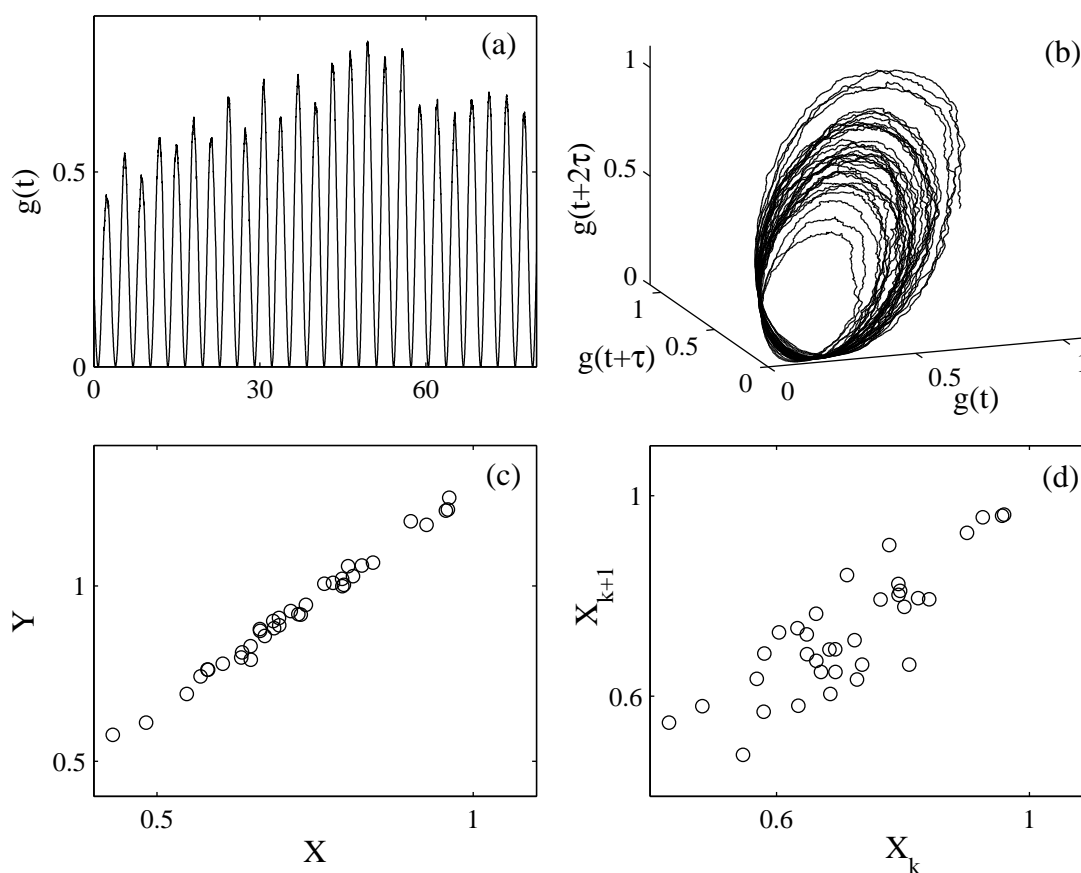


FIG. 2.35 – (a) Variable  $g(t) = [(y(t) - \langle y(t) \rangle) / \max(y(t))]^2$  intégrée à partir du système (2.21). (b) Attracteur correspondant reconstruit par décalage temporel ( $\tau = 0.3$ ). (c) Coupe de Poincaré dans le plan d'équation  $g(t) - g(t + 2\tau) = 0$ . (d) Application de premier retour correspondante.

la transition de feuilletage. En effet, la série transitoire de la figure 2.36.a possède de fortes ressemblances qualitatives avec la dynamique schématique de la figure 2.29.d (page 88) : le cisaillement présente différentes oscillations de relaxation entrecoupées par de petites oscillations sur une « branche » bien déterminée ( $\dot{\gamma} \simeq 15 \text{ s}^{-1}$ ). Les oscillations de la figure 2.36.b quant à elles, font penser à une dynamique quasipériodique, *i.e.* des oscillations de période proche de 600 s modulées en amplitude par une dynamique plus lente ( $\simeq 2000 \text{ s}$ ). Cette dynamique quasipériodique a par ailleurs aussi été observée dans les réactions chimiques oscillantes [8, 150]. Ces comportements transitoires ne nous permettent pas d'affirmer à coup sûr, la présence d'une dynamique déterministe car aucune étude systématique n'a pu être menée à cause des difficultés expérimentales exposées précédemment. Soulignons cependant que ces dynamiques ne sont probablement pas le « fruit du hasard ». Ces séries



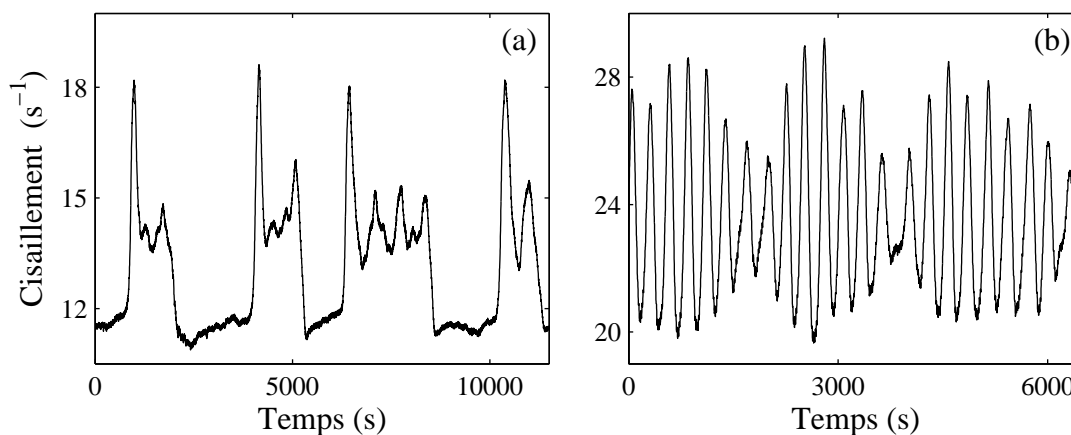


FIG. 2.36 – (a) Dynamique à deux « foyers ». Le cisaillement présente des oscillations de relaxation entrecoupées par de petites oscillations spiralantes (voisinage du point B). (b) Dynamique quasipériodique enregistrée au voisinage du point B.

suggèrent donc que les comportements oscillants sous-jacents sont régis par des équations déterministes.

### L'hypothèse spatio-temporelle

Comme souligné dans la section 2.3, la théorie des systèmes dynamiques concerne uniquement les solutions des équations du type :

$$\dot{x} = f(x, \mu). \quad (2.22)$$

Ces équations « différentielles ordinaires » n'incluent pas l'ensemble des phénomènes qui requièrent intrinsèquement une modélisation spatio-temporelle. Ces phénomènes sont décrits par des équations dites aux « dérivées partielles », constituées de dérivées du type  $(\partial_t, \partial_x)$  agissant sur des champs  $\psi(x, t)$ . Dans certains cas, lorsque les contraintes spatiales sont suffisamment importantes, il est possible de réduire cette complexité à un système dynamique simple [96]. Dans d'autres cas cependant, la dynamique spatio-temporelle ne peut être réduite à la simple équation (2.22). Les paragraphes suivants concernent quelques résultats en faveur de cette hypothèse.

#### 2.4.5 Une dynamique spatio-temporelle ?

Pour vérifier l'existence ou non d'une dynamique spatio-temporelle, un test simple consiste à faire varier les paramètres géométriques de l'expérience. On peut ainsi espérer que

le confinement du phénomène permettra de réduire la complexité spatiale. Ce raisonnement est classique dans le domaine des phénomènes non-linéaires [95]. Prenons l'exemple des réactions chimiques oscillantes. Lorsque ces dernières sont effectuées dans un réacteur non agité, le problème est hautement non-trivial : il y a compétition entre le phénomène de réaction non-linéaire entre les constituants et la diffusion spatiale de ces derniers. Pour observer les dynamiques temporelles des réactions oscillantes, une manière simple consiste à « homogénéiser l'espace » à l'aide d'un agitateur. Cette réduction du « spatio-temporel » au « temporel » a permis la mise en évidence des nombreuses dynamiques chaotiques dans ces systèmes [150]. Dans le cas du rhéochaos, il est évidemment impossible d'« homogénéiser l'espace ». En confinant les géométries utilisées on peut toutefois espérer « geler » les degrés de liberté spatiaux. Comme souligné dans les résultats de la section 2.2.3 (page 66), la direction de la vorticité ne semble pas pertinente. Les oscillations structurales du fluide sont en effet homogènes le long de la direction  $z$  de la cellule de Couette. L'effet d'un confinement dans cette direction ne change probablement rien aux dynamiques. Cette hypothèse a été vérifiée expérimentalement à l'aide d'une géométrie de Couette de hauteur réduite  $H = 1$  cm. Il n'en est pas de même pour la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$  comme nous allons le voir dans les paragraphes suivants.

### Rhéologie et couplage structure-écoulement en entrefer réduit $e = 0.5$ mm

Les expériences précédentes ont été reprises dans une géométrie de Couette possédant un entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm. La courbe d'écoulement de la figure 2.37.a a été réalisée à l'aide du protocole I, *i.e.*  $\delta\sigma = 0.5$  Pa et  $\delta t = 2$  h. Les courbes d'écoulement avec l'entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm sont semblables à celles obtenues avec  $e = 1$  mm. Les six scénarios dynamiques de la figure 2.11 (page 62) ainsi que la boucle d'hystérèse sont encore présents dans la géométrie confinée. Quelques différences peuvent cependant être observées :

- avec le protocole I (révélant les dynamiques non-asymptotiques), l'amplitude des oscillations de la région 4 est plus grande dans le cas confiné ( $20 \leftrightarrow 50$  s<sup>-1</sup>, cf. fig. 2.38.a) que dans le cas  $e = 1$  mm ( $25 \leftrightarrow 40$  s<sup>-1</sup>, cf. fig. 2.38.b). Les oscillations ont aussi une forme plus relaxationnelle dans le cas  $e = 0.5$  mm, *i.e.* la transition entre l'état visqueux et l'état fluide a lieu sur des échelles de temps courtes ( $\simeq 100$  s) ;
- la boucle d'hystérèse  $B \rightarrow D \rightarrow E \rightarrow B$  existe toujours dans le cas confiné, mais est plus grande que dans le cas  $e = 1$  mm ( $\dot{\gamma}_B \simeq 15$  et  $\dot{\gamma}_E \simeq 55$  s<sup>-1</sup> pour  $e = 0.5$  mm,  $\dot{\gamma}_B \simeq 15$  et  $\dot{\gamma}_E \simeq 45$  s<sup>-1</sup> pour  $e = 1$  mm) ;
- avec le protocole I et dans le cas du large entrefer, la branche  $F \rightarrow G$  ne correspond pas strictement à la branche  $G \rightarrow F$  (cf. fig. 2.9, page 60), alors que la montée et la

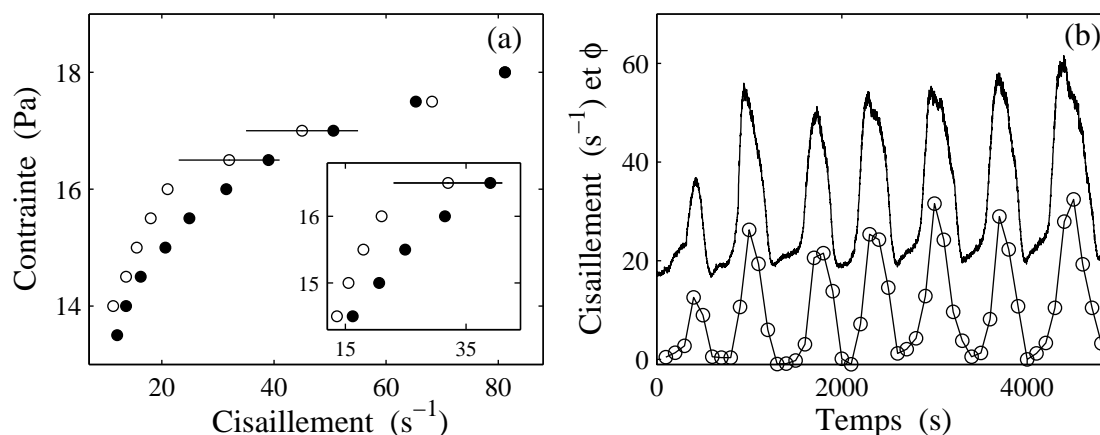


FIG. 2.37 – (a) Courbe d'écoulement obtenue à  $T = 30^\circ\text{C}$  et avec l'entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm par le protocole I. Les symboles correspondent aux valeurs moyennes des cisaillements enregistrés. Les barres horizontales indiquent l'amplitude des oscillations de cisaillement de la région 4. (○) correspond à la montée en contrainte et (●) à la descente. L'insert est centré sur la boucle d'hystérèse ainsi que les oscillations observées. (b) Corrélacion structure-écoulement mesurée dans la région métastable des grandes oscillations (région 4) et avec l'entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm. (○) correspond au paramètre  $\phi$  extrait des figures de diffraction et la ligne continue représente le cisaillement.

descente coïncide quasiment parfaitement pour  $e = 0.5$  mm ;

- lorsque la corrélation entre la structure et l'écoulement est caractérisée avec le paramètre  $\phi$  (cf. fig. 2.37.b), il est clair que dans le cas confiné, les oscillations de cisaillement correspondent exactement à des oscillations de la structure du fluide. En d'autres termes, la structure du fluide oscille entre l'état complètement désordonné ( $\phi \simeq 0$ ) et un état complètement ordonné ( $\phi \gg 0$ ). De plus la figure 2.37.b révèle non seulement la corrélation en phase des deux séries temporelles, mais aussi la corrélation en amplitude.

Ces observations confortent l'hypothèse d'une structuration spatiale le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ . Ces structures spatiales correspondraient aux différents états texturaux du fluide (ognons désordonnés–feuilletés). Si de telles structures spatiales existent le long de  $\nabla v$ , alors les courbes d'écoulement dépendent de l'entrefer  $e$ , car les effets spatiaux sont probablement plus importants pour  $e = 1$  mm que pour  $e = 0.5$  mm. Ceci pourrait expliquer les différentes caractéristiques quantitatives des courbes de rhéologie. De même, on peut imaginer que les oscillations de cisaillement observées correspondent à une dynamique spatiale

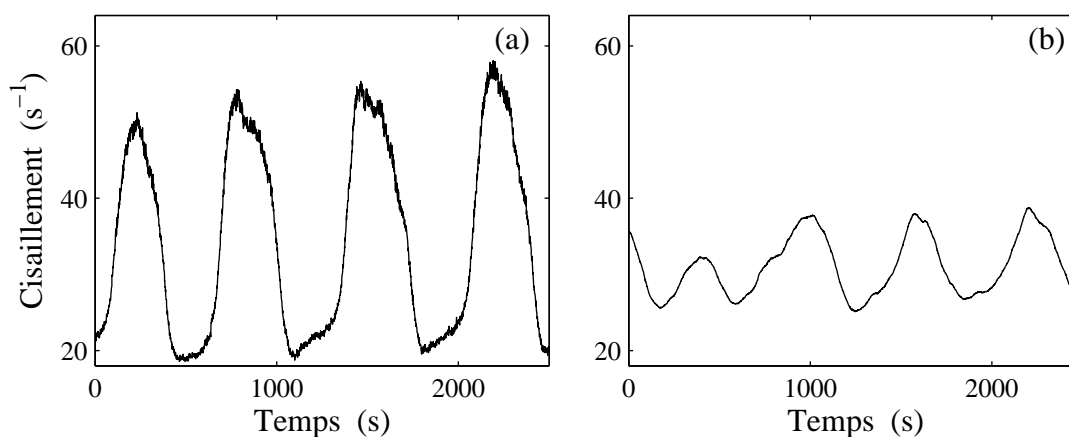


FIG. 2.38 – Oscillations du cisaillement obtenues dans la région métastable 4 avec le protocole I, (a) dans le cas de l’entrefer d’épaisseur  $e = 0.5$  mm, (b)  $e = 1$  mm.

de ces structures. Un mécanisme de « nucléation–annihilation » d’une « bande » d’ognons ordonnés pourrait par exemple avoir lieu. Si dans le cas confiné  $e = 0.5$  mm, la bande nucléée a la taille de l’entrefer, on observerait alors des oscillations de structure entre un état ordonné ( $\phi > 0$ ) et un état désordonné ( $\phi \simeq 0$ ). Dans le cas  $e = 1$  mm, on observerait des oscillations de structure entre deux états partiellement ordonnés si les bandes nucléées ont des tailles inférieures à 1 mm. Ces hypothèses expliqueraient alors les différences observées pour la corrélation structure–écoulement (cf. fig. 2.37.b et 2.18.a, page 69). De la même manière, on peut imaginer que si ce mécanisme conduit à des oscillations de relaxation dans la limite d’un entrefer homogène ( $e = 0.5$  mm), le même mécanisme conduirait à des oscillations ayant un « caractère relaxationnel » moins marqué, si plusieurs structures spatiales oscillent dans le cas  $e = 1$  mm (cf. fig. 2.38).

Tous ces scénarii seront discutés dans les chapitres suivants où une méthode de vélocimétrie nous permettra de sonder localement la rhéologie au sein de l’entrefer. Dans le paragraphe suivant, nous illustrons naïvement l’effet d’une telle hypothèse de structuration spatiale sur l’analyse des signaux présentée précédemment.

### Une dynamique de bandes le long du gradient de vitesse $\nabla v$ ?

Pour observer les dynamiques prédites par la théorie des systèmes dynamiques, il faut que les degrés de libertés spatiaux ne soient pas pertinents. L’objectif de ce paragraphe est de montrer qu’une dynamique spatio-temporelle peut mener à une complexité faussant les analyses topologiques précédentes. Cette situation est encore une fois, banale dans les phénomènes non-linéaires. Pour illustrer cette dynamique complexe, prenons l’exemple naïf

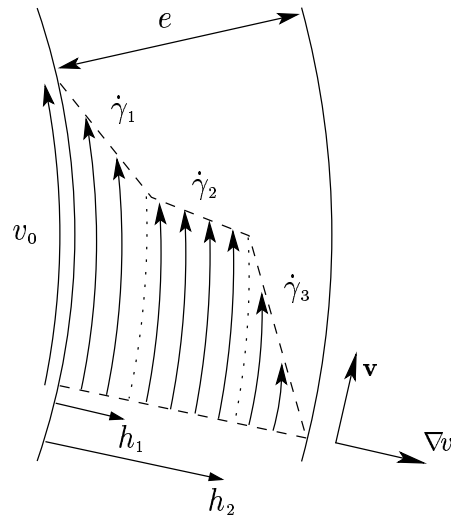


FIG. 2.39 – Écoulement inhomogène dans l'écoulement de Couette. Trois bandes de cisaillements distincts coexistent le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ .  $v_0$  est la vitesse du rotor à partir de laquelle est calculé le cisaillement effectif donné par le rhéomètre.

suivant : supposons comme suggéré précédemment, que l'écoulement ne soit pas homogène le long de la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$ , mais composé de différentes « bandes » macroscopiques. La figure 2.39 présente schématiquement une telle situation dans le cas de trois bandes de cisaillements locaux distincts  $\dot{\gamma}_1$ ,  $\dot{\gamma}_2$  et  $\dot{\gamma}_3$ . La valeur donnée par le rhéomètre correspond à une mesure globale (intégrée) de l'écoulement. Plus précisément, le rhéomètre mesure un cisaillement effectif  $\dot{\gamma}$  donné par :

$$\dot{\gamma} = \frac{h_1}{e} \dot{\gamma}_1 + \frac{h_2 - h_1}{e} \dot{\gamma}_2 + \frac{e - h_2}{e} \dot{\gamma}_3. \quad (2.23)$$

Si on suppose désormais que ces bandes possèdent leurs propres dynamiques locales, le cisaillement effectif mesuré ne permet pas alors d'accéder à ces comportements locaux. Prenons le cas où les dynamiques des cisaillements locaux correspondent à la variable  $z(t)$  du système de Rössler. Plus particulièrement considérons :

$$Z(t) = z_1(t) + z_2(t) + z_3(t) \quad (2.24)$$

avec  $z_i(t)$  solution du système de Rössler (2.14) dans les cas  $(a, b) = (0.3, 0.3)$  et  $c = 4.5, 4.45$  et  $4.55$  pour  $z_1, z_2$  et  $z_3$  respectivement. Cette variable globale  $Z(t)$  est présentée sur la figure 2.40.a. Elle présente les mêmes caractéristiques qualitatives que les variables locales  $z_i(t)$ . Cependant l'analyse topologique menée précédemment conduit à l'application de premier retour de la figure 2.40.d : aucune forme précise ne peut être observée. La

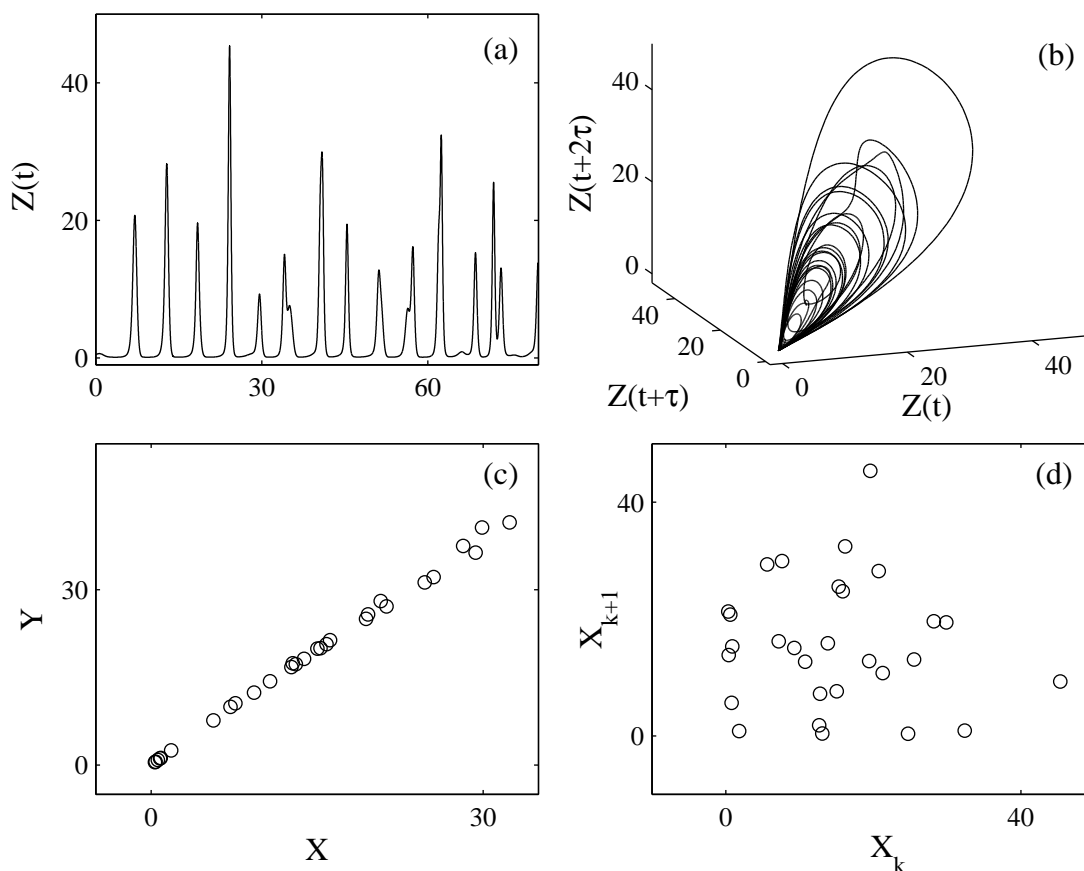


FIG. 2.40 – (a) Variable  $Z(t) = z_1(t) + z_2(t) + z_3(t)$ . (b) Attracteur correspondant, construit à partir de la variable  $Z(t)$  par décalage temporel ( $\tau = 0.1$ ). (c) Coupe de Poincaré dans le plan d'équation  $Z(t + 2\tau) - Z(t) = 0$ .  $X$  et  $Y$  sont deux axes orthogonaux arbitraires du plan de coupe. (d) Application de premier retour  $X_{k+1}$  vs.  $X_k$ , aucune forme précise ne se dégage de cette analyse.

variable  $Z(t)$  ne correspond pas simplement à du chaos déterministe dissipatif de basse dimensionnalité. Cet exemple n'a pas pour objectif d'affirmer la présence d'une structuration en bandes le long du gradient de vitesse. Il permet seulement d'illustrer l'effet d'une complexité spatio-temporelle sur la mesure rhéologique et l'analyse topologique menée.

## Conclusions intermédiaires et résumé

Tout au long de ce chapitre nous avons mis en évidence différents régimes dynamiques à l'aide de protocoles rhéologiques distincts au voisinage d'une transition induite par le

cisaillement. Ces oscillations sont caractérisées par une période longue (environ 600 s) et dépendent très fortement de la température : lorsque  $T < T_c = 27^\circ\text{C}$ , aucune dynamique n'est observée. Pour  $T \geq T_c$ , différents comportements dynamiques ont été observés en fonction de la contrainte appliquée ainsi que des phénomènes hystérétiques et de bistabilité. Parmi ces dynamiques, des séries temporelles similaires à des signaux chaotiques de basse dimensionnalité ont été mesurées. Ces comportements oscillants sont par ailleurs reliés à une oscillation structurelle du fluide complexe : la texture du fluide change périodiquement au cours du temps. L'aspect macroscopique de la cellule révèle aussi la présence d'une structuration spatiale le long de la vorticité  $z$  qui ne semble pas corrélée aux oscillations observées. Une analyse utilisant les outils de la théorie des systèmes dynamiques nous a permis de montrer que les séries enregistrées ne correspondaient pas simplement à du chaos déterministe de basse dimensionnalité. Cette analyse, ainsi que des expériences de rhéologie en entrefer réduit, suggèrent l'existence d'une structuration spatiale le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ .

Une question subsiste : pourquoi des comportements oscillants ? Les expériences menées dans ce chapitre ne permettent évidemment pas de répondre à cette question fondamentale. Nous pouvons cependant faire quelques hypothèses quant à une origine microscopique. La première remarque concerne la période des oscillations ( $\simeq 600$  s). De telles échelles de temps ont précédemment été observées avec le même système dans d'autres situations expérimentales. Cette échelle de temps a notamment été mesurée lors des réarrangements microscopiques de la texture oignon soumise à une contrainte mécanique. Ces réarrangements sont liés aux déplacements des joints de grains entre les domaines ordonnés d'ognons et impliquent des échelles de temps de l'ordre de la minute [116]. Ces échelles de temps correspondent aussi au temps de regonflement d'un oignon comprimé. Plus précisément, il a été montré à l'aide de la diffusion de neutrons, que le pas smectique  $d$  des phases lamellaires varie avec le cisaillement appliqué : pour lubrifier l'écoulement, les ognons relarguent de l'eau en diminuant  $d$  [54, 152]. En stoppant le cisaillement, les ognons se regonflent sur des temps caractéristiques pouvant être extrêmement longs [89, 90]. Ce mécanisme pourrait être à l'origine de la granulosité observée à la transition de feuilletage, car l'eau relarguée augmenterait fortement la turbidité de l'échantillon. De plus, ce mécanisme de relargage-regonflement dépend fortement de la température et plus précisément de la proximité de la transition  $L_\alpha-L_3$ . En effet, l'apparition de défauts dans les membranes au voisinage de la phase éponge augmente considérablement la perméation et diminue donc les échelles de temps de regonflement. Cette dépendance avec la température permettrait alors d'expliquer les deux régimes rhéologiques observés :  $T < T_c = 27^\circ\text{C} \leftrightarrow$  aucune oscillation et  $T \geq T_c \leftrightarrow$  oscillations. Les oscillations observées pourraient alors être le résultat d'une com-

pétition entre un processus de mise en ordre induit par le cisaillement et un processus lent de destruction de cet ordre induit.

Les chapitres suivants sont dédiés à une étude, non plus *globale* comme c'était le cas dans ce chapitre, mais *locale* de la transition de feuilletage. Une telle approche nous permettra d'affirmer la présence d'une structuration spatio-temporelle au voisinage de la transition.





# Chapitre 3

## Diffusion dynamique hétérodyne : un outil de vélocimétrie locale en géométrie de Couette

L'objectif de ce chapitre est de présenter une méthode de vélocimétrie mise en œuvre au cours de cette thèse. Cette méthode de mesure locale, basée sur la diffusion dynamique de la lumière, permet d'accéder aux profils de vitesse de fluides cisailés au sein de l'entrefer de la cellule de Couette. L'objectif étant alors d'étudier localement l'instabilité temporelle à laquelle nous nous sommes intéressés précédemment. Ce chapitre instrumental présente les bases théoriques de la méthode utilisée : la diffusion dynamique hétérodyne. Les principales caractéristiques expérimentales du montage sont aussi décrites dans les sections qui suivent. Les résultats présentés dans ce chapitre ont été publiés dans la référence [137].

### 3.1 Quelques généralités

#### 3.1.1 Pourquoi des mesures locales ?

Les fluides complexes sont caractérisés par une échelle mésoscopique se couplant à l'écoulement de cisaillement simple (cf. chapitre 1, page 13). Ce couplage mène à des comportements non-newtoniens stationnaires tels que la rhéofluidification, ou encore dépendants du temps comme le rhéochaos. La caractérisation de ces comportements est principalement effectuée à l'aide des outils classiques de la rhéologie. Les approches de la rhéophysique, couplant une mesure de la structure du fluide à une mesure rhéologique ont alors permis de mieux comprendre les mécanismes du couplage structure-écoulement. Dans

ces expériences cependant, une contrainte mécanique *globale* est appliquée et la déformation *globale* du matériau est mesurée, *e.g.* le couple  $\Gamma$  et la vitesse de rotation  $\Omega$  dans le cas de la géométrie de Couette. Pour certains fluides complexes, cette simple approche globale ne suffit plus car des phénomènes d'écoulements inhomogènes peuvent survenir. Pour tous ces cas particuliers, la mesure du champ de vitesse permet d'accéder au comportement rhéologique local. Illustrons succinctement la nécessité d'une telle approche en rhéologie grâce à trois exemples simples.

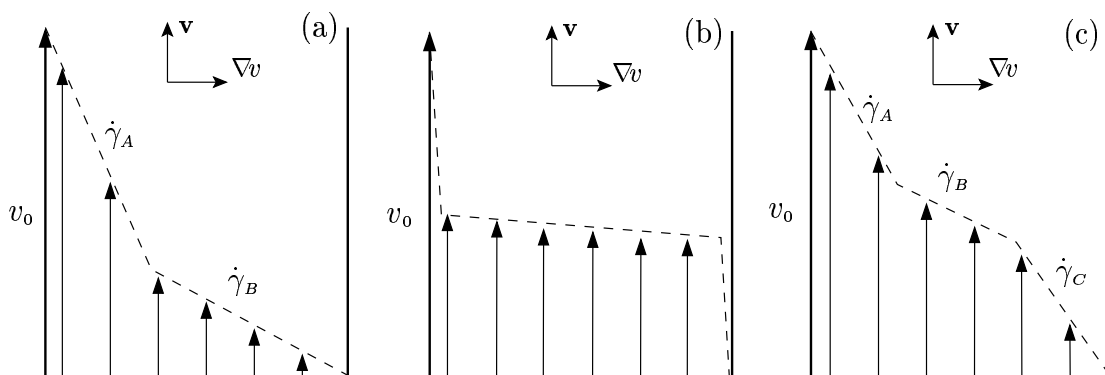


FIG. 3.1 – (a) Cas du « shear-banding » : le profil présente deux bandes de cisaillements distincts  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ . (b) Cas du « glissement apparent » : des films de lubrification aux parois sont fortement cisailés. Le cisaillement en volume du matériau est inférieur au cisaillement indiqué par le rhéomètre. (c) La complexité temporelle du rhéochaos pourrait être masquée par la présence de plusieurs bandes de cisaillements qui auraient leur propre dynamique (cf. section 2.4.4, page 92).  $v_0$  indique la vitesse de la plaque mobile.

C'est le cas notamment pour différents fluides connus pour présenter du shear-banding, littéralement des « bandes de cisaillement » (cf. section 1.1.3, page 27). La courbe d'écoulement typique de ces fluides est celle de la figure 1.8.c : ces fluides sont extrêmement rhéofluidifiants car leur viscosité chute brutalement à une contrainte donnée. Sur le plateau de contrainte, on suppose qu'il y a formation le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ , de plusieurs bandes de cisaillements différents (cf. fig. 3.1.a). Dans ces cas particuliers, le profil de vitesse est indispensable pour mesurer « localement » le cisaillement du fluide.

D'autre part, les fluides complexes présentent parfois des films dits de « lubrification » au voisinage des parois des cellules utilisées dans les expériences de rhéologie. Ces films lubrifiants sont composés d'une sous-phase peu visqueuse et ont une épaisseur très petite ( $\simeq 100$  nm). Ces films absorbent la contrainte visqueuse appliquée de sorte que le cisaillement du matériau en volume, soit bien inférieur au cisaillement mesuré par le rhéomètre

(cf. fig. 3.1.b). La présence de ces couches de lubrification se traduit par un « glissement » apparent. Dans le cas des émulsions par exemple, cet effet de glissement est lié à la présence de couches de déplétion aux parois : l'émulsion au voisinage des parois contient moins de gouttelettes qu'en volume [16]. Dans les expériences de rhéologie, cet effet de glissement aux parois est mis en évidence en faisant varier les paramètres géométriques des cellules utilisées ainsi que leur rugosité [16, 85]. Encore une fois, une approche locale de ces écoulements permet de mesurer quantitativement le glissement et permet aussi d'accéder au cisaillement local du matériau. Par ailleurs, le couplage entre la concentration et le cisaillement dans certains mélanges binaires peut aussi conduire à des écoulements inhomogènes [108]. La mesure du profil de vitesse permet alors d'accéder à la physique du couplage cisaillement-concentration.

Enfin, comme nous l'avons expliqué au chapitre précédent, nous avons de forts arguments quant à une structuration spatiale de l'écoulement de la texture ongon au voisinage de la transition de feuilletage. Nous pensons en effet que l'écoulement est probablement composé de plusieurs bandes de cisaillement dont la dynamique pourrait conduire à une complexité spatio-temporelle du cisaillement (cf. fig. 3.1.c). L'approche locale décrite dans ce chapitre nous permettra alors de vérifier les scénarii énoncés dans la section 2.4.4 (page 92).

### 3.1.2 Contraintes expérimentales

À travers ces trois exemples, « shear-banding », glissement apparent et rhéochaos, il apparaît clairement que les mesures locales en rhéologie sont cruciales pour comprendre les mécanismes physiques du couplage structure-écoulement. Depuis plus de 20 ans, de nombreux efforts ont été dédiés à la mise en place de techniques expérimentales de mesure locale dans le domaine de la rhéologie des fluides complexes [30, 46, 59, 152]. Une telle technique, implémentée sur un rhéomètre standard, permettrait alors d'accéder simultanément à la rhéologie globale et locale. Ce dernier point implique cependant différentes contraintes expérimentales :

- la mesure doit être non-intrusive. En effet les fluides complexes sont généralement très sensibles aux déformations locales. Les sondes locales telles les « fils chauds » classiquement utilisés en hydrodynamique, sont donc exclues ;
- les propriétés optiques des fluides complexes et les épaisseurs mises en jeu (quelques mm) ne permettent pas en général, d'utiliser les techniques optiques telles que la Vélocimétrie Laser Doppler (LDV) ou encore la Spectroscopie de Corrélation de Fluorescence (FCS). En effet, la plupart des matériaux sont opaques et diffusent fortement

la lumière. Il est donc difficile de « suivre » le mouvement d'une gouttelette dans une émulsion ou encore d'une particule fluorescente dans une suspension concentrée. Les seuls cas où il est possible de suivre individuellement les particules par imagerie et d'en déduire un champ de vitesse (« Particule Imaging Velocimetry », PIV), concernent des matériaux transparents : écoulement bidimensionnel d'une mousse [48], pâtes granulaires transparentes [15] ou encore micelles géantes diluées [29, 81] ;

- la technique de mesure locale doit être caractérisée par une « bonne » résolution spatiale. Nous appellerons « bonne » résolution, toute technique capable de distinguer et de mesurer les vitesses de deux volumes du fluide séparés par 50–100  $\mu\text{m}$ . Une telle résolution spatiale permet en effet d'obtenir des profils de vitesse d'une vingtaine de points dans les entrefers des cellules de Couette couramment utilisées ( $e = 1\text{--}3\text{ mm}$ ).

Notons pour finir que la géométrie de Couette, intrinsèquement courbe, induit de nombreux effets de réfraction. Ces effets compliquent évidemment la mise en place des techniques optiques basées sur la diffusion de la lumière. Nous y reviendrons plus longuement dans ce chapitre.

### 3.1.3 NMR et DLS : deux techniques de mesures locales

Parmi les techniques de vélocimétrie locale existantes, deux méthodes uniquement ont été appliquées avec succès à la rhéologie des fluides complexes : l'Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire (NMR, « Nuclear Magnetic Resonance ») et la Diffusion Dynamique de la Lumière (DLS, « Dynamic Light Scattering »).

#### L'Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire, NMR

Callaghan *et al.* ont utilisé cette technique pour imager le champ de vitesse de micelles géantes soumis à un écoulement de cisaillement dans deux géométries différentes : la cellule cône-plan et la cellule de Couette [30, 31, 59, 93]. Ces études ont montré pour la première fois l'existence de bandes de cisaillement dans les systèmes semi-dilués de micelles géantes. La résolution spatiale de cette technique ( $\simeq 20\ \mu\text{m}$ ), en fait un outil puissant de mesure locale pour les fluides complexes. Le seul inconvénient de l'imagerie NMR est la faible résolution temporelle. Dans la référence [59], les auteurs rapportent l'existence de fluctuations temporelles de la vitesse du fluide non résolues par la méthode. En effet, le temps d'accumulation pour obtenir un profil complet à l'aide de cette technique, est approximativement une heure.

Citons aussi les travaux de Coussot *et al.* portant sur l'étude de transitions pâte–fluide dans les systèmes concentrés à l'aide de la vélocimétrie NMR [41, 46]. La résolution spatiale

atteinte ( $\simeq 500 \mu\text{m}$ ) permet aux auteurs d'accéder aux profils de vitesse dans des entrefers de cellule de Couette relativement larges ( $\simeq 1\text{--}2 \text{ cm}$ ). Soulignons de plus que la résolution temporelle ( $\simeq 10\text{--}100 \text{ s}$ ) est bien supérieure à celle du montage de Callaghan *et al.*

### La Diffusion Dynamique de la Lumière, DLS

La Diffusion Dynamique de la Lumière est une technique simple et peu coûteuse, permettant d'accéder localement à l'écoulement d'un fluide cisailé. La DLS est un outil classique pour sonder les corrélations spatio-temporelles des fluctuations de permittivité diélectrique d'un matériau. Grâce à un modèle réaliste de ces fluctuations, la DLS permet d'accéder aux fluctuations dynamiques du matériau. Les fluctuations de permittivité diélectrique à l'échelle  $\lambda$  (la longueur d'onde de la lumière) ont différentes origines : il s'agit par exemple du mouvement brownien de particules diffusantes (la DLS permet alors de mesurer le coefficient de diffusion de ces dernières [21]) ; il peut aussi s'agir des fluctuations thermiques des membranes dans les systèmes lyotropes (les paramètres élastiques des bicouches de tensioactifs peuvent être ainsi mesurés [107]).

Dans le cas d'un écoulement de cisaillement simple, la diffusion dynamique « homodyne » permet de mesurer le cisaillement local [1, 62]. En effet, Ackerson et Clark [1] en voulant mesurer le coefficient de diffusion  $D$  de particules browniennes dans un écoulement de Couette, ont montré qu'il était impossible d'extraire  $D$  des fonctions de corrélation mesurées par diffusion dynamique de la lumière, car le cisaillement induit des décorrélations liées à la géométrie du volume diffusant. Ces décorrélations ont lieu à des temps caractéristiques beaucoup plus petits que le temps de diffusion des particules browniennes. La mesure de ces décorrélations permet alors d'estimer le cisaillement local. Une telle méthode a notamment été développée pour mesurer des gradients de vitesse locaux dans les solutions de polymères soumis à des écoulements extensionnels [138, 151]. Comme nous le montrerons par la suite, le développement de la configuration homodyne n'est pas facilité par la géométrie de Couette.

La diffusion dynamique « hétérodyne » constitue cependant un outil puissant de vélocimétrie basée sur la mesure de l'effet Doppler [21]. Ainsi en géométrie hétérodyne, Gollub *et al.* ont étudié les profils de vitesse de fluides newtoniens au seuil de l'instabilité de Taylor-Couette [64, 65]. Cependant, très peu de mesures locales utilisant cette technique ont été rapportées dans le domaine de la rhéologie des fluides complexes. Ceci est probablement lié à la difficulté expérimentale de construire un interféromètre optique autour d'une cellule de Couette. Soulignons par ailleurs que la LDV (« Laser Doppler Velocimetry ») est en soi une technique de diffusion hétérodyne de la lumière. Depuis les travaux fondateurs de Yeh

et Cummins [156], de nombreuses études fructueuses utilisant cette méthode ont été réalisées dans le domaine de l'hydrodynamique. Cependant la LDV est une technique difficile à mettre en place dans la géométrie de Couette, car elle nécessite la focalisation de deux faisceaux laser en un même point de l'entrefer. C'est pourquoi nous avons préféré utiliser la DLS en mode hétérodyne, où l'interférence entre les deux faisceaux laser est réalisée à l'extérieur de l'échantillon.

## 3.2 Éléments théoriques de diffusion de la lumière dans un écoulement de cisaillement

### 3.2.1 Diffusion dynamique homodyne et hétérodyne

L'objectif de cette section est de présenter les bases théoriques de la diffusion dynamique de la lumière dans un écoulement de cisaillement. Ces éléments théoriques seront indispensables pour passer de l'information optique à la mesure de la vitesse. Dans une expérience typique de diffusion (cf. fig. 3.2), l'échantillon étudié est éclairé par un faisceau de lumière cohérente polarisée. La lumière diffusée à l'angle  $\theta$  est alors collectée par un tube

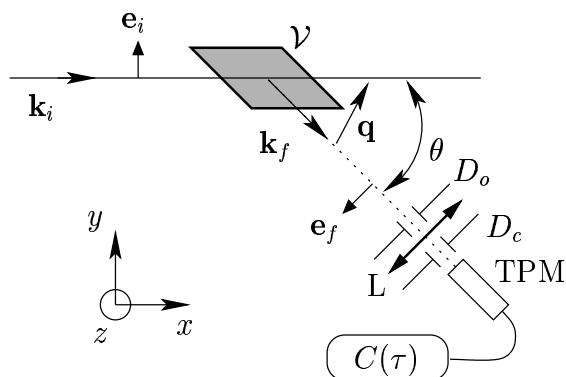


FIG. 3.2 – Géométrie d'un montage de diffusion dynamique homodyne. TPM est le tube photomultiplicateur, les autres symboles sont définis dans le texte.

photomultiplicateur (TPM). Le montage optique collectant la lumière diffusée est constitué d'un diaphragme de champ ( $D_c$ ) et d'une lentille  $L$ . Le volume diffusant  $\mathcal{V}$  est l'intersection entre le faisceau incident et l'image de  $D_c$  à travers  $L$ . Un diaphragme d'ouverture ( $D_o$ ) permet de réduire l'intervalle d'angles  $\theta$  collectés.  $D_o$  permet ainsi de contrôler la taille de l'aire de photodétection. La fonction de corrélation  $C(\tau) = \langle i(t) i(t + \tau) \rangle$  de l'intensité

diffusée  $i(t)$  est obtenue grâce à un corrélateur électronique.  $\mathbf{e}_i$  est la direction de polarisation de la lumière incidente et  $\mathbf{e}_f$  celle de l'analyseur placé entre le volume diffusant  $\mathcal{V}$  et l'optique de détection.

### Géométrie homodyne

Lorsque le tenseur de permittivité diélectrique  $\bar{\bar{\epsilon}}(\mathbf{r}, t)$  du matériau est faiblement perturbé, *i.e.*  $\bar{\bar{\epsilon}}(\mathbf{r}, t) = \epsilon \mathcal{I} + \overline{\overline{\delta\epsilon}}(\mathbf{r}, t)$  et  $\overline{\overline{\delta\epsilon}} \ll \bar{\bar{\epsilon}}$  ( $\mathcal{I}$  est le tenseur unité), l'amplitude complexe du champ diffusé à l'angle  $\theta$  est donnée par [21] :

$$E_d(t) \propto \widehat{\delta\epsilon}_{if}(\mathbf{q}, t), \quad (3.1)$$

où  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f$  est le « vecteur de diffusion », dont la norme est :

$$q = \frac{4\pi n}{\lambda} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right), \quad (3.2)$$

et  $\widehat{\delta\epsilon}_{if}(\mathbf{q}, t)$  est la composante  $if$  du tenseur de la transformée de Fourier de la permittivité diélectrique restreinte au volume  $\mathcal{V}$  :

$$\widehat{\delta\epsilon}_{if}(\mathbf{q}, t) = \int_{\mathcal{V}} d^3\mathbf{r} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \mathbf{e}_i \overline{\overline{\delta\epsilon}}(\mathbf{r}, t) \mathbf{e}_f. \quad (3.3)$$

Par la suite, nous nous intéresserons uniquement qu'à la composante  $zz$  du tenseur  $\overline{\overline{\delta\epsilon}}(\mathbf{r}, t)$  et nous écrirons :  $\delta\epsilon(\mathbf{r}, t) \hat{=} \delta\epsilon_{zz}(\mathbf{r}, t)$ .

La mesure de l'intensité diffusée à l'angle  $\theta$  permet de déterminer les fluctuations spatiales de permittivité diélectrique à l'échelle  $q^{-1}$ . Rappelons aussi que l'intensité  $i(t)$  mesurée par le tube photomultiplicateur est donnée par :  $i(t) \propto E_d(t) E_d^*(t)$ . En diffusion dynamique, les fluctuations temporelles sont déterminées par la fonction de corrélation suivante :

$$C(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T du i(u) i(u + \tau) \hat{=} \langle i(t) i(t + \tau) \rangle. \quad (3.4)$$

Si  $\delta\epsilon(\mathbf{r}, t)$  est une variable aléatoire gaussienne, on montre que :

$$C(\tau) = A + B \|g^{(1)}(\tau)\|^2, \quad (3.5)$$

où  $A$  et  $B$  sont deux constantes qui dépendent du rapport « signal sur bruit » (qui dépend principalement de la taille du volume diffusant et de l'aire de photodétection) et où

$$g^{(1)}(\tau) = \langle \widehat{\delta\epsilon}(\mathbf{q}, t) \widehat{\delta\epsilon}^*(\mathbf{q}, t + \tau) \rangle, \quad (3.6)$$

est la fonction d'auto-corrélation de la transformée de Fourier des fluctuations de  $\delta\epsilon(\mathbf{r}, t)$  à l'échelle  $q^{-1}$  et au temps  $\tau$ . Un montage mesurant le module carré  $\|g^{(1)}(\tau)\|^2$  de cette fonction est appelé un montage de diffusion dynamique homodyne.



## Géométrie hétérodyne

Dans le cas où les fluctuations de  $\delta\epsilon(\mathbf{r}, t)$  ne sont pas gaussiennes ou lorsque  $g^{(1)}(\tau)$  contient des termes de phase pertinents, la géométrie homodyne ne suffit plus. Pour accéder à la partie réelle de  $g^{(1)}(\tau)$ , on utilise alors la diffusion « hétérodyne ». Cette méthode consiste à mesurer le signal résultant de l'interférence entre le champ diffusé  $E_d(t)$  et un *oscillateur local*  $E_{OL}$  obtenu à partir du faisceau incident. Le champ mesuré est alors  $E(t) = E_{OL} + E_d(t)$ . La fonction de corrélation  $\langle i(t) i(t+\tau) \rangle = \langle \|E_{OL} + E_d(t)\|^2 \|E_{OL} + E_d(t+\tau)\|^2 \rangle$  fait donc intervenir des termes d'interférence entre l'oscillateur local constant  $E_{OL}$  et le champ diffusé  $E_d(t)$ . Lorsque l'amplitude de l'oscillateur local est grande devant celle du champ diffusé, la géométrie hétérodyne permet alors une mesure de la partie réelle de  $g^{(1)}(\tau)$  car la fonction de corrélation mesurée est donnée par [21] :

$$C(\tau) = A' + B' \operatorname{Re}(g^{(1)}(\tau)) , \quad (3.7)$$

où  $A'$  et  $B'$  sont deux constantes qui dépendent du rapport signal sur bruit.

### 3.2.2 Un modèle simple pour $g^{(1)}(\tau)$ dans un écoulement de cisaillement

#### Considérations physiques

Considérons désormais le cas où le volume diffusant  $\mathcal{V}$  est soumis à un écoulement de cisaillement comme représenté sur la figure 3.3. Le champ de vitesse correspondant s'écrit :

$$\mathbf{v}(\mathbf{r}) = v \mathbf{e}_y + \dot{\gamma}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_x) \mathbf{e}_y . \quad (3.8)$$

Le problème théorique de la diffusion dynamique par une assemblée de diffuseurs dans un champ de cisaillement a été étudié de façon exhaustive [1, 62, 94, 151]. Ces travaux montrent que la géométrie homodyne permet de mesurer le cisaillement local grâce à des décorrélations liées à la géométrie du volume diffusant. La géométrie hétérodyne quant à elle, permet de mesurer la vitesse moyenne au sein de  $\mathcal{V}$  grâce à l'effet Doppler. En effet, la fréquence de la lumière diffusée est décalée de la quantité  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}$  car les diffuseurs sont soumis à un mouvement de convection moyen à la vitesse  $\mathbf{v}$ . Il est simple de montrer que  $g^{(1)}(\tau) = \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{v} \tau) F(\tau)$ , où  $F(\tau)$  contient les décorrélations liées à la géométrie du volume diffusant. Comme la diffusion homodyne mesure le module carré de  $g^{(1)}(\tau)$ , seule la configuration hétérodyne permet l'accès à la vitesse locale.

L'objectif de ce paragraphe est de donner quelques arguments physiques simples pour appréhender la fonction de corrélation mesurée. Nous présenterons ensuite des équations

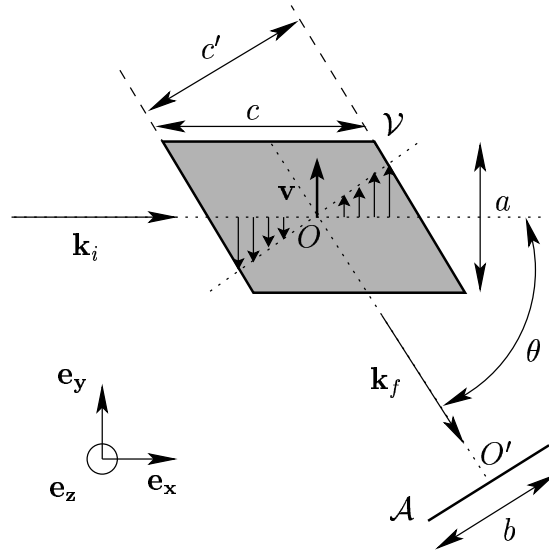


FIG. 3.3 – Géométrie du volume diffusant  $\mathcal{V}$  soumis à un écoulement de cisaillement.  $\mathcal{A}$  est la photocathode.

pour  $C(\tau)$  qui seront résolues numériquement dans la section 3.3.3. La géométrie étudiée est celle de la figure 3.3 : le faisceau incident est normal à la direction de la vitesse  $y$  et de la vorticité  $z$ . Dans un écoulement de cisaillement, Ackerson et Clark [1] ont montré les corrélations spatio-temporelles de la permittivité diélectrique ne dépendaient que des variables suivantes :

$$\Gamma(\mathbf{r}, t, \mathbf{r}', t') \hat{=} \langle \delta\epsilon(\mathbf{r}, t) \delta\epsilon(\mathbf{r}', t') \rangle = \Gamma(\mathbf{r}' - \mathbf{r} - (\mathbf{v} + \dot{\gamma}(\mathbf{r} \cdot \mathbf{e}_x) \mathbf{e}_y)(t' - t), t' - t). \quad (3.9)$$

En présence d'un écoulement de cisaillement, les propriétés physiques au sein du volume diffusant ne sont plus invariantes par les translations d'espace. La cohérence spatiale du champ diffusé est alors modifiée profondément. À partir de l'équation (3.9), on montre que :

$$\langle \hat{\delta}\epsilon(\mathbf{q}, t) \hat{\delta}\epsilon(-\mathbf{q}', t + \tau) \rangle \neq 0, \quad (3.10)$$

seulement si la condition suivante est vérifiée :

$$\mathbf{q}' = \mathbf{q} + \dot{\gamma}\tau(\mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_y) \mathbf{e}_x. \quad (3.11)$$

En réalité, cette condition est uniquement vraie pour un volume diffusant infini. Dans la pratique,  $\mathcal{V}$  correspond à l'intersection de deux cylindres infinis et ressemble qualitativement à un parallélépipède de dimensions  $a \times a \times c$  (cf. fig. 3.3). Le vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$  est donc uniquement défini à la précision  $\delta q_x = \pm 2\pi/c$  et  $\delta q_y = \delta q_z = \pm 2\pi/a$ . La taille finie de

$\mathcal{V}$  impose que la lumière diffusée à une distance  $R$  soit constituée de « grains de speckle » de taille  $\lambda R/c$ . La lumière diffusée est spatialement cohérente au sein de ces grains appelés pour cette raison « aires de cohérence ». La fonction de corrélation mesurée en diffusion dynamique devient alors :

$$g^{(1)}(\tau) = \sum_{\mathbf{q}, \mathbf{q}' \in \mathcal{A}} \langle \widehat{\delta\epsilon}(\mathbf{q}, t) \widehat{\delta\epsilon}(-\mathbf{q}', t + \tau) \rangle, \quad (3.12)$$

où la somme est effectuée sur l'ensemble des aires de cohérence collectées par le photomultiplicateur. Soulignons cependant que dans la plupart des montages de diffusion dynamique, le diaphragme d'ouverture  $D_o$  est réduit de sorte qu'une seule aire de cohérence soit collectée.

En présence d'un écoulement de cisaillement, l'équation (3.11) implique un mouvement de ces aires de cohérence le long de la direction  $x$ . La lumière diffusée se décorrèle donc lorsque  $\|\mathbf{q}' - \mathbf{q}\| > \delta q_x$ , *i.e.* lorsque  $\tau > \tau_\gamma = 2\pi/(c\dot{\gamma}q_y)$ . Cette décorrélation doit être modulée par l'effet de taille finie de l'aire de photodétection. En effet, la distance séparant deux aires de cohérence contribuant à  $C(\tau)$  est de l'ordre de  $\delta R \simeq \|\mathbf{q}' - \mathbf{q}\| R/k_f \simeq \dot{\gamma} R \tau$ . Pour des temps  $\tau > \tau_A = b/(\dot{\gamma}R)$ , le signal se décorrèle car les deux grains sont séparés de plus de  $b$ , la taille moyenne de l'aire de photodétection. Par ailleurs, la taille finie de  $\mathcal{V}$  impose un troisième temps de décorrélation  $\tau_t$ . Ce temps de « transit » correspond au passage des particules dans le volume diffusant le long de la direction  $y$  :  $\tau_t \simeq a/v$  où  $v$  est la vitesse moyenne au sein de  $\mathcal{V}$ . Dans la plupart des situations expérimentales, la condition  $\tau_t \gg \tau_\gamma$  est vérifiée et cette décorrélation ne peut être mesurée. Pour finir notons que la plupart des systèmes physiques présentent des décorrélations intrinsèques liées aux dynamiques microscopiques. C'est le cas par exemple du mouvement brownien dans les suspensions colloïdales diluées. Ces dynamiques sont caractérisées par des temps de décorrélation généralement grands devant les temps  $\tau_\gamma$  et  $\tau_A$  [1].

Ainsi, à partir de ces arguments physiques simples, on montre que la fonction  $g^{(1)}(\tau)$  mesurée en diffusion dynamique de la lumière, prend la forme suivante :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}\tau} F(\tau_\gamma, \tau_A, \tau). \quad (3.13)$$

### Équations générales pour $F(\tau_\gamma, \tau_A, \tau)$

Nous présentons ici les équations générales permettant de calculer les fonctions de corrélation pour un volume diffusant soumis à un écoulement de cisaillement. La configuration géométrique de l'expérience de diffusion de la lumière est celle de la figure 3.4. Le champ

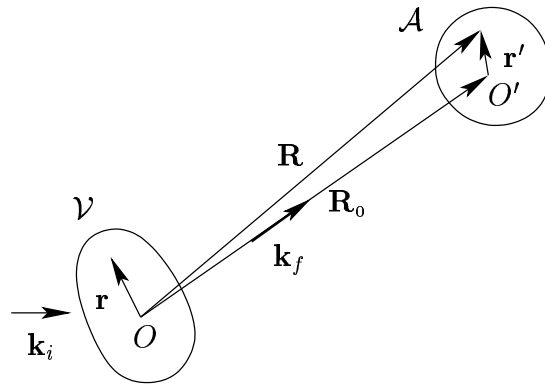


FIG. 3.4 – Configuration schématique d'un problème de diffusion de la lumière.  $\mathcal{V}$  est le volume diffusant et  $\mathcal{A}$  la photocathode.

électrique diffusé au point  $\mathbf{R} = \mathbf{R}_0 + \mathbf{r}'$  par le volume diffusant  $\mathcal{V}$  est donné par [21] :

$$E_d(\mathbf{R}, t) = \frac{k_f^2 E_0 e^{i(k_i R_0 - \omega t)}}{4\pi\epsilon_0 R_0} e^{i\mathbf{k}_f \cdot \mathbf{r}'} \widehat{\delta\epsilon} \left( \mathbf{q} + \frac{k_f}{R_0} \mathbf{r}', t \right), \quad (3.14)$$

avec  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i$  et en supposant que  $R \gg r$  et  $R \gg r'$ .  $R_0$  est la distance entre le centre  $O'$  de la photocathode  $\mathcal{A}$  et  $O$  le centre du volume diffusant  $\mathcal{V}$ . En diffusion dynamique de la lumière, la fonction d'auto-corrélation est :

$$g^{(1)}(\tau) \propto \iint_{\mathcal{A}} \langle E_d(\mathbf{R}', t) E_d^*(\mathbf{R}'', t + \tau) \rangle. \quad (3.15)$$

En utilisant la relation (3.14), cette dernière peut s'écrire :

$$g^{(1)}(\tau) \propto \iint_{\mathcal{A}} d\mathbf{r}' d\mathbf{r}'' e^{i\mathbf{k}_f \cdot (\mathbf{r}' - \mathbf{r}'')} \left\langle \widehat{\delta\epsilon} \left( \mathbf{q} + \frac{k_f}{R_0} \mathbf{r}', t \right) \widehat{\delta\epsilon}^* \left( \mathbf{q} + \frac{k_f}{R_0} \mathbf{r}'', t + \tau \right) \right\rangle. \quad (3.16)$$

Pour prendre en compte l'effet du cisaillement sur ces fonctions, un modèle microscopique de la permittivité diélectrique est nécessaire. Une simple approche consiste à considérer des diffuseurs ponctuels et indépendants se déplaçant dans l'écoulement. La permittivité diélectrique devient alors :  $\delta\epsilon(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=1}^N \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t))$  et  $\mathbf{r}_i(t + \tau) = \mathbf{r}_i(t) + \mathbf{v}\tau + \dot{\gamma}x\mathbf{e}_y\tau$ , où la somme est effectuée sur l'ensemble des particules dans le volume diffusant. À l'aide de ce modèle, la relation (3.16) devient :

$$g^{(1)}(\tau) \propto \iint_{\mathcal{A}} d\mathbf{r}' d\mathbf{r}'' e^{i\mathbf{k}_f \cdot (\mathbf{r}' - \mathbf{r}'')} \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{r} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{v} + \dot{\gamma}x\mathbf{e}_y)\tau} e^{i(k_f/R_0)[\mathbf{r} \cdot (\mathbf{r}' - \mathbf{r}'') + \mathbf{r}' \cdot (\mathbf{v} + \dot{\gamma}x\mathbf{e}_y)\tau]}. \quad (3.17)$$

Dans la plupart des expériences (ce sera le cas de notre montage), la photocathode peut être considérée comme ponctuelle : le diaphragme d'ouverture  $D_o$  est choisi de sorte qu'une

seule aire de cohérence soit détectée. Dans ce cas simple, la relation précédente devient :

$$g^{(1)}(\tau) \propto \int_{\mathcal{V}} d\mathbf{r} e^{i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{v}+\dot{\gamma}\mathbf{x}\mathbf{e}_y)\tau}. \quad (3.18)$$

En diffusion dynamique hétérodyne, la fonction de corrélation après normalisation s'écrit alors (cf. relation (3.7)) :

$$C(\tau) \propto \cos(\mathbf{q}\cdot\mathbf{v}\tau) \int_{\mathcal{V}} e^{i\dot{\gamma}xq_y\tau}. \quad (3.19)$$

Pour aller plus loin dans la résolution de l'équation (3.19), la forme du volume diffusant doit être spécifiée (cf. section 3.3.3).

## 3.3 Diffusion dynamique de la lumière sous écoulement de Couette

### 3.3.1 Montage expérimental

Le montage représenté schématiquement sur la figure 3.5 permet de réaliser simultanément les expériences de rhéologie et de vélocimétrie. Pour sonder les propriétés rhéologiques des fluides complexes, on utilise le dispositif décrit dans la section 2.1.2, page 53 : un rhéomètre commercial (AR 1000N) muni de diverses géométries de Mooney–Couette. Le rhéomètre est posé sur une table mécanique dont les déplacements sont contrôlés par un ordinateur. Cette table micrométrique permet de déplacer le rhéomètre dans les trois directions de l'espace avec une précision de 1  $\mu\text{m}$ . Une photo complète du montage est présentée dans l'annexe A, page 233.

Un faisceau laser  $La_1$  (He–Ne, 40 mW,  $\lambda = 632.8$  nm) traverse la cellule de Couette et est focalisé au sein de l'entrefer par une lentille  $L$  (focale  $f = 10$  cm). Le laser  $La_1$  est polarisé dans la direction de la vorticit e  $z$ . Un filtre spatial  $FS_1$ , composé d'un objectif de microscope et d'une fibre monomode  $f_1$  (IDIL, diam tre de c eur  $d = 4$   $\mu\text{m}$ ) permet de collecter le champ  lectrique diffus e   un angle  $\theta_{\text{imp}}$  impos e.

Pour r aliser l'h t erodyne, un oscillateur local est facilement obtenu   partir du faisceau incident gr ce   une lame semi-r fl chissante ( $SR$ ) et un second filtre spatial  $FS_2$ . Cet oscillateur local est dirig e   travers la fibre monomode  $f_2$ . L'interf rence entre ce dernier et le champ diffus e est r alis e gr ce au coupleur de fibre monomode  $C$  (IDIL).   la sortie de ce dernier, l'interf rence r sultante est achemin e au photomultiplicateur (TPM) connect e   un corr lateur  lectronique. Entre  $FS_2$  et la lame semi-r fl chissante  $SR$ , un att nuateur  $A$  permet d' viter un trop fort  clairnement du tube photomultiplicateur.

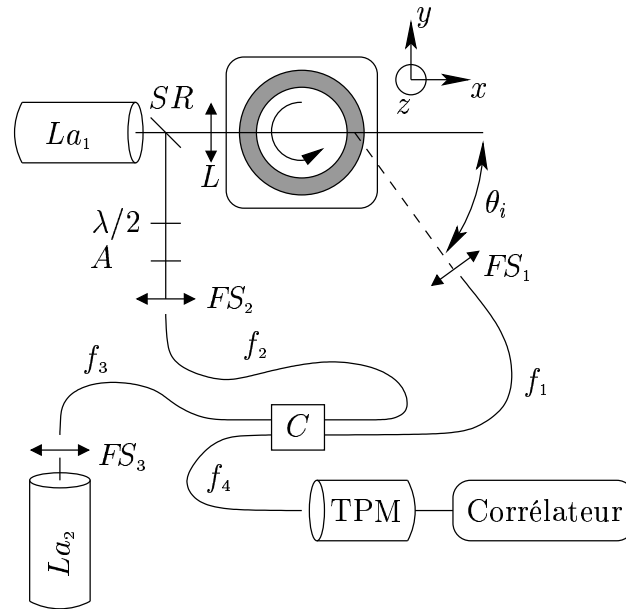


FIG. 3.5 – Dispositif de diffusion dynamique hétérodyne de la lumière en écoulement de Couette.  $FS$  sont les différents filtres spatiaux et  $C$  le coupleur de fibres monomodes notées  $f$ . Les autres symboles sont explicités dans le texte.

Les fibres utilisées ne permettent pas de maintenir la polarisation de la lumière le long de ces dernières. Cependant on peut maintenir approximativement la polarisation en modifiant les contraintes mécaniques des fibres. Nous avons donc appliqué une certaine courbure aux fibres grâce à des « boucles » sur ces dernières, de sorte que la polarisation reste approximativement constante dans les fibres. Une lame  $\lambda/2$  permet alors de changer la polarisation du champ à l'entrée de la fibre  $f_2$ . La direction de cette lame est choisie de sorte que la polarisation du champ diffusé et de l'oscillateur local au niveau du coupleur aient la même direction. L'interférence résultante est alors maximale. Pour visualiser le volume diffusant et accéder à ses caractéristiques géométriques, un second laser  $La_2$  (He-Ne, 10 mW) couplé à un filtre spatial  $FS_3$  et une fibre  $f_3$  nous permet de visualiser l'intersection entre le faisceau incident et le faisceau diffusé.

Pour finir, soulignons que l'utilisation d'un coupleur de fibres monomodes permet une grande flexibilité quant au choix de l'angle  $\theta_{imp}$ , tout en gardant les conditions d'interférométrie requise pour l'hétérodynage. Par ailleurs, par construction géométrique d'une fibre monomode, cette dernière ne collecte que la lumière spatialement cohérente. Une unique aire de cohérence est alors collectée dans le montage décrit. Cette caractéristique permet de simplifier grandement les équations décrites précédemment puisque l'équation (3.19) suffit

pour décrire le problème théorique.

### 3.3.2 Cellule de Couette et effets de réfraction

Pour mesurer un profil de vitesse à partir des fonctions de corrélation hétérodynes obtenues, plusieurs paramètres interviennent : l'angle de diffusion  $\theta$  ainsi que les positions exactes du stator et du rotor. Cependant l'utilisation d'une cellule de Couette thermostatée complique la détermination de ces paramètres. En effet, cette cellule, représentée sur la figure 3.6, est constituée de quatre interfaces successives séparant le fluide cisailé de la

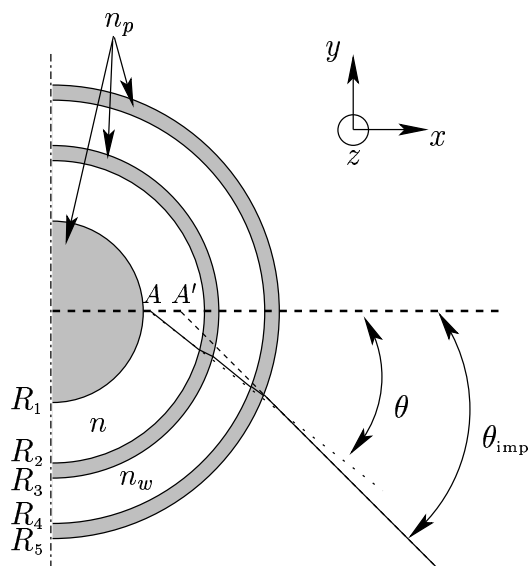


FIG. 3.6 – Cellule de Couette utilisée. Le plexiglas (indice  $n_p$ ) est indiqué en gris. L'échantillon (indice  $n$ ) est situé entre  $R_1$  et  $R_2$ . L'eau thermostatée (indice  $n_e$ ) entre  $R_3$  et  $R_4$ .

circulation d'eau permettant le contrôle de la température. Cette cellule de Couette agit alors comme une lentille cylindrique induisant de nombreuses complications :

- l'angle  $\theta_{imp}$  imposé par l'expérimentateur ne correspond pas à l'angle réel de diffusion  $\theta$  ;
- le volume diffusant se trouve au point  $A$  et non au point  $A'$  (cf. fig. 3.6). Cet effet complique donc la détermination des positions exactes du stator et du rotor ;
- lorsque le rhéomètre est déplacé de la quantité  $\delta x$  le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ , le déplacement réel  $\delta x'$  du volume diffusant diffère légèrement.

Ces effets de réfraction optique doivent être pris en compte pour obtenir les mesures de profils de vitesse. Pour connaître les relations entre  $\theta_{imp}$ ,  $\theta$ ,  $\delta x$  et  $\delta x'$ , nous avons simplement

écrit les lois de Snell-Descartes pour les quatre interfaces. Pour ne pas alourdir le texte, ces calculs sont présentés dans l'annexe B, page 237. Les paramètres géométriques utilisés dans ce chapitre sont :  $R_1 = 22$ ,  $R_2 = 25$ ,  $R_3 = 27.5$ ,  $R_4 = 30.5$  et  $R_5 = 36$  mm. L'indice optique des fluides étudiés par la suite est  $n = 1.40$ , les indices du Plexiglas et de l'eau sont respectivement  $n_p = 1.47$  et  $n_e = 1.33$ . Ces indices ne varient pas significativement sur la gamme de température étudiée ( $T = 25\text{--}35^\circ\text{C}$ ) et la dilatation thermique du Plexiglas est négligeable. L'angle imposé est  $\theta_{\text{imp}} = 35^\circ$ . Avec de tels paramètres, les relations de Snell-Descartes mènent à  $\delta x' = f_x \delta x$  avec  $f_x \simeq 1.13$  et  $\theta = f_\theta \theta_{\text{imp}}$  avec  $f_\theta \simeq 0.79$ . À une très bonne approximation,  $f_x$  ne dépend pas de la position  $x$  au sein de l'entrefer. Cependant, l'angle  $\theta$  varie légèrement avec  $x$  à travers  $f_\theta$  : la variation relative de l'angle est de l'ordre de  $\delta\theta/\theta \simeq 3\%$  à travers l'entrefer. Ce dernier point est particulièrement important car la diffusion hétérodyne mesure le décalage Doppler  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}$ . Ce dernier dépend de l'angle de diffusion  $\theta$  à travers le vecteur de diffusion  $\mathbf{q}$ . La variation de  $\theta$  dans l'entrefer conduit donc à une incertitude intrinsèque sur la mesure de la vitesse de l'ordre de  $\delta v/v \simeq 3\%$ . Notons cependant que les expériences menées par la suite sur les systèmes de micelles géantes et de phases lamellaires (indice optique  $n \simeq 1.35$ ) ont été réalisées dans des entrefers d'épaisseurs  $e = 1$  et  $e = 0.5$  mm, à un angle imposé beaucoup plus grand ( $\theta_{\text{imp}} \simeq 60^\circ$ ). Dans ces cas, l'incertitude sur la mesure devient  $\delta v/v \simeq 1\%$ .

### 3.3.3 Caractéristiques géométriques du volume diffusant et solutions numériques des fonctions de corrélation

Comme nous l'avons précédemment souligné, la fonction de corrélation mesurée dépend de la forme du volume diffusant  $\mathcal{V}$  (cf. relation (3.19)). Par ailleurs, la taille caractéristique de ce dernier contrôle la résolution spatiale de notre montage. Les paragraphes suivants concernent donc la détermination de la forme de  $\mathcal{V}$  ainsi que la résolution numérique de la relation (3.19).

#### Forme du volume diffusant

La géométrie du volume diffusant  $\mathcal{V}$  dépend essentiellement du diaphragme de champ  $D_c$ , de la lentille utilisée dans le filtre spatial  $FS_1$  et de la distance  $R$  entre  $FS_1$  et  $\mathcal{V}$ . Pour déterminer la taille de  $\mathcal{V}$ , nous pouvons visualiser ce dernier à l'aide du laser  $La_2$  (cf. section 3.3.1, page 116). Grâce à une lame acérée se déplaçant à travers le faisceau et en mesurant l'intensité transmise par la lame à différentes hauteurs  $z$ , on peut déduire la forme du faisceau. En effet, les profils d'intensité du faisceau sont facilement obtenus en dérivant



les intensités transmises à différentes hauteurs. Sur la figure 3.7, la distance focale de la

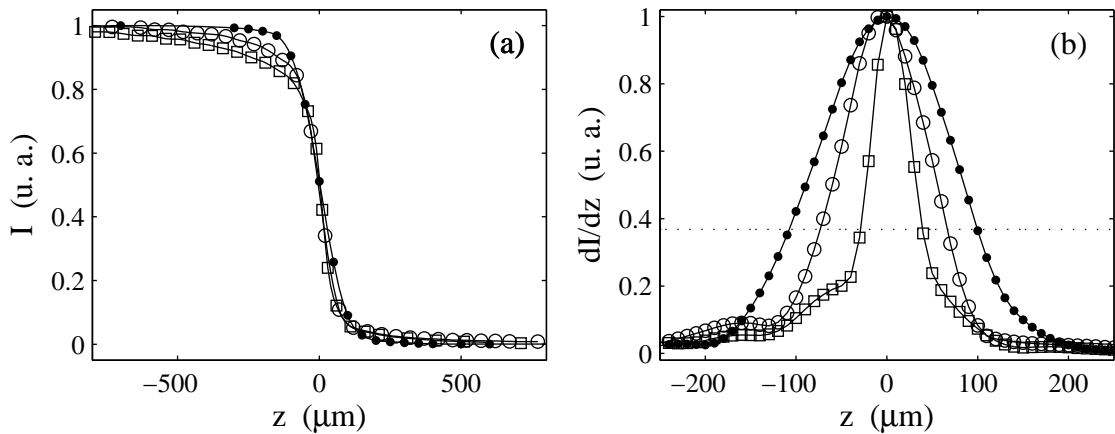


FIG. 3.7 – (a) Intensité collectée sur une photodiode après transmission par une lame acérée traversant le faisceau diffusé. Ce dernier est visualisé grâce au laser  $La_2$  (cf. fig. 3.5). (b) Profils d'intensité obtenus en dérivant les données de la figure 3.7.a. Les différentes distances focales de la lentille du filtre spatial  $FS_1$  sont : 2.9 mm ( $\bullet$ ), 5.5 mm ( $\circ$ ) et 11 mm ( $\square$ ). La ligne pointillée indique la valeur  $e^{-1}$  permettant de définir la longueur  $c'$ .

lentille du filtre  $FS_1$  a été variée et les profils d'intensité ont été mesurés à une distance  $R = 13$  cm, après avoir focalisé l'image du cœur de la fibre sur la lame. Cette méthode permet d'obtenir facilement la taille caractéristique  $c'$  du volume diffusant. Nous choisissons de définir  $c'$  comme la demi-largeur des profils d'intensité à la valeur relative  $e^{-1}$  (cf. fig. 3.7.b). La plus petite taille est obtenue pour la distance focale  $f = 11$  mm :  $c' = 40 \mu\text{m}$ . Cette valeur est en bon accord avec le grandissement géométrique  $\gamma \simeq R/f \simeq 10$  donnant  $c' \simeq \gamma d \simeq 40 \mu\text{m}$ , où  $d = 4 \mu\text{m}$  est le diamètre de cœur de la fibre utilisée.

Afin d'être sûr que l'image de la fibre monomode  $f_1$  soit exactement localisée sur la lame, nous avons mesuré les largeurs du faisceau pour différentes positions de « défocalisation »  $d_{FL}$  entre la lentille et la fibre. Sur la figure 3.8 sont présentées différentes longueurs caractéristiques  $c'$  pour divers  $d_{FL}$  avec la lentille de focale  $f = 11$  mm. Le minimum de cette courbe ( $d_{FL} = 0$ ) correspond à la valeur  $c' = 40 \mu\text{m}$  reportée sur la figure 3.7.b précédente. Ce minimum est atteint lorsque l'image du cœur de la fibre est située exactement sur la lame. Lorsque les effets de réfraction de la cellule de Couette sont pris en compte, la longueur  $c$  caractéristique du volume diffusant (cf. fig. 3.3) est donnée par :  $c = f_x c' / \sin(f_\theta \theta_{\text{imp}}) \simeq 100 \mu\text{m}$ .

En utilisant la même méthode avec le laser  $La_1$ , nous avons mesuré la dimension trans-

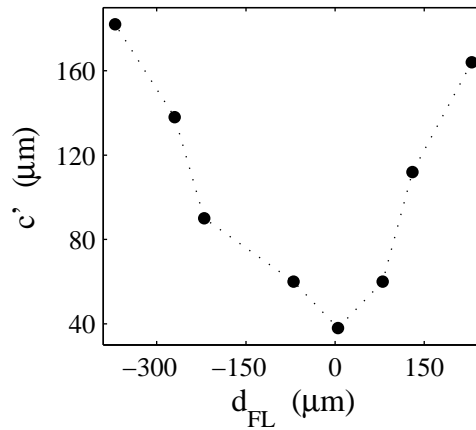


FIG. 3.8 – Largeur  $c'$  du faisceau diffusé *vs.*  $d_{FL}$  la distance de « défocalisation ». La distance focale du filtre spatial  $FS_1$  est  $f = 11$  mm.

verse  $a$  du volume diffusant  $\mathcal{V}$  :  $a \simeq 20 \mu\text{m}$ . Cette valeur est en accord avec la relation de conjugaison d'un faisceau gaussien :  $a \simeq \lambda f / (\pi \omega_0) \simeq 20 \mu\text{m}$ , où  $\omega_0 \simeq 1$  mm est le « beam waist » du faisceau incident et  $f = 10$  cm la distance focale de la lentille  $L$ .

### Intégration numérique de $C(\tau)$

À l'aide des profils d'intensité expérimentaux de la figure 3.7.b donnant la forme du volume diffusant  $\mathcal{V}$ , nous avons résolu numériquement l'équation (3.18) pour différents cisaillements. Nous avons donc simplement convolué les formes expérimentales du volume diffusant (fig. 3.7.b) avec le facteur  $\exp(i\dot{\gamma}xq_y\tau)$  pour différents cisaillements  $\dot{\gamma}$  et différents temps  $\tau$  à un angle de diffusion  $\theta_{\text{imp}} = 35^\circ$ . Afin de prendre en compte les effets de réfraction optique, une dilatation d'un facteur  $f_x / \sin(\theta)$  a été préalablement appliquée sur les formes expérimentales de  $\mathcal{V}$ . La figure 3.9.a présente les fonctions de corrélation homodynes théoriques ainsi calculées pour différents cisaillements  $\dot{\gamma}$ . La figure 3.9.b présente les temps  $\tau_{1/2}$  de ces fonctions de corrélations définis par  $C(\tau_{1/2}) = 1/2$ . L'ajustement des données de la figure 3.9.b indique que  $\tau_{1/2} \propto \dot{\gamma}^{-1}$  ainsi que les considérations physiques de la section 3.2.2 le prédisaient.

### 3.3.4 Expériences préliminaires à l'aide d'un fluide newtonien

Afin de mesurer les profils de vitesse dans des fluides complexes, une calibration du montage à l'aide d'un écoulement simple doit être effectuée. Cette calibration doit être

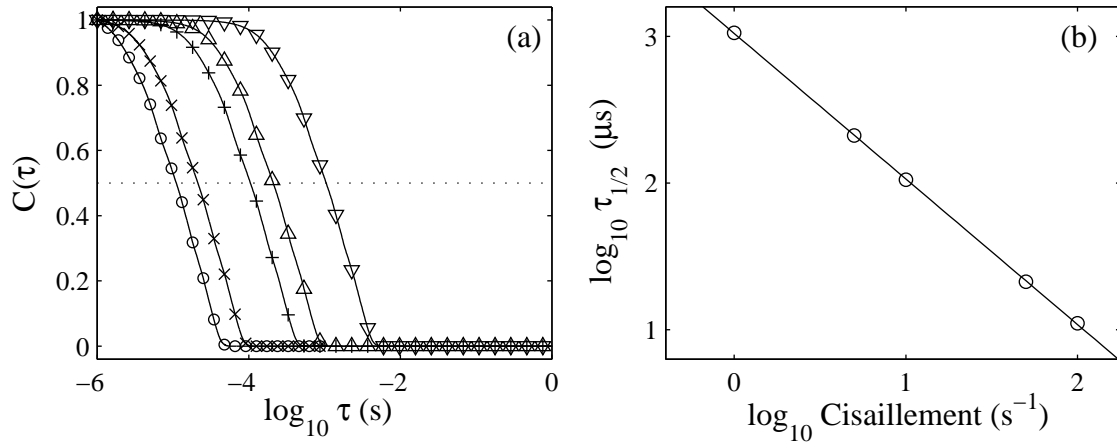


FIG. 3.9 – (a) Fonctions de corrélation homodynes calculées numériquement grâce à l'équation (3.18) pour différents cisaillements :  $\dot{\gamma} = 1$  ( $\nabla$ ), 5 ( $\Delta$ ), 10 (+), 50 ( $\times$ ) et  $100 \text{ s}^{-1}$  (o). La ligne pointillée indique la valeur  $C(\tau) = 1/2$  utilisée pour calculer les temps  $\tau_{1/2}$ . (b)  $\tau_{1/2}$  vs.  $\dot{\gamma}$ . La ligne continue est le meilleur ajustement des données par une loi de puissance :  $\tau_{1/2} \sim \dot{\gamma}^{-0.99}$ .

réalisée avec le même indice que le fluide étudié et à la même température pour éviter les effets de dilatation thermique de la cellule de Couette. Pour cela, nous présentons ici quelques expériences réalisées à l'aide d'une suspension diluée de Latex ( $\phi \simeq 0.1\%$  et diamètre  $\simeq 80 \text{ nm}$ ) dans un mélange eau-glycérol d'indice optique  $n = 1.40$ . Ce mélange est un fluide newtonien dont les profils de vitesse sont connus dans la géométrie de Couette (cf. section 1.1.2, page 23). Dans la suite nous montrons que, même si en principe la géométrie homodyne permet une estimation du cisaillement local  $\dot{\gamma}$ , les effets optiques induits par la géométrie de Couette sur la forme de  $\mathcal{V}$  ne permettent qu'une mesure relative de  $\dot{\gamma}$ .

Des fonctions de corrélation typiques sous cisaillement ( $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ ) sont présentées sur la figure 3.10 où la racine carrée de la fonction homodyne est présentée. Comme le prédisent les relations (3.5) et (3.13),  $C(\tau)^{1/2}$  dans la géométrie homodyne correspond à l'enveloppe de la fonction hétérodyne. Cette enveloppe présente une décroissance à un temps caractéristique de l'ordre de  $80 \mu\text{s}$ .

La figure 3.11 présente les temps  $\tau_{1/2}$  mesurés pour différents  $\dot{\gamma}$  sur les fonctions homodynes. Ce temps varie comme  $\tau_{1/2} \sim \dot{\gamma}^{-1}$ , en accord avec la prédiction théorique :  $\tau_{\dot{\gamma}} \sim \dot{\gamma}^{-1}$ . Par ailleurs, les valeurs numériques expérimentales  $\tau_{1/2}(\dot{\gamma})$  sont en accord qualitatif avec celles calculées théoriquement (cf. fig. 3.9.b).

Sur la figure 3.12.a, nous avons présenté  $\tau_{1/2}$  pour différentes distances de défocalisation  $d_{FL}$  à un cisaillement de  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ . Changer la distance  $d_{FL}$  entre l'entrée de fibre et la

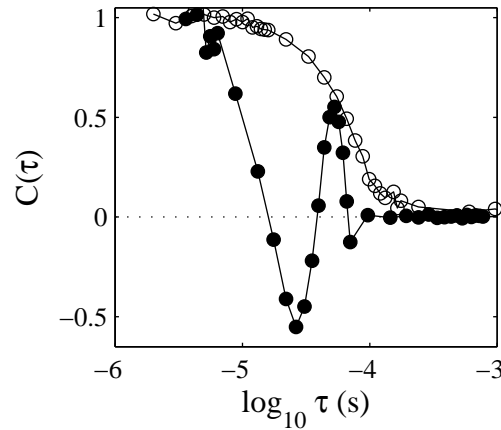


FIG. 3.10 – Racine carrée de la fonction de corrélation homodyne (○) et fonction de corrélation hétérodyne (●) obtenues grâce à une suspension de Latex cisailée à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ .

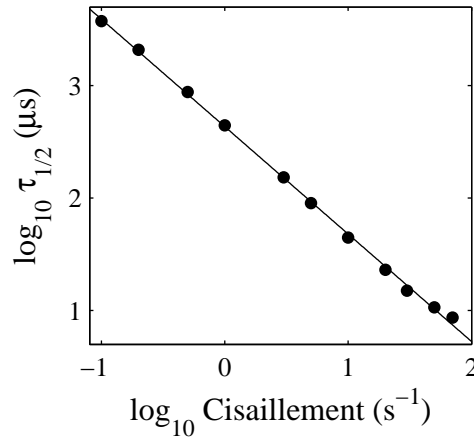


FIG. 3.11 –  $\tau_{1/2}$  mesurés au milieu de l'entrefer pour  $d_{FL} = 200 \text{ }\mu\text{m}$  vs.  $\dot{\gamma}$ . La ligne continue est la meilleure loi de puissance approximant les données  $\tau_{1/2} \sim \dot{\gamma}^{-0.99}$ .

lentille du filtre spatial  $FS_1$  augmente la largeur du faisceau à une distance  $R$  et a fortiori la taille du volume diffusant  $\mathcal{V}$  (cf. fig. 3.8). Comme on peut le voir sur la figure 3.12.a, ceci diminue le temps caractéristique  $\tau_{1/2}$ . Ce comportement est en accord avec les prédictions théoriques car  $\tau_{\dot{\gamma}} \sim (c\dot{\gamma})^{-1}$ . En pratique, cette propriété est utilisée lors du réglage du montage : pour minimiser la taille du volume diffusant, on recherche le maximum de  $\tau_{1/2}$  en variant  $d_{FL}$ .

La configuration homodyne permet la mesure du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  seulement si on

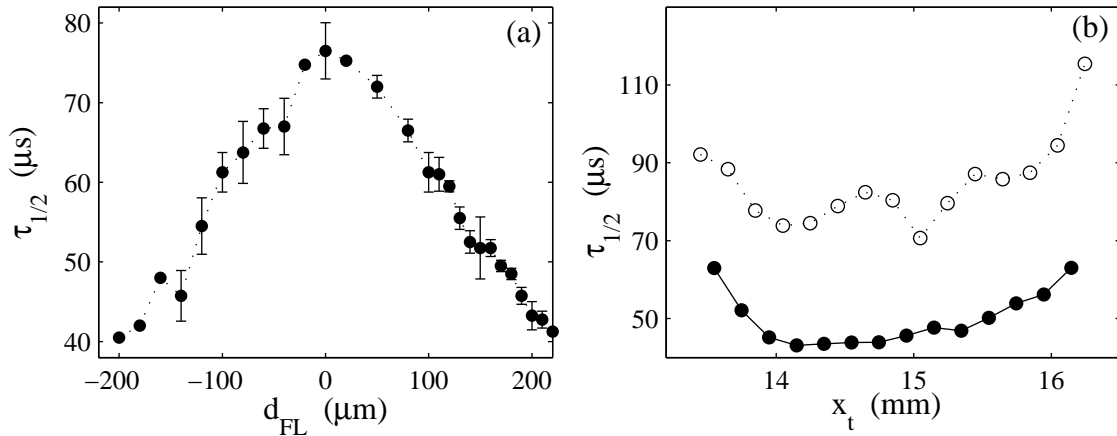


FIG. 3.12 – (a)  $\tau_{1/2}$  des fonctions de corrélation homodynes mesurées au milieu de l’entrefer à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  vs.  $d_{FL}$ . Pour chaque point, deux fonctions de corrélation ont été accumulées pendant 1 min et les deux valeurs ont été moyennées. Les barres d’erreurs indiquent la différence entre les deux estimations. (b)  $\tau_{1/2}$  vs. position de la table  $x_t$  dans deux cas différents : le cas focalisé  $d_{FL} = 0$  ( $\circ$ ) et le cas défocalisé  $d_{FL} \simeq 200 \mu\text{m}$  ( $\bullet$ ). Le temps d’accumulation de chaque mesure est de 1 min et le cisaillement est  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ .

connaît la forme du volume diffusant avec une grande précision. Dans notre montage, la forme de  $\mathcal{V}$  est évidemment mal définie car la cellule de Couette induit de nombreux effets optiques. Un mouvement de la cellule peut donc changer la forme de  $\mathcal{V}$ . Sur la figure 3.12.b est présenté les  $\tau_{1/2}$  mesurés pour différentes positions  $x_t$  de la table mécanique et pour deux distances de défocalisation  $d_{FL}$ . Pour  $d_{FL} = 0$ , les valeurs de  $\tau_{1/2}$  présentent une dispersion de 20% alors que dans le cas  $d_{FL} = 200 \mu\text{m}$ , la dispersion est de l’ordre de 50%. Dans les deux cas,  $\tau_{1/2}$  augmente significativement au voisinage des parois. Cet effet est lié à la diminution de la taille de  $\mathcal{V}$  lorsque celui-ci intersecte les parois de la cellule. Cette augmentation de  $\tau_{1/2}$  est particulièrement visible pour le cas  $d_{FL} = 200 \mu\text{m}$ , car le volume diffusant est deux fois plus grand que dans le cas  $d_{FL} = 0$  (cf. fig. 3.8). Ces complications induites par la géométrie de Couette ne permettent pas aisément de mesurer quantitativement  $\dot{\gamma}$  le long de l’entrefer de la cellule de Couette. Par ailleurs, les positions exactes du stator et du rotor ne peuvent être ainsi déterminées. C’est pourquoi nous nous sommes naturellement tournés vers la configuration hétérodyne.

### 3.3.5 Calibration du montage et mesure absolue du profil de vitesse

Pour obtenir un profil de vitesse, on déplace le volume diffusant  $\mathcal{V}$  à travers l'entrefer de la cellule de Couette en déplaçant le rhéomètre dans la direction  $x$ . Ce déplacement est piloté par ordinateur. Une fois que la table s'est déplacée, le corrélateur enregistre une fonction de corrélation  $C(\tau)$ . La table mécanique est ensuite à nouveau déplacée dans la direction  $x$ . Enfin, une fois que la table mécanique a fini de se déplacer, les fonctions

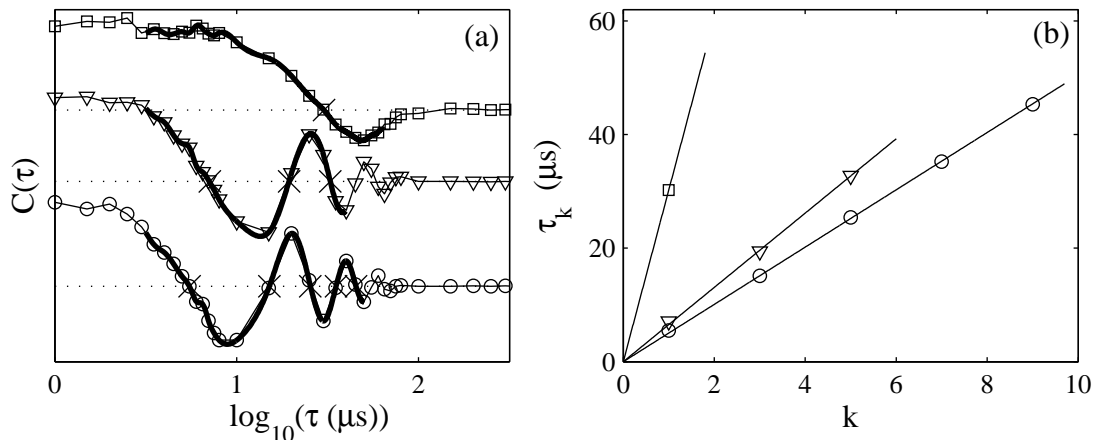


FIG. 3.13 – (a) Fonctions de corrélation hétérodes mesurées pour différentes positions de la table grâce à une suspension de Latex cisillée à  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$ .  $x_t = 13.9$  (o),  $14.4$  ( $\nabla$ ) et  $15.8$  mm ( $\square$ ). Les fonctions de corrélation sont décalées le long de l'axe des ordonnées par souci de clarté. Les lignes épaisses sont les interpolations des fonctions hétérodes dont on extrait les intersections avec l'axe des abscisses  $C(\tau) = 0$  (traits pointillés). Les temps d'intersection  $\tau_k$  sont symbolisés par les  $\times$ . (b) Temps d'annulation  $\tau_k$  vs.  $k$  extraits des fonctions hétérodes pour les différentes positions de la table. Les lignes continues sont les meilleurs ajustements linéaires passant par l'origine (0,0). Dans le cas où  $x_t = 15.8$  mm ( $\square$ ), l'ajustement est trivial car il n'y a qu'une seule annulation.

de corrélation sont analysées. La figure 3.13.a présente différentes fonctions hétérodes mesurées en plusieurs points de l'entrefer sur une suspension diluée de Latex cisillée à  $\dot{\gamma} = 20 \text{ s}^{-1}$ . Chacune de ces fonctions est normalisée de sorte que  $C(\tau \rightarrow \infty) = 0$ . Pour extraire le décalage Doppler  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}$  des fonctions expérimentales hétérodes, nous

interpolons préalablement ces dernières<sup>1</sup>. Une série de temps d'annulation  $\tau_k$  est alors extraite (symboles  $\times$  de la figure 3.13.a). Comme  $C(\tau) = F(\tau) \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}\tau)$ , on s'attend à  $\tau_k = (k\pi + \frac{\pi}{2})(\mathbf{q} \cdot \mathbf{v})^{-1}$ . Le produit scalaire  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}$  est alors estimé à partir de  $\tau_k$  vs.  $k$  par la méthode des moindres carrés. La figure 3.13.b présente de tels ajustements linéaires. La déviation des données par rapport à ces ajustements permet d'estimer l'erreur commise. Cette erreur sert ensuite à définir les barres d'erreur sur les profils de vitesse. Dans le cas où il n'y a qu'une seule annulation  $\tau_k$ , on ne peut pas définir d'erreur : on prend alors l'erreur maximale des autres points du profil de vitesse.

La figure 3.14.a présente la période Doppler  $T = (\mathbf{q} \cdot \mathbf{v})^{-1}$  vs.  $x_t$ . Pour estimer la vitesse, nous supposons que l'écoulement est purement orthoradial dans le plan  $(x,y)$  et que  $\theta \simeq f_\theta \theta_{\text{imp}}$ , où  $f_\theta \simeq 0.79$  (cf. section 3.3.2). Ces hypothèses et ces corrections optiques permettent alors d'écrire que  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} = qv \cos(\theta/2) = 2\pi n \sin \theta v/\lambda$ . Les profils de vitesse sont

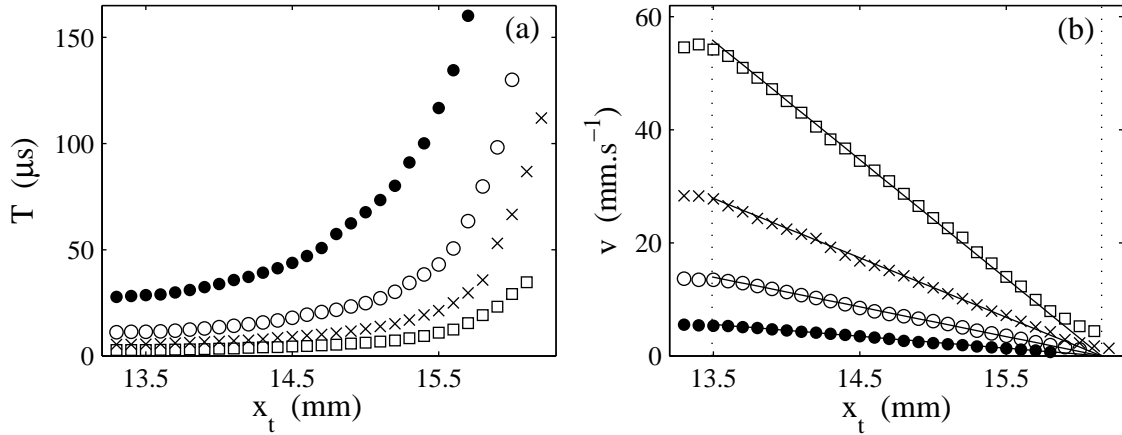


FIG. 3.14 – Procédure de calibration à l'aide d'un fluide newtonien pour différents cisaillements  $\dot{\gamma} = 2$  (●), 5 (○), 10 (×) et 20  $\text{s}^{-1}$  (□). (a) Estimations des périodes Doppler  $T$ . (b) Estimations des vitesses  $v$ . Chaque profil est ensuite ajusté linéairement pour déduire la position du stator  $x_s = 16.15 \pm 0.02$  mm (ligne pointillée). Pour minimiser les effets de bords, l'ajustement est réalisé sur la partie centrale du profil. La ligne pointillée à  $x_r = 13.49$  mm indique la position estimée du rotor. Les lignes continues sont les approximations linéaires  $v = (R_1 \dot{\gamma} / F_{\dot{\gamma}}) (x_s - x_t) / (x_s - x_r)$ , avec  $\dot{\gamma} = 2, 5, 10$  et 20  $\text{s}^{-1}$ .

présentés sur la figure 3.14.b en fonction de la position de la table  $x_t$ . Des ajustements linéaires de ces profils permettent de déduire la position du stator :  $x_s = 16.15 \pm 0.02$  mm.

<sup>1</sup> La méthode d'interpolation utilisée (spline, cubique ou linéaire) n'a quasiment aucune influence sur la mesure de la vitesse.

On estime ensuite aisément la position du rotor  $x_r$  car l'entrefer effectif est donné par  $x_s - x_r = e/f_x \simeq 2.65$  mm. En effet, à un déplacement de la table  $\delta x$  correspond un déplacement du volume diffusant  $\delta x' = f_x \delta x$ , où  $f_x \simeq 1.13$  (cf. section 3.3.2). Pour obtenir cette figure, l'angle  $\theta_{\text{imp}}$  a été ajusté légèrement de sorte que les profils de vitesse mesurés correspondent aux profils théoriques. Ces derniers sont déterminés grâce aux vitesses du rotor données par le rhéomètre :

$$v_o = R_1 \Omega = R_1 \dot{\gamma} / F_{\dot{\gamma}}, \quad (3.20)$$

où  $\Omega$  est la vitesse de rotation de la cellule de Couette,  $\dot{\gamma}$  le cisaillement indiqué et  $F_{\dot{\gamma}} = (R_1^2 + R_2^2)/(R_2^2 - R_1^2)$  avec  $R_1$  et  $R_2$  les rayons respectifs du rotor et du stator.  $F_{\dot{\gamma}}$  est un facteur de conversion inhérent au rhéomètre tenant compte de la géométrie courbe de Couette (cf. section 1.1.2, page 25). Soulignons que quelques points à  $x_t < x_r$  et à  $x_t > x_s$  (cf. fig. 3.14.b) sont mesurés. Ceci est lié à la taille finie de  $\mathcal{V}$  : même en dehors de l'entrefer de la cellule une faible intensité diffusée peut être détectée.

Sur la figure 3.15, la correction liée à  $f_x$  a été prise en compte.  $x$  est alors la position réelle dans l'entrefer de la cellule de Couette. L'incertitude sur la mesure de la vitesse est de l'ordre de la taille des symboles.

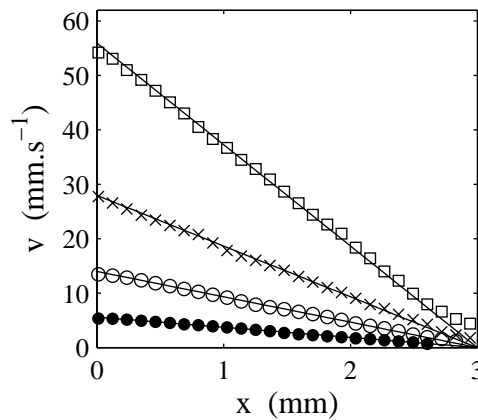


FIG. 3.15 – Profils de vitesse dans un fluide newtonien à différents cisaillements  $\dot{\gamma} = 2$  (●), 5 s (○), 10 (×) et 20 s<sup>-1</sup> (□).  $x$  correspond à la position réelle dans l'entrefer de la cellule de Couette et  $x = 0$  est le rotor. Les lignes continues sont les profils  $v = (R_1 \dot{\gamma} / F_{\dot{\gamma}}) (1 - x/e)$  avec  $\dot{\gamma} = 2, 5, 10$  et 20 s<sup>-1</sup>. Les facteurs de conversion  $f_\theta = 0.79$  et  $f_x = 1.13$  ont été utilisés pour prendre en compte les effets de réfraction induits par la cellule de Couette.



## Résolution spatiale

Un des enjeux majeurs de toute technique de vélocimétrie est la résolution spatiale. Dans notre montage expérimental, cette dernière est limitée par la taille du volume diffusant  $\mathcal{V}$ . En effet, la diffusion hétérodyne donne une mesure de la vitesse moyenne au sein de  $\mathcal{V}$ . Les dimensions typiques de ce dernier dans l'air sont données par  $a \simeq 20 \mu\text{m}$  et  $c' \simeq 40 \mu\text{m}$  (cf. section 3.3.3, page 119). La diffusion étant effectuée à un angle  $\theta_{\text{imp}}$  imposé, dans une cellule de Couette agissant telle une lentille cylindrique, la taille caractéristique de  $\mathcal{V}$  est donnée par  $c \simeq f_x c' / \sin(f_\theta \theta_{\text{imp}})$ . On a donc  $c \simeq 100 \mu\text{m}$  pour les caractéristiques géométriques données dans ce chapitre. Dans le cas où les mesures ont été effectuées en entrefer réduit (cf. chapitres suivants), l'angle a été choisi plus grand ( $\theta_{\text{imp}} \simeq 60^\circ$ ) de sorte que  $c \simeq 50 \mu\text{m}$ .

## Résolution temporelle

L'objectif principal de cette thèse est d'étudier un comportement rhéologique oscillant. Il est donc crucial de déterminer la résolution temporelle de notre montage, *i.e.* le temps nécessaire pour obtenir une mesure de vitesse. Une des limitations majeures de notre montage est l'emploi d'un corrélateur électronique. Un analyseur de spectre aurait permis une bien meilleure résolution : environ  $10^3$  mesures par seconde. Cette technique expérimentale a notamment été utilisée par Gollub *et al.* pour mesurer les fluctuations temporelles de la vitesse d'un fluide newtonien au seuil de l'instabilité de Taylor-Couette [64, 65].

La résolution temporelle de notre montage dépend essentiellement de la puissance du laser utilisé ainsi que de la quantité de lumière diffusée. Ces deux caractéristiques contrôlent  $\langle N \rangle$ , le nombre moyen de photons collectés par seconde. Pour estimer la résolution de notre montage, nous avons mesuré les fonctions de corrélation homodynes et hétérodynes pour différents temps d'accumulation  $t_a$ . La figure 3.16 présente les mesures de  $\tau_{1/2}$  et de période Doppler  $T = (\mathbf{q} \cdot \mathbf{v})^{-1}$  obtenue pour différents  $t_a$  sur une suspension de Latex à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  et pour  $\langle N \rangle \simeq 10^4$  photons par seconde dans la configuration homodyne. Il apparaît clairement qu'une bonne estimation de  $\tau_{1/2}$  et  $T = (\mathbf{q} \cdot \mathbf{v})^{-1}$  est obtenue après un temps  $t_a$  de l'ordre de 5 s. Dans de meilleures conditions expérimentales, *i.e.* lorsque l'échantillon diffuse fortement la lumière à l'angle  $\theta_{\text{imp}}$  (*e.g.*  $\langle N \rangle \simeq 3 \cdot 10^4$ ), le temps d'accumulation minimal pour obtenir une bonne estimation de la vitesse est de l'ordre de 1 s. Notre montage est donc suffisamment résolu pour étudier les dynamiques lentes du rhéochaos ( $\simeq 600 \text{ s}$ ) mais ne permet pas de résoudre des dynamiques plus rapides que 1–10 s. Une autre limitation provient du déplacement du rhéomètre afin d'obtenir un profil de vitesse. Lorsque ce dernier comporte environ une trentaine de points et que  $t_a \simeq 1 \text{ s}$ , le temps requis pour mesurer un profil est de l'ordre de la minute. Cette limitation complique

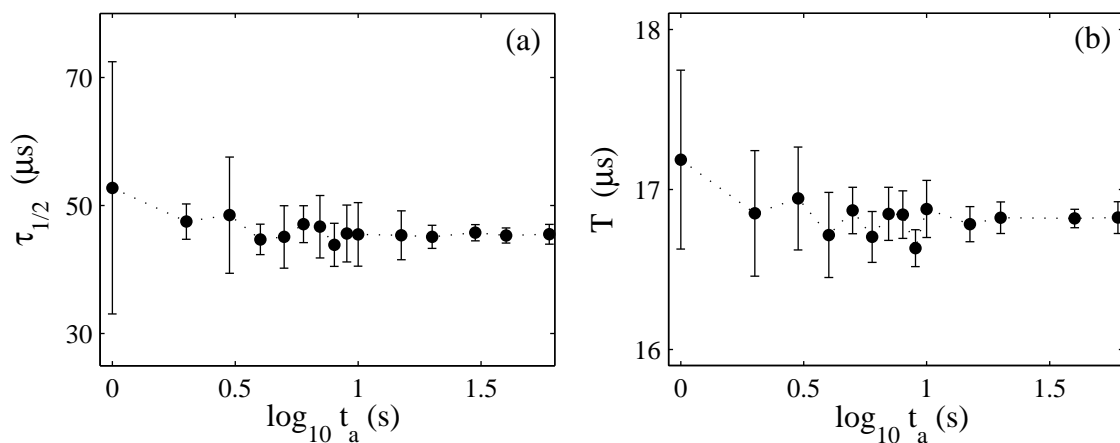


FIG. 3.16 – Convergence statistique des estimations des temps caractéristiques mesurés. (a)  $\tau_{1/2}$  des fonctions homodynes *vs.*  $t_a$  le temps d'accumulation. (b) Période  $T$  des oscillations des fonctions hétérodyne *vs.*  $t_a$ . Chaque mesure correspond à la moyenne effectuée sur 5 mesures successives de fonctions de corrélation obtenues après un temps d'accumulation donné  $t_a$ . Les barres d'erreurs sont les déviations standard de ces mesures. Le cisaillement appliqué est  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$ . Le nombre moyen de photons reçus par seconde est  $\langle N \rangle \simeq 10^4$  en géométrie homodyne.

évidemment l'étude de l'hypothèse de dynamiques spatio-temporelles au voisinage de la transition de feuilletage (cf. chapitre 2, page 96).



## Chapitre 4

# La rhéologie locale à travers deux exemples : émulsion concentrée et micelles géantes

L'objectif de ce chapitre est de présenter des mesures de profils de vitesse obtenues à l'aide du montage de diffusion dynamique de la lumière décrit dans le chapitre précédent sur deux fluides complexes particuliers : une émulsion concentrée et une solution semi-diluée de micelles géantes. Ces deux systèmes présentent des écoulements stationnaires inhomogènes. Ces mesures permettront alors d'introduire différents concepts clés tels que le « glissement » aux parois, ou encore le lien entre la rhéologie « locale »  $v(x)$  et la rhéologie « globale »  $\sigma(\dot{\gamma})$ . Les résultats de ce chapitre permettent donc de tester l'aptitude du montage de diffusion décrit précédemment à résoudre des écoulements inhomogènes et serviront par ailleurs, pour l'étude de la complexité spatio-temporelle de l'écoulement de la texture onion.

Ce chapitre est un résumé des résultats publiés dans les références [134, 135] pour les cas respectifs de l'émulsion et des micelles géantes. De nombreux points expérimentaux, notamment en ce qui concerne l'émulsion, sont uniquement détaillés dans la référence [134], mais plusieurs analyses théoriques développées dans ce chapitre n'ont pas fait l'objet de publication.

## 4.1 Le cas d'une émulsion concentrée

### 4.1.1 Quelques généralités

Les émulsions sont des systèmes composés de deux fluides immiscibles et consistent en une assemblée de gouttelettes d'une phase dispersée dans une phase continue. Ces systèmes ne sont pas à l'équilibre thermodynamique car des phénomènes de coalescence et de mûrissement tendent à augmenter la taille moyenne des gouttelettes au cours du temps [85]. Pour ralentir ces processus, on utilise généralement un tensioactif qui augmente la stabilité des gouttes de la phase dispersée.

Les propriétés rhéologiques des émulsions dépendent fortement de la fraction volumique  $\phi$  des gouttelettes. Si  $\phi \ll \phi_c$ , où  $\phi_c$  est la fraction volumique d'une assemblée désordonnée et compacte de particules (« random close packing »,  $\phi_c \simeq 0.64$ ), l'émulsion est newtonienne et présente une viscosité  $\eta$  proche de celle la phase continue  $\eta_0$ <sup>1</sup>. Au-delà de  $\phi_c$ , il n'y a plus d'espace libre entre les gouttelettes : ces dernières sont au contact les unes des autres et sont donc déformées. Pour de petites déformations imposées, *i.e.* dans le domaine linéaire, le matériau se comporte comme un solide car les gouttelettes réagissent de manière élastique aux faibles contraintes appliquées. On parle alors d'état « pâteux ». Hébraud *et al.* ont montré grâce à la diffusion multiple de la lumière que pour de grandes déformations, des réarrangements microscopiques des gouttelettes permettent à l'émulsion de s'écouler : c'est le régime plastique [76] (cf. section 1.1.1, page 16). Mason *et al.* ont montré que cette transition pâte–fluide a lieu à une contrainte donnée  $\sigma_0$  dépendant de  $\phi$  et appelée « contrainte seuil » [100]. Ils ont aussi rapporté l'existence d'écoulements inhomogènes au voisinage de  $\sigma_0$  [99].

D'un point de vue expérimental, de nombreux systèmes présentent des comportements similaires aux émulsions : c'est le cas des mousses, des suspensions colloïdales concentrées ou encore des matériaux granulaires. C'est pour comprendre ces comportements universels que de nombreuses approches théoriques se sont intéressées à la transition pâte–fluide dans ces matériaux « mous ». Ces théories partagent de fortes similarités avec les approches théoriques des systèmes vitreux (cf. références citées dans [3, 49, 117, 144]). Expérimentalement, Coussot *et al.* ont montré à l'aide de la vélocimétrie NMR (« Nuclear Magnetic Resonance »), que de nombreux systèmes concentrés présentent des écoulements inhomogènes au voisinage de la transition pâte–fluide. Les auteurs interprètent ces comportements en terme d'une transition discontinue entre l'état pâteux et l'état fluide (cf. fig. 1.8.b,

---

<sup>1</sup> Pour des fractions volumiques intermédiaires, des corrections doivent être prises en compte, par exemple la relation d'Einstein,  $\eta \simeq \eta_0 (1 + 2.5 \phi)$ .

page 27) [41, 46]. Dans un autre système vitreux, Pignon *et al.* ont aussi rapporté l'existence de profils inhomogènes au voisinage de  $\sigma_0$  [118]. Dans certains cas, un mécanisme alternant « fracture » et « recatrisation » au sein du matériau donne aussi lieu à un comportement rhéologique dynamique du type « stick-slip » (cf. section 1.2.3, page 44) [118]. Une autre caractéristique des systèmes concentrés est le glissement aux parois des cellules lisses des rhéomètres. Pour s'affranchir de cette complexité, la plupart des expériences sont réalisées à l'aide de parois rugueuses afin « d'accrocher » le matériau au rhéomètre.

C'est pour l'ensemble de ces raisons (écoulements inhomogènes et glissement) qu'il nous a paru intéressant d'étudier les profils de vitesse dans de tels systèmes. Par ailleurs, les analogies entre la texture oignon et les émulsions ne manquent pas. Ce sont en effet tous deux des suspensions concentrées constituées de « cellules » désordonnées. Dans le cas des émulsions cependant, la taille des cellules ne varie pas sous écoulement, alors que dans le cas des oignons il est bien établi que le cisaillement diminue la taille moyenne des oignons.

Nous allons voir par la suite que le montage décrit précédemment permet de caractériser quantitativement le glissement dans les émulsions ainsi que de nombreux effets non-newtoniens. Nous montrerons au chapitre 5 que ces effets sont aussi présents dans les écoulements d'oignons.

### Émulsion étudiée : $\phi = 75\%$

Nous nous sommes principalement intéressés à une émulsion concentrée composée de gouttelettes d'huile silicone (Polydyméthyl Siloxane de viscosité 135 Pa.s, Rhodia) dispersées dans un mélange eau-glycérol. Le tensioactif stabilisant le système est le Tétradécyl Triméthyl Ammonium Bromide (TTAB, Aldrich). L'émulsion concentrée finale est obtenue par cisaillement d'une « solution mère », suivi d'une centrifugation pour obtenir la fraction volumique  $\phi = 75\%$  [98]. Le système obtenu est alors monodisperse et le diamètre moyen des gouttelettes est environ  $2 \mu\text{m}$ . La quantité de glycérol est choisie de sorte que l'indice optique de la phase continue soit égal à celui de l'huile silicone ( $n = 1.40$ ). L'émulsion est donc transparente et diffuse faiblement la lumière. Les détails quant à la préparation de cette émulsion peuvent être trouvés dans la référence [134].

#### 4.1.2 Mesure de profils de vitesse à cisaillement imposé

À l'aide du montage décrit dans le chapitre précédent, des mesures de champ de vitesse ont été réalisées sur l'émulsion concentrée dans un écoulement de Couette d'entrefer d'épaisseur  $e = 3 \text{ mm}$ . Préalablement, une calibration du montage à l'aide d'une suspension diluée de Latex d'indice optique  $n = 1.40$  a été effectuée (cf. fig. 3.14 et 3.15, page 126). Les

paramètres de conversion  $f_x$  et  $f_\theta$ , ainsi que les positions  $x_r$  et  $x_s$  du rotor et du stator sont déterminés à partir de cette calibration. Des précautions ont été prises afin que la position de la cellule ne change pas lorsque l'émulsion est placée dans la cellule de Couette. Ces mêmes paramètres permettent alors de passer des fonctions de corrélation mesurées aux profils de vitesse dans le cas de l'émulsion. Nous avons aussi vérifié par diffusion statique de la lumière que la taille des gouttes ne varie pas sur la gamme de cisaillement appliqué : l'émulsion est donc stable pendant les expériences.

La figure 4.1 présente les profils de vitesse de l'émulsion concentrée pour différents cisaillements appliqués. Rappelons que le rhéomètre utilisé (AR 1000N) ne permet pas réellement d'imposer un cisaillement constant : ce dernier est en effet un rhéomètre à contrainte imposée. Pour appliquer un cisaillement constant, une boucle de rétroaction est effectuée au niveau du logiciel contrôlant le couple induit sur la cellule. Ce mode de fonctionnement permet d'imposer dans le cas de l'émulsion étudiée, un cisaillement constant sans aucune fluctuation temporelle significative ( $\delta\dot{\gamma} \leq 0.01 \text{ s}^{-1}$ ). Deux types de comportements sont alors observés :

- pour de faibles cisaillements appliqués ( $\dot{\gamma} = 0.1$  et  $0.2 \text{ s}^{-1}$ ), l'émulsion glisse aux parois et est animée d'un mouvement de rotation solide car elle n'est pas cisailée en volume (cf. fig. 4.1.a et b) ;
- pour  $\dot{\gamma} \geq 0.4 \text{ s}^{-1}$ , le glissement aux parois reste important mais l'émulsion est cisailée en volume. On remarque aussi que les profils de vitesse présentent une courbure significative par rapport aux profils de vitesse d'un fluide newtonien (cf. fig. 4.1.c-f).

La figure 4.2.a présente les profils de vitesse normalisés  $v_n(x)$  pour  $\dot{\gamma} \geq 0.4 \text{ s}^{-1}$ . La normalisation  $v_n(x)$  est définie par :

$$v_n(x) = \frac{v(x) - v_2}{v_1 - v_2}, \quad (4.1)$$

où  $v_1$  et  $v_2$  sont les vitesses respectives de l'émulsion au rotor et au stator mesurées à partir des profils de vitesse grâce à un ajustement non-linéaire détaillé plus loin dans ce chapitre (cf. page 141). Tous les profils normalisés s'inscrivent sur une courbe maîtresse présentant une courbure prononcée. La figure 4.2.b présente la moyenne  $\langle v_n \rangle$  de ces profils.

Simultanément à ces mesures locales, le rhéomètre enregistre la courbe d'écoulement globale de l'émulsion. Cette dernière est présentée sur la figure 4.3. Vu l'importance du glissement, il est clair que les mesures de profils de vitesse sont indispensables pour connaître le comportement rhéologique de l'émulsion. En effet, le cisaillement  $\dot{\gamma}$  indiqué par le rhéomètre ne correspond pas au cisaillement réel dans le matériau. La courbe d'écoulement de la figure 4.3 ne traduit donc pas la véritable rhéologie de l'émulsion car elle inclut les effets du glissement.

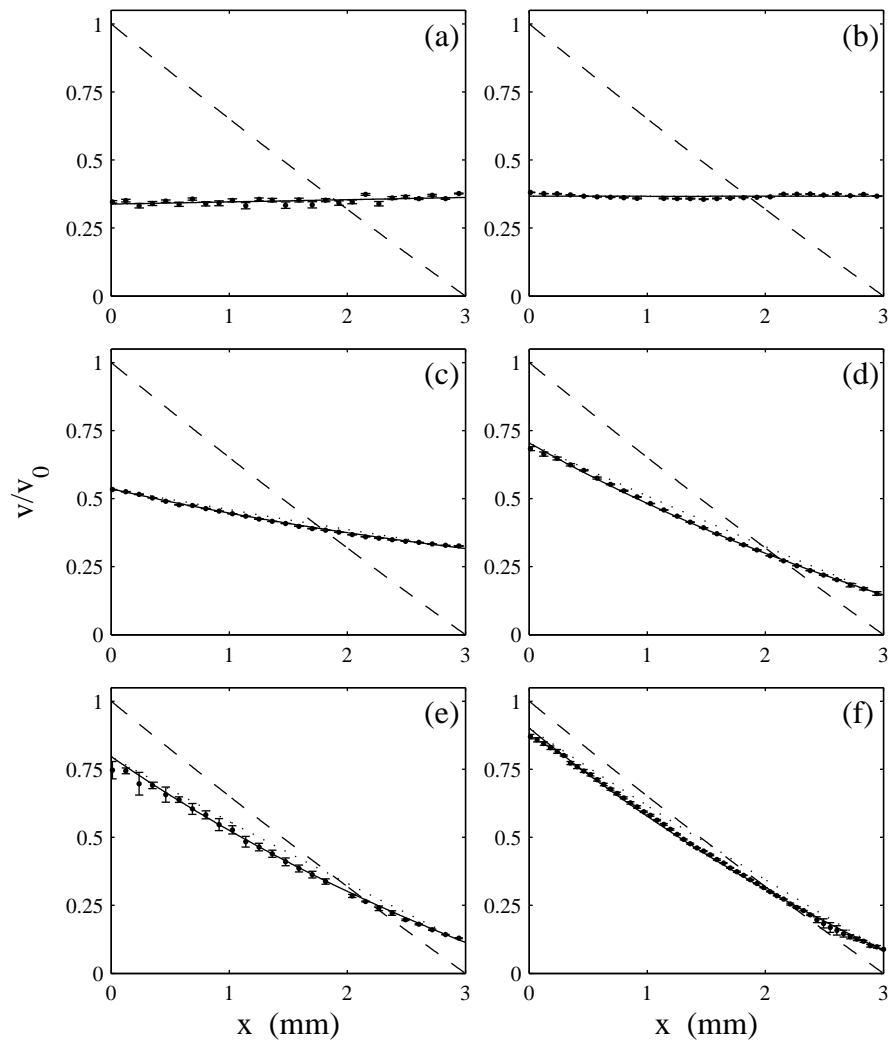


FIG. 4.1 – Profils de vitesse de l'émulsion concentrée pour différents cisaillements appliqués. Les profils de vitesse sont normalisés par  $v_0$ , la vitesse du rotor indiquée par le rhéomètre. Les lignes en traits-tirés représentent les profils de vitesse d'un fluide newtonien. (a)  $\dot{\gamma} = 0.1$  et (b)  $0.2 \text{ s}^{-1}$ . Les lignes continues sont des droites ajustant les données. (c)  $\dot{\gamma} = 0.4$ , (d) 2, (e) 5 et (f)  $15 \text{ s}^{-1}$ . Les lignes continues sont les meilleurs ajustements des données utilisant l'équation (4.9) avec  $n = 0.4$ . Les lignes pointillées représentent les profils de vitesse d'un fluide newtonien qui glisse aux parois dans les mêmes proportions que l'émulsion.

### 4.1.3 Analyse des mesures locales

#### Le glissement

Pour l'émulsion étudiée ( $\phi = 75\%$ ), le glissement aux parois masque le cisaillement réel dans l'émulsion. En réalité, ce glissement « apparent » dans ces matériaux ne correspond



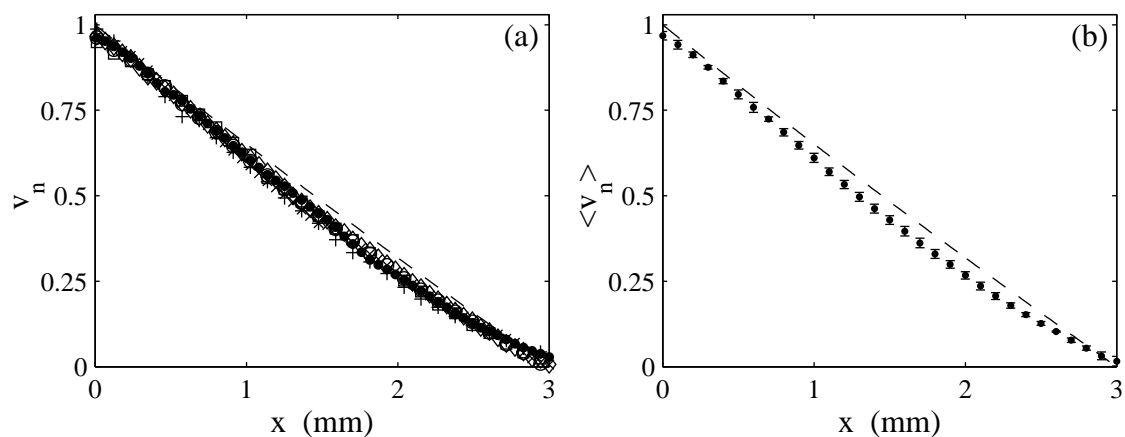


FIG. 4.2 – (a) Profils de vitesse normalisés  $v_n(x)$  pour différents cisaillements :  $\dot{\gamma} = 0.4$  (+),  $\dot{\gamma} = 1$  (x),  $\dot{\gamma} = 2$  (o),  $\dot{\gamma} = 5$  (□),  $\dot{\gamma} = 10$  (●) et  $\dot{\gamma} = 15$  s<sup>-1</sup> (◊). Chaque profil de vitesse est normalisé selon :  $v_n = (v - v_2)/(v_1 - v_2)$ . (b) Moyenne  $\langle v_n \rangle$  de ces profils normalisés. Les barres d'erreur correspondent à la déviation standard de ces différentes mesures. Les lignes en traits-tirés correspondent aux profils de vitesse d'un fluide newtonien.

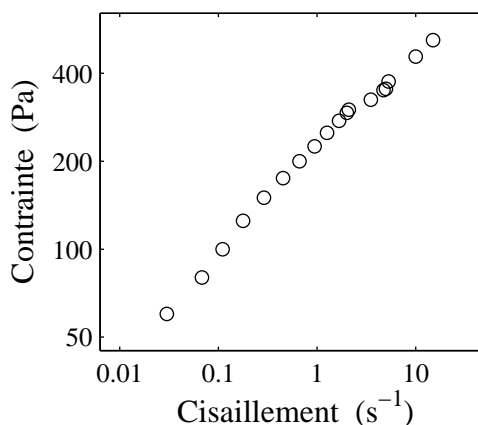


FIG. 4.3 – Courbe d'écoulement globale obtenue simultanément aux profils de vitesse de la figure 4.1 à cisaillement imposé. Chaque point correspond à un état stationnaire *i.e.*  $\partial_t \sigma = 0$ .

pas au glissement solide classique : il est lié à la présence au voisinage des parois, d'une fine couche de fluide peu visqueux fortement cisillée. Dans le cas d'une émulsion, comme on peut le voir sur la figure 4.4, c'est une déplétion de gouttelettes aux parois qui serait à l'origine de ces films dits de « lubrification » [16]. Dans ce scénario la contrainte appliquée est continue au sein du matériau, alors que dans le cas du glissement solide, il existe une

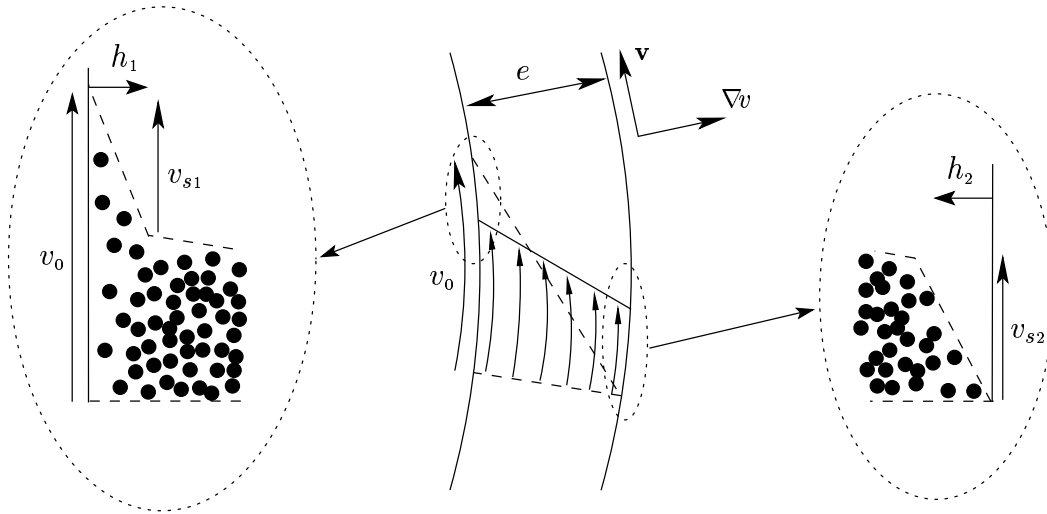


FIG. 4.4 – Glissement aux parois dans le cas d'une émulsion. C'est la présence d'une déplétion de gouttelettes (symbolisées par  $\bullet$ ) au voisinage du rotor et du stator qui permet au matériau de « glisser » aux parois. Le cisaillement réel dans l'émulsion est alors inférieur au cisaillement indiqué par le rhéomètre.

fracture localisée et donc rupture de la contrainte. En effet, dans le cadre de l'hypothèse de lubrification, l'écoulement au sein des films lubrifiants est laminaire car leur épaisseur  $h$  est extrêmement petite. La condition  $\nabla \cdot \bar{\sigma} = 0$  est donc vérifiée et il n'y a aucune discontinuité de la contrainte.

Avec une telle hypothèse, notre montage permet d'accéder indirectement à l'épaisseur de ces films de lubrification. En effet,  $\nabla \cdot \bar{\sigma} = 0$  implique que la contrainte locale dans l'entrefer de la cellule de Couette soit donnée par (cf. relation (1.14), page 23) :

$$\sigma(x) = \frac{\Gamma}{2\pi H (R_1 + x)^2}, \quad (4.2)$$

où  $x=0$  correspond au rotor et  $x=e$  au stator.  $\Gamma$  est le couple appliqué et  $H$  la hauteur de la cellule. Cette relation permet de calculer les contraintes locales au rotor  $\sigma_1$  et au stator  $\sigma_2$  en fonction de la contrainte globale  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre :

$$\begin{cases} \sigma_1 = \frac{2R_2^2}{R_1^2 + R_2^2} \sigma, \\ \sigma_2 = \frac{2R_1^2}{R_1^2 + R_2^2} \sigma. \end{cases} \quad (4.3)$$

Si on suppose désormais que les films de lubrification sont uniquement composés de la phase peu visqueuse eau-glycérol, on peut écrire les relations suivantes donnant l'épaisseur

de ces derniers :

$$h_i = \frac{\eta_f v_{si}}{\sigma_i}, \quad (4.4)$$

où  $i = 1, 2$  indiquent les cas respectifs du rotor et du stator et  $\eta_f$  est la viscosité de la phase eau-glycérol ( $\eta_f \simeq 0.01$  Pa.s).  $v_{si}$  est la différence de vitesse au sein du film, *i.e.*  $v_{s2} = v_2$  et  $v_{s1} = v_0 - v_1$  (cf. fig. 4.4).

La figure 4.5.a présente les vitesses de glissement  $v_{si}$  en fonction des contraintes locales  $\sigma_i$ . La différence entre  $v_{s1}$  et  $v_{s2}$  à un cisaillement donné (cf. fig. 4.1) disparaît lorsque

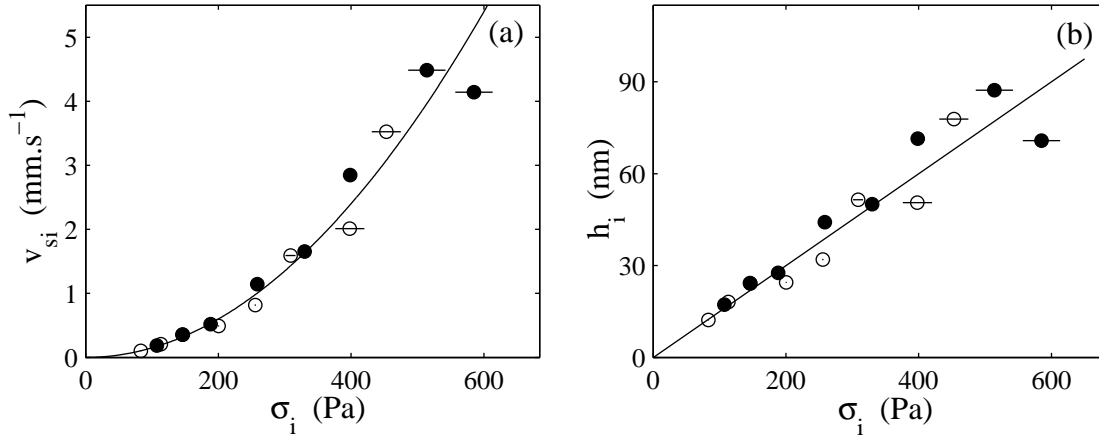


FIG. 4.5 – (a) Vitesses de glissement  $v_{si}$  vs. contraintes locales  $\sigma_i$  au rotor ( $\bullet$ ) et au stator ( $\circ$ ). La ligne continue est le meilleur ajustement des données par une parabole :  $v_{si} = 1.5 \cdot 10^{-5} \sigma_i^2$ . (b) Épaisseurs des films de lubrification au rotor ( $\bullet$ ) et au stator ( $\circ$ ) obtenues à l'aide de la relation (4.4). La ligne continue est un ajustement linéaire des données  $h_i = 1.5 \cdot 10^{-1} \sigma_i$ .

ces dernières sont représentées en fonction des contraintes locales  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$ . La vitesse de glissement est donc une fonction universelle de la contrainte locale : pour un cisaillement donné, la différence de valeur entre les vitesses de glissement au rotor et au stator est uniquement liée à l'hétérogénéité de  $\sigma$  au sein de l'entrefer. Le meilleur ajustement des données suggère de plus que  $v_s \sim \sigma^2$ . Les relations (4.4) permettent d'obtenir les épaisseurs de ces films  $h_i$  en fonction de  $\sigma_i$  (cf. fig. 4.5.b). L'épaisseur moyenne de ces films est de l'ordre de 100 nm. Cette valeur correspond à l'ordre de grandeur de l'épaisseur du film d'eau-glycérol qui existe entre les gouttelettes d'huile. On ne peut donc pas réellement parler de films de « déplétion » dans ce cas précis. Par ailleurs, ces résultats montrent une fois de plus que l'épaisseur des films ne dépend que de la contrainte locale et que  $h \sim \sigma$ . Plus de détails peuvent être trouvés dans la référence [134].

### Courbe d'écoulement locale

Les mesures des profils de vitesse permettent de remonter au véritable comportement rhéologique de l'émulsion. On peut en effet définir un cisaillement effectif  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  correspondant au cisaillement réel de l'émulsion, *i.e.* sans la contribution des films de glissement. Pour comparer quantitativement  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  avec les données  $(\sigma, \dot{\gamma})$  indiquées par le rhéomètre, il faut définir  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  de la façon suivante :

$$\dot{\gamma}_{\text{eff}} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_1 + R_2} \frac{v_1 - v_2}{R_1 e}. \quad (4.5)$$

Le facteur  $(R_1^2 + R_2^2)/(R_1 + R_2)$  provient de la définition du cisaillement donné par le rhéomètre afin de tenir compte de la géométrie de Couette (cf. relations (1.20), page 25). On peut alors associer à  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  la contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre<sup>2</sup>. La figure 4.6 présente la courbe d'écoulement globale ( $\circ$ ) indiquée par le rhéomètre ainsi que la courbe effective déduite des profils ( $\bullet$ ). Les deux points sur l'axe  $\dot{\gamma} = 0$  correspondent aux profils de vitesse des figures 4.1.a et b. La courbe d'écoulement effective révèle l'existence d'une contrainte seuil  $\sigma_0$  : si  $\sigma > \sigma_0$  l'émulsion est cisailée.

D'autre part, on peut associer à la mesure de  $v(x)$  un comportement rhéologique  $\sigma(\dot{\gamma})$  local. En effet, la relation (4.2) permet d'associer à la position  $x$ , une contrainte donnée  $\sigma(x)$ . Soulignons que l'hétérogénéité de contrainte locale dans l'entrefer de la cellule de Couette utilisée est relativement considérable car (cf. relations (4.3)) :

$$\frac{\sigma_1 - \sigma_2}{\sigma} = 2 \frac{R_2^2 - R_1^2}{R_2^2 + R_1^2} \simeq 25\%. \quad (4.6)$$

Le cisaillement local de l'émulsion quant à lui, peut être déduit des profils de vitesse grâce à la relation suivante (cf. relations (1.16), page 23) :

$$\dot{\gamma}(x) = -(R_1 + x) \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{v(x)}{R_1 + x} \right). \quad (4.7)$$

Le signe « moins » de la relation précédente vient de l'orientation choisie pour l'axe  $x$  le long des vitesses décroissantes. Cette procédure a été directement appliquée aux données grâce à l'approximation du premier ordre suivante :  $\partial f / \partial x \simeq \delta f / \delta x \simeq (f(x + \delta x) - f(x)) / \delta x$ . Pour chaque profil de vitesse obtenu, on peut à partir de la mesure de la contrainte globale, remonter à une courbe d'écoulement locale  $\sigma(x)$  *vs.*  $\dot{\gamma}(x)$  (cf. fig. 4.6).

---

<sup>2</sup>  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  ainsi que la valeur  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre correspondent à une très bonne approximation au cisaillement et à la contrainte locale en  $x = e/2$ .

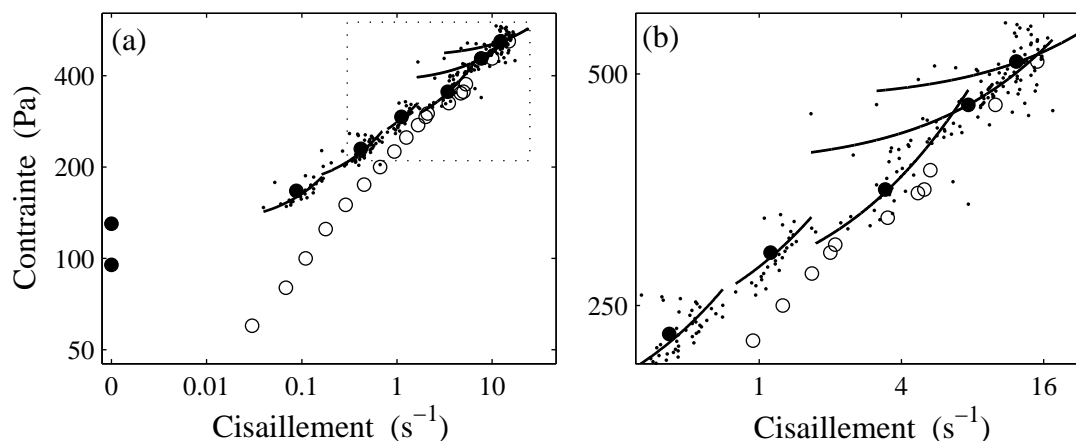


FIG. 4.6 – (a) Courbe d'écoulement globale de l'émulsion obtenue en géométrie de Couette (o). Les symboles pleins (•) correspondent à la courbe d'écoulement effective obtenue à l'aide de la relation (4.5). Les points (·) correspondent quant à eux à la courbe d'écoulement locale  $\sigma(x)$  vs.  $\dot{\gamma}(x)$  obtenue à l'aide des relations (4.2) et (4.7). Les lignes continues sont des ajustements linéaires des données locales ( $\sigma(x), \dot{\gamma}(x)$ ). (b) Zoom de la zone de la courbe d'écoulement indiquée par le rectangle pointillé en (a).

Chaque nuage de points ( $\sigma(x), \dot{\gamma}(x)$ ) est dispersé autour de la courbe d'écoulement effective  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$ <sup>3</sup>. Un ajustement linéaire de ces nuages de points a été effectué pour chaque cisaillement appliqué. Comme le montre la figure 4.6, ces segments permettent d'estimer le comportement rhéologique de l'émulsion à chaque palier de cisaillement. La discontinuité que l'on observe entre  $\dot{\gamma} = 1$  et  $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$  est particulièrement surprenante (cf. fig. 4.6) : à la précision de ces données expérimentales et pour  $\dot{\gamma} > 1 \text{ s}^{-1}$ , il semble que le comportement rhéologique de l'émulsion dépende du cisaillement appliqué. Ce résultat remet en question l'existence d'une loi rhéologique simple et analytique permettant de reproduire les données sur toute la gamme de cisaillement appliqué.

<sup>3</sup> La dispersion est principalement liée à l'estimation expérimentale de  $\dot{\gamma}(x)$ . Soulignons qu'une approximation d'ordre 2 de la dérivée conduit à une dispersion similaire.

#### 4.1.4 Quel comportement rhéologique local ?

**Le comportement rhéologique**  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$

À l'aide de la vélocimétrie NMR, Coussot *et al.* ont montré que de nombreux systèmes concentrés pouvaient être décrits par le comportement rhéologique suivant [41, 46] :

$$\begin{cases} \dot{\gamma}(x) = 0 & \text{pour } \sigma < \sigma_c, \\ \sigma(x) = A \dot{\gamma}(x)^n & \text{pour } \sigma \geq \sigma_c. \end{cases} \quad (4.8)$$

Ces deux équations décrivent une courbe d'écoulement présentant deux branches distinctes : (i) la première équation représente l'état pâteux qui ne coule pas pour des contraintes inférieures à  $\sigma_c$ , (ii) la seconde représente la branche fluide : le cas  $n = 1$  correspond à un fluide newtonien ( $A$  est alors la viscosité) et  $n < 1$  correspond à un fluide rhéofluidifiant. Nous nous sommes donc demandés si le comportement rhéologique (4.8) proposé dans la référence [41] permet de reproduire nos données expérimentales.

##### *Profils théoriques*

C'est la valeur de l'exposant  $n$  qui contrôle la courbure des profils de vitesse  $v(x)$ . En effet, il est simple de montrer à l'aide des relations (4.2), (4.7) et (4.8) que le profil de vitesse sur la branche fluide est donné par :

$$v(x) = v_2 \frac{R_1 + x}{R_2} + (R_1 + x) \frac{n}{2} \left[ \frac{\sigma_1}{A} \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \right]^{1/n} \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + x} \right)^{2/n} - 1 \right], \quad (4.9)$$

où  $\sigma_1$  est la contrainte au rotor. Les vitesses de l'émulsion au stator et au rotor sont donc reliées par :

$$v_1 = v_2 \frac{R_1}{R_2} + \frac{n}{2} R_1 \left( \frac{\sigma_1}{A} \right)^{1/n} \left[ 1 - \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^{2/n} \right]. \quad (4.10)$$

À l'aide des équations (4.9), (4.10) et de la définition du profil de vitesse normalisé (cf. relation (4.1)), on montre aisément que :

$$v_n(x) \simeq \left( 1 + \frac{x}{R_1} \right) \frac{(R_2/(R_1 + x))^{2/n} - 1}{(R_2/R_1)^{2/n} - 1}. \quad (4.11)$$

Cette dernière équation ne correspond pas à une égalité stricte à cause du terme de rotation solide  $v_2 (R_1 + x)/R_2$  dans l'équation (4.9). La seule approximation est que  $v_1/R_2 \ll \dot{\gamma}(x)$  pour tout point  $x$  de l'entrefer. Comme  $v_1 \lesssim v_0$ ,  $\dot{\gamma}(x) \lesssim v_0/e$  et  $R_2 \simeq 10e$ , l'erreur commise est inférieure à la résolution expérimentale ( $\simeq 5\%$ ).

Détermination expérimentale de  $n$ 

Dans le contexte du comportement rhéologique  $\sigma = A\dot{\gamma}^n$ , l'équation (4.11) permet d'ôter les contributions liées au glissement aux parois. Le seul paramètre libre de cette équation est  $n$ . La figure 4.7.a présente les profils normalisés obtenus à l'aide de l'équation (4.11) pour différents exposants  $n$ . L'insert indique qu'il est difficile de distinguer les

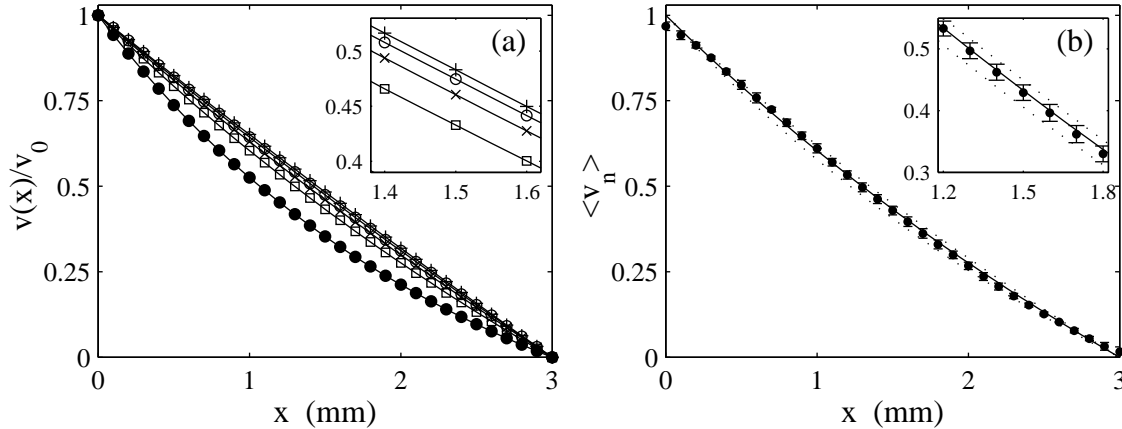


FIG. 4.7 – (a) Profils théoriques obtenus à l'aide de l'équation (4.11) pour  $n = 0.2$  ( $\bullet$ ),  $0.4$  ( $\square$ ),  $0.6$  ( $\times$ ),  $0.8$  ( $\circ$ ) et  $1$  ( $+$ ). Les paramètres géométriques sont  $R_1 = 22$  et  $R_2 = 25$  mm. L'insert est centré sur le milieu de l'entrefer. (b) Profil moyen normalisé  $\langle v_n \rangle$  obtenu sur l'émulsion étudiée ( $\bullet$ ) (cf. fig. 4.2.b) et profils théoriques pour  $n = 0.5$  (ligne pointillée supérieure),  $n = 0.4$  (trait continu) et  $n = 0.3$  (ligne pointillée inférieure). L'insert est centré sur le milieu de l'entrefer.

profils de vitesse pour  $0.6 \leq n \leq 1$ . Pour des exposants inférieurs, les profils de vitesse présentent une courbure plus prononcée qui permet de les distinguer clairement d'un profil newtonien ou faiblement rhéofluidifiant. Cette courbure provient de l'effet cumulé de la rhéofluidification et de la non-uniformité de la contrainte dans l'entrefer de la cellule. Plus la contrainte est forte, plus la viscosité est faible : le cisaillement local  $\dot{\gamma}(x)$  décroît donc du rotor vers le stator. Sur la figure 4.7.b est présentée la courbe maîtresse  $\langle v_n \rangle$  obtenue grâce aux profils de vitesse de l'émulsion pour  $\dot{\gamma} \geq 0.4 \text{ s}^{-1}$ . Les données expérimentales et leurs barres d'erreur sont comprises entre les deux profils théoriques calculés par la relation (4.11) pour  $n = 0.3$  et  $n = 0.5$ . La résolution de notre montage permet donc de conclure que  $n = 0.4 \pm 0.1$  pour l'émulsion concentrée étudiée. Soulignons que cet exposant est compatible avec les prédictions théoriques de Princen ( $n = 0.5$ ) [122] et de Berthier *et al.* ( $n = 0.3$ ) [27]. Afin de savoir si le modèle rhéologique  $\sigma = A\dot{\gamma}^n$  (cf. relation (4.8)) reproduit les données expérimentales, il faut aussi vérifier qu'un unique paramètre  $A$  permette

d'ajuster les profils de vitesse mesurés.

#### Détermination expérimentale de $A$ : échec du modèle (4.8)

Une fois l'exposant  $n$  déterminé, il est possible de mesurer le préfacteur  $A$  à partir des profils de vitesse pour  $\dot{\gamma} \geq 0.4 \text{ s}^{-1}$ . Plus précisément, les profils présentés sur les figures 4.1.c–f ont été ajustés par la relation suivante :

$$v(x) = B \frac{R_1 + x}{R_2} + C (R_1 + x) \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + x} \right)^{2/n} - 1 \right], \quad (4.12)$$

où  $B$  et  $C$  sont des paramètres libres et  $n$  a été fixé à la valeur  $n = 0.4$  trouvée précédemment. Les meilleurs ajustements sont les lignes continues présentées sur les figures 4.1.c–f. Dans tous les cas, la relation (4.12) permet de décrire très précisément les profils expérimentaux.

Si le comportement rhéologique de l'émulsion est représenté par l'équation (4.8), on s'attend à :

$$\begin{cases} B = v_2, \\ C = \frac{n}{2} \left[ \frac{\sigma_1}{A} \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \right]^{1/n}, \end{cases} \quad (4.13)$$

conformément à l'équation (4.9). C'est à partir de ces valeurs que les vitesses de l'émulsion au rotor et au stator ont été déterminées (cf. relation (4.10)). Si le comportement rhéofluidifiant en loi de puissance  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  est valide, on doit alors trouver que :

$$D \cong \left( \frac{R_2}{R_1} \right)^2 \left( \frac{2C}{n} \right)^n = \frac{\sigma_1}{A}. \quad (4.14)$$

La figure 4.8 présente ce paramètre  $D$  en fonction des contraintes mesurées au rotor  $\sigma_1$ . Il est clair que  $D$  ne varie pas linéairement avec  $\sigma_1$ . En extrapolant  $D(\sigma_1)$ , on remarque que  $D$  ne s'annule pas lorsque  $\sigma_1 = 0$ . Plus précisément, on trouve que  $D = 0$  pour  $\sigma_1 \simeq 100 \text{ Pa}$ , ce qui correspond à une contrainte moyenne indiquée par le rhéomètre :  $\sigma \simeq 90 \text{ Pa}$ . Ces résultats indiquent que la loi de comportement  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  avec  $n = 0.4$  n'est pas compatible avec les profils de vitesse mesurés pour un *unique* paramètre  $A$ . Pour pouvoir ajuster les données par ce comportement, il faut donc permettre au préfacteur  $A$  de varier de façon significative avec le cisaillement appliqué.

### Influence d'une contrainte seuil ?

#### Profils théoriques dans le cas d'une contrainte seuil

Un autre possibilité pour modéliser la branche fluide est d'interpréter la valeur  $\sigma_0$  telle



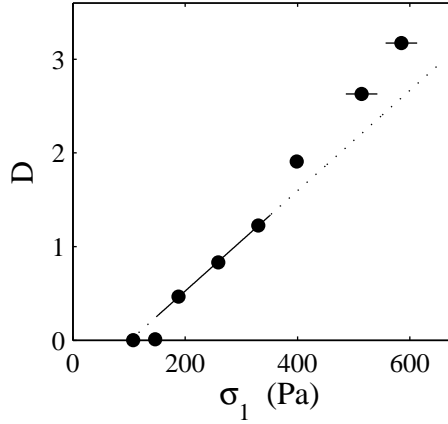


FIG. 4.8 – Paramètre  $D$  vs.  $\sigma_1$  (•). Le meilleur ajustement linéaire pour  $0.4 \leq \dot{\gamma} \leq 1 \text{ s}^{-1}$  (traits plein et pointillé) ne s'annule pas pour  $\sigma_1 = 0$ . Les deux points sur l'axe  $D = 0$  correspondent aux profils de vitesse des figures 4.1.a et b.

que  $D(\sigma_0) = 0$  comme une contrainte seuil. Pour vérifier une telle hypothèse, nous devons désormais savoir si le comportement rhéologique suivant (modèle d'Herschel-Bulkley) :

$$\sigma(x) = \sigma_0 + A \dot{\gamma}(x)^n \text{ pour } \sigma \geq \sigma_0, \quad (4.15)$$

permet de reproduire des profils de vitesse mesurés. Malheureusement, il n'existe aucune forme analytique donnant les profil de vitesse  $v(x)$  pour cette loi rhéologique dans le cas  $n \neq 1$ . Plus précisément, on obtient  $v(x)$  sous la forme intégrale suivante :

$$\frac{v(x)}{R_1 + x} = \frac{v_1}{R_1} + \int_{R_1}^{R_1+x} \frac{dr}{r} \left[ \frac{\sigma_1 (R_1/r)^2 - \sigma_0}{A} \right]^{1/n}. \quad (4.16)$$

Notons qu'il est raisonnable d'écarter le cas  $n = 1$  pour deux raisons : (i) la courbe d'écoulement effective  $(\sigma, \dot{\gamma}_{\text{eff}})$  présente une forte rhéofluidification pour les valeurs élevées de la contrainte (cf. fig. 4.6); (ii) la courbure des profils ne semble pas diminuer lorsque le cisaillement appliqué augmente. En effet, les profil de vitesse s'écrivent dans le cas  $n = 1$  :

$$v(x) = v_2 \frac{R_1 + x}{R_2} + \frac{R_1 + x}{A} \left\{ \frac{\sigma_1}{2} \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + x} \right)^2 - 1 \right] + \sigma_0 \ln \left( \frac{R_1 + x}{R_2} \right) \right\}. \quad (4.17)$$

La courbure est uniquement prononcée pour  $\sigma \gtrsim \sigma_0$  et disparaît à plus haute contrainte. Le profil tend alors vers celui d'un fluide newtonien. La courbure des profils de vitesse mesurés ne varie pas de façon significative sur la gamme de cisaillement appliqué (cf. fig. 4.1), on peut donc raisonnablement penser que  $n \neq 1$  dans le cas de l'émulsion étudiée.

Nous avons intégré la relation (4.16) et cherché un jeu de paramètres  $\sigma_0$  et  $A$  permettant d'ajuster les profils de vitesse mesurés. Les valeurs de  $v_1$  précédemment mesurées ont été forcées dans cette équation ainsi que la valeur  $n = 0.4$ . La relation (4.16) permet de bien ajuster individuellement les profils de vitesse pour  $\dot{\gamma} \geq 0.4 \text{ s}^{-1}$ . Cependant, une fois de plus, il a été impossible de trouver un jeu de paramètres constants pour ajuster tout les profils de vitesse :  $A$  et  $\sigma_0$  doivent être variés de façon significative pour chaque mesure.

Le nombre limité de profils de vitesse ne permet pas raisonnablement de rajouter un paramètre libre dans la relation (4.16). Notamment si on se laisse la liberté de varier  $n$ , toutes les valeurs comprises entre 0.1 et 0.7 peuvent être obtenues si l'on choisit correctement  $\sigma_0$  et  $A$ . En effet, la courbure du profil de vitesse dans le comportement rhéologique d'Herschel-Bulkley dépend non seulement de la valeur  $n$ , mais est aussi très sensible à la valeur de  $\sigma_0$ . Soulignons cependant que si on limite l'analyse à  $0.2 < \dot{\gamma} < 5 \text{ s}^{-1}$ , où  $D(\sigma_1)$  varie de façon affine (cf. fig. 4.8), les valeurs  $n = 0.4$  et  $\sigma_0 = 90 \pm 10 \text{ Pa}$  permettent d'ajuster correctement tous les profils de vitesse mesurés. Notons de plus que cette gamme de cisaillement correspond au domaine où la courbe locale  $(\sigma(x), \dot{\gamma}(x))$  semble la plus continue (cf. fig. 4.6).

#### *Existence d'une courbe locale ?*

Les problèmes rencontrés lors de l'analyse des données locales remettent en question l'existence d'une courbe d'écoulement globale dans le cas de l'émulsion étudiée. En effet, il semble que les approches (4.8) et (4.15) ne permettent pas de modéliser la courbe d'écoulement avec un jeu de paramètres uniques : ces derniers doivent être variés de façon significative pour chaque cisaillement afin d'ajuster les profils. Ces résultats suggèrent le comportement général suivant :

$$\sigma(x) = \sigma_0(\sigma) + A(\sigma) \dot{\gamma}(x)^{n(\sigma)}, \quad (4.18)$$

où les paramètres  $n$ ,  $A$  et  $\sigma_0$  varient localement avec la contrainte imposée. Ces variations pourrait être liées à un changement de la microstructure de l'émulsion avec la contrainte appliquée. On peut par exemple penser que des gradients de concentration de la phase dispersée, induits par l'hétérogénéité de la contrainte au sein de l'entrefer, pourraient être à l'origine de ces variations. Le manque de données ne nous permet pas à ce jour d'aller plus loin dans cette analyse (cf. référence [134] pour plus de détails).

### 4.1.5 Discussions et perspectives

Dans cette section, nous avons utilisé le montage de diffusion dynamique de la lumière décrit dans le chapitre 3, pour étudier localement le comportement rhéologique d'une émulsion concentrée. Nous avons montré l'existence de glissement significatif dans ce système. Grâce à ces mesures, il est possible de s'intéresser au « véritable » comportement rhéologique de l'émulsion. Nous avons alors montré que le fluide était localement rhéofluidifiant et que la valeur  $n = 0.4$  permettait de rendre compte de la courbure des profils. Cependant, pour la gamme de cisaillement étudiée, aucune courbe d'écoulement simple avec des paramètres constants n'a pu être appliquée afin d'ajuster les données.

Dans le domaine  $0.4 \leq \dot{\gamma} < 5 \text{ s}^{-1}$ , les profils de vitesse peuvent être ajustés par le comportement rhéologique d'Herschel-Bulkley (cf. relation (4.15)) avec  $\sigma_0 \simeq 90 \text{ Pa}$  et  $n \simeq 0.4$ . Pour des cisaillements inférieurs à  $0.4 \text{ s}^{-1}$ , l'émulsion ne coule pas et se comporte comme un solide. Il y a donc deux régimes dans l'écoulement de ce système : (i) une branche pâteuse et (ii) une branche fluide. À la précision des données, les contraintes correspondant aux cisaillements pour lesquels l'émulsion ne coule pas sont légèrement supérieures à  $\sigma_0 \simeq 90 \text{ Pa}$  ( $\sigma = 100$  et  $130 \text{ Pa}$ , cf. fig. 4.6). Ceci suggère que le comportement rhéologique de l'émulsion soit décrit pour les cisaillements  $\dot{\gamma} < 5 \text{ s}^{-1}$ , par :

$$\begin{cases} \dot{\gamma}(x) = 0 & \text{pour } \sigma < \sigma_c, \\ \sigma(x) = \sigma_0 + A\dot{\gamma}(x)^n & \text{pour } \sigma \geq \sigma_c, \end{cases} \quad (4.19)$$

où  $\sigma_c > \sigma_0$ , ( $\sigma_c \simeq 130$  et  $\sigma_0 \simeq 90 \text{ Pa}$ ). Avec ce type de loi rhéologique, la courbe d'écoulement peut présenter des comportements hystérétiques. Au voisinage de la contrainte seuil et à cisaillement imposé, le fluide peut aussi se séparer en plusieurs bandes correspondant à la branche fluide et à la branche pâteuse [41, 46, 118]. Des modèles théoriques prédisent aussi la présence de comportements dynamiques de ces bandes [117, 148]. Des expériences récentes effectuées dans notre groupe ont mis en évidence une telle complexité spatio-temporelle [18].

## 4.2 Le cas d'une solution semi-diluée de micelles géantes

Cette section concerne une étude locale de l'écoulement d'une solution semi-diluée de micelles géantes, réalisée à l'aide du montage de diffusion dynamique de la lumière présenté dans le chapitre 3. Ces résultats permettront d'introduire la notion de « shear-banding » ainsi qu'un modèle phénoménologique pour l'analyse des profils de vitesse. Les

résultats expérimentaux ont été obtenus en collaboration avec F. Molino, chercheur au GDPC à Montpellier.

## 4.2.1 Quelques généralités sur les micelles géantes

### Les micelles géantes

Les tensioactifs sont des molécules caractérisées par une tête polaire et une longue chaîne hydrophobe. Elles ont la particularité de s'auto-assembler lorsqu'elles sont dissoutes en solution aqueuse (cf. section 1.3, page 17). Parmi les diverses morphologies possibles, on trouve les « micelles géantes ». Ces dernières sont de longues structures unidimensionnelles (diamètre  $d \simeq 1\text{--}5$  nm) dont la longueur peut atteindre quelques microns (cf. fig. 1.3.a, page 17). Les micelles géantes sont aussi appelées « polymères vivants » pour les raisons suivantes : (i) leur distribution de taille n'est pas fixée par une réaction chimique mais par l'équilibre thermodynamique ; (ii) elles ont la possibilité de se « couper » et se « recombinaison » sous l'action de l'agitation thermique.

Les propriétés rhéologiques des micelles géantes dépendent fortement de la température  $T$ , de la fraction massique en tensioactif  $\phi$  et de la concentration en sel dans la phase aqueuse. À faible fraction  $\phi$ , *i.e.* dans le régime dilué, les micelles ne sont pas enchevêtrées et la solution présente une viscosité proche de celle du solvant. Dans le régime semi-dilué ( $\phi \geq 1\%$ ), les micelles forment un réseau enchevêtré : la solution présente alors une forte viscoélasticité. La plupart des systèmes de micelles géantes présentent à plus haute fraction ( $\phi \simeq 30\%$ ), une phase « nématique » dont l'existence est liée aux interactions stériques.

En conciliant le modèle classique de reptation des polymères [47] et le mécanisme spécifique aux micelles de « coupure » et de « recombinaison », les approches théoriques de Cates *et al.* ont permis de prédire la rhéologie linéaire des solutions de micelles géantes dans le régime semi-dilué [33]. Depuis presque 20 ans, de nombreuses études expérimentales sur divers systèmes de micelles géantes ont conforté ces approches théoriques (cf référence [34] pour une revue). Il est clair que les modèles développés permettent de modéliser avec une grande précision la rhéologie linéaire de ces systèmes. Nous allons voir qu'il n'en est pas de même pour la rhéologie non-linéaire.

### Rhéologie non-linéaire dans le régime semi-dilué

Le comportement sous écoulement de cisaillement des solutions de micelles géantes est particulièrement surprenant et a fait l'objet de nombreuses études expérimentales depuis plus d'une dizaine d'années [25, 127, 139]. La phénoménologie rencontrée de façon quasi-

universelle est la suivante (la courbe d'écoulement à cisaillement imposé correspondante est présentée sur la figure 4.9.a) :

- la solution est newtonienne pour de faibles cisaillements ;
- à partir d'un cisaillement  $\dot{\gamma}_A$ , la solution est fortement rhéofluidifiante : la contrainte ne varie quasiment plus, *i.e.*  $\sigma = \sigma^* = \text{cste}$ . On parle de « plateau » de contrainte ;
- pour certains systèmes et pour certaines conditions physico-chimiques (fractions  $\phi$ , température  $T$ ...), on observe de nouveau pour des cisaillements  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_B$ , une branche visqueuse, *i.e.* caractérisée par  $\partial\sigma/\partial\dot{\gamma} > 0$ . Pour les autres systèmes, des instabilités se produisent et l'écoulement devient instable<sup>4</sup> : la branche visqueuse n'est alors pas atteinte car la solution est généralement expulsée du rhéomètre.

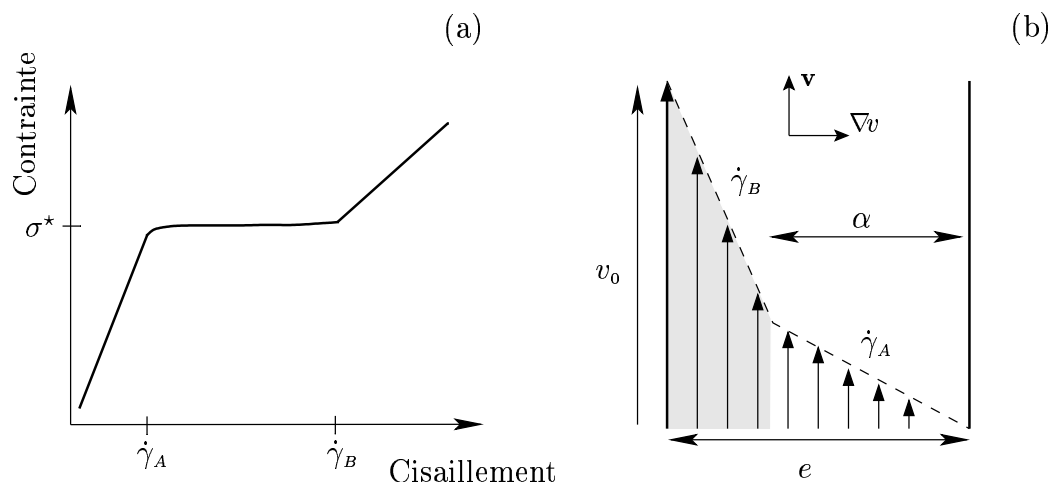


FIG. 4.9 – (a) Courbe d'écoulement typique d'une solution semi-diluée de micelles géantes.  $\sigma^*$  est la contrainte sur le plateau,  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$  correspondent aux cisaillements au début et à la fin du plateau. (b) Profil de vitesse attendu pour un cisaillement imposé sur le plateau de contrainte, *i.e.*  $\dot{\gamma}_A < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_B$ . La figure présente le cas particulier de deux bandes de cisaillement uniquement.

Pour interpréter le plateau de contrainte, on suppose généralement que le fluide se sépare en plusieurs bandes de cisaillements locaux distincts  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ , reliés au cisaillement imposé  $\dot{\gamma}$  par :

$$\dot{\gamma} = \alpha\dot{\gamma}_A + (1 - \alpha)\dot{\gamma}_B, \quad (4.20)$$

où  $\alpha$  est la fraction volumique occupée par les bandes cisillées à  $\dot{\gamma}_A$ . La figure 4.9.b présente le cas particulier, où deux bandes coexistent dans l'écoulement. C'est le phénomène

<sup>4</sup> L'origine de ces instabilités n'est pas clairement établie. L'élasticité ainsi que les contraintes normales  $y$  jouent probablement un rôle important.

de « shear-banding ». Dans les expériences, ces bandes apparaissent à une contrainte donnée  $\sigma^*$ . Si la contrainte est imposée, on n'observe pas le plateau mais une variation discontinue du cisaillement passant de  $\dot{\gamma}_A$  à  $\dot{\gamma}_B$  lorsque  $\sigma$  est augmenté au-delà de  $\sigma^*$ . Ce résultat expérimental suggère que les interfaces séparant les bandes de cisaillements différents ne peuvent être stables qu'à une contrainte donnée  $\sigma^*$ .

### Les approches théoriques

Il existe principalement deux approches microscopiques pour interpréter ce phénomène. La première, due à Cates *et al.*, est basée sur une instabilité élastique de la courbe d'écoulement constitutive [36, 146]. Dans cette approche, la relaxation de la contrainte est liée au processus de reptation et de « cassure » des micelles. La solution se comporte alors dans le domaine linéaire, comme un fluide viscoélastique caractérisé par un temps de relaxation  $\tau_R$  et un module élastique  $G_0$ . En adaptant ce modèle de rhéologie linéaire aux grandes déformations, Spenley *et al.* [146] ont montré que la courbe d'écoulement présente un maximum à un cisaillement donné  $\dot{\gamma}_A = 2.6/\tau_R$  correspondant à  $\sigma^* = 0.67 G_0$  (cf. fig. 4.10). La courbe

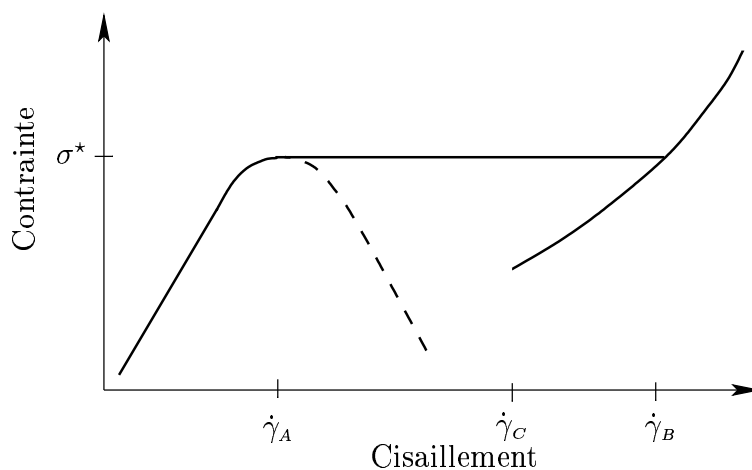


FIG. 4.10 – (a) Courbe d'écoulement prédite par le modèle de la référence [146]. La zone de la courbe d'écoulement en traits-tirés est instable car  $\partial\sigma/\partial\dot{\gamma} < 0$ .

d'écoulement présente alors une branche où  $\partial\sigma/\partial\dot{\gamma} < 0$  pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_A$ . Une telle situation est instable mécaniquement.

Cependant, la contrainte ne diminue pas cependant indéfiniment avec le cisaillement. D'autres phénomènes tels que l'étirement des micelles géantes dans le champ de cisaillement, entrent en jeu à plus haut cisaillement [36]. De tels processus permettent de recouvrir une branche stable où  $\partial\sigma/\partial\dot{\gamma} > 0$  pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_C$  (cf. fig. 4.10).

Sur la branche instable, *i.e.* pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_A$ , les auteurs supposent que l'écoulement est composé de plusieurs bandes macroscopiques de cisaillements différents  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ , le long du gradient de vitesse  $\nabla v$  (cf. fig. 4.9.b). La continuité de la vitesse impose par ailleurs l'équation (4.20). En effet, si le profil de vitesse est continu, le cisaillement effectif  $\dot{\gamma}$  indiqué par le rhéomètre est donné par (dans le cas de non-glissement) :

$$\begin{aligned}\dot{\gamma} &\hat{=} v_0/e = \frac{1}{e} \int_0^e dv = \frac{1}{e} \int_0^e \dot{\gamma}(x) dx, \\ \dot{\gamma} &= \alpha \dot{\gamma}_A + (1 - \alpha) \dot{\gamma}_B,\end{aligned}\tag{4.21}$$

où  $v_0$  est la vitesse de la plaque mobile et  $\alpha$  la fraction volumique de bandes cisillées à  $\dot{\gamma}_A$  (cf. fig. 4.9.b). Augmenter le cisaillement imposé  $\dot{\gamma}$  ne fait que croître la proportion de bandes fortement cisillées : la contrainte reste constante tant que l'écoulement est inhomogène. Dans ce modèle, aucun critère de sélection de la valeur de la contrainte au plateau n'est proposé. Les auteurs suggèrent que si la contrainte est augmentée de façon quasistatique, alors l'écoulement reste stable jusqu'à  $\sigma^*$ , où s'amorce l'instabilité.

La seconde approche théorique est due à Olmsted *et al.* [110, 111]. Ces auteurs interprètent le phénomène de « shear-banding » comme une transition de phase isotrope-nématique induite par le cisaillement [111, 112]. Les auteurs ont en effet montré que pour le cas simple d'une solution de bâtonnets rigides, le couplage entre le cisaillement et les fluctuations du paramètre d'ordre pouvait induire une « coexistence de phase » entre un état isotrope et un état nématique [111]. La courbe d'écoulement de la figure 4.9.a s'interprète alors de la façon suivante : (i) pour  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_A$ , les micelles sont dans l'état isotrope ; (ii) à une contrainte donnée  $\sigma^*$ , il y a nucléation d'une bande nématique au sein de l'écoulement. La viscosité de la phase nématique étant inférieure à celle de l'organisation isotrope, le profil de vitesse est celui de la figure 4.9.b ; (iii) le long du plateau, la structure nématique croît jusqu'à  $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_B$ , où elle a envahi la totalité de l'écoulement. Soulignons pour finir que ce modèle théorique est particulièrement attendu dans les solutions de micelles géantes au voisinage de la transition isotrope-nématique, *i.e.* pour de grandes fractions massiques  $\phi$ .

### Preuves expérimentales du « shear-banding »

De nombreuses équipes ont apporté des preuves expérimentales du shear-banding dans les solutions semi-diluées de micelles géantes. Ce sont notamment les travaux Rehage et Hoffmann sur le système composé de CPCl/NaSal dans de l'eau pure ( $\phi \simeq 5\%$ ). La rhéologie non-linéaire de cette solution présente un plateau à des valeurs de contrainte et de cisaillement exactement reproduits par le modèle de Spenley *et al.* [127, 146]. Ce sont aussi les

travaux de Schmitt *et al.* basés sur la diffusion de neutrons sur le système  $\text{CPClO}_3/\text{NaClO}_3$  ( $\phi = 20\text{--}40\%$ ) qui ont pour la première fois, apporté la preuve de l'apparition d'un ordre nématique sur le plateau de contrainte [139]. La même année, Berret *et al.* ont mis en évidence par diffusion de neutrons la signature d'une transition isotrope-nématique induite par le cisaillement dans le système concentré  $\text{CPCl}/\text{Hexanol}/\text{Eau salée}$  ( $\phi = 28\text{--}32.5\%$ ) [26]. La même année, ces auteurs ont apporté des arguments en faveur d'une transition de phase induite par le cisaillement pour le système  $\text{CPCl}/\text{NaSal}$  dans de l'eau salée à fortes concentrations ( $\phi = 6\text{--}30\%$ ) [25]. À plus faible fraction ( $\phi = 1\text{--}6\%$ ), le plateau de contrainte disparaît et la transition n'est plus « discontinue » mais « continue » [24]. Grâce à un montage permettant de sonder la biréfringence de l'écoulement dans le plan  $(\mathbf{v}, \nabla v)$  d'une cellule de Couette, Cappelaere *et al.* [32] ont mis en évidence la nucléation et la croissance d'une bande fortement biréfringente le long du plateau de contrainte dans le système  $\text{CTAB}/\text{D}_2\text{O}$ , pour une concentration  $\phi = 18\%$ , proche de la transition isotrope-nématique [32]. Par diffusion de neutrons, les mêmes auteurs ont pu identifier la structure nématique de la phase induite. À la suite de ces études, il semble relativement clair que l'on peut classer les différents systèmes de micelles géantes selon leur concentration : les faibles  $\phi$  correspondent probablement à une instabilité élastique reproduite par le modèle de Spensley *et al.* [146] et les fortes concentrations  $\phi$  correspondent certainement à une transition de phase induite par le cisaillement susceptible d'être décrite par le modèle d'Olmsted *et al.* [111].

C'est le groupe de Callaghan qui a mesuré pour la première fois, des profils de vitesse de micelles géantes sur le plateau de contrainte. La méthode utilisée est l'imagerie par résonance magnétique (« Nuclear Magnetic Resonance », NMR) préalablement détaillée dans la section 3.1.3, page 108. Mair *et al.* [93] ont ainsi mis en évidence sur le système de Rehage et Hoffmann ( $\text{CPCl}/\text{NaSal}/\text{Eau}$ ,  $\phi \simeq 5\%$ ), la présence de bandes de cisaillement dans un écoulement de Couette. Ces travaux révèlent l'existence de bandes d'épaisseur  $\simeq 30 \mu\text{m}$  (non résolue par leur montage), supportant des cisaillements de l'ordre de  $500 \text{ s}^{-1}$ . Ils ont de plus montré que la position de ces bandes dépendait fortement des conditions aux bords. Ces bandes s'apparentent donc le plus souvent à des fractures localisées sur quelques dizaines de microns. La phénoménologie de la nucléation et croissance d'une bande fortement cisailée n'est pas rapportée dans ce travail. Ces auteurs ont aussi montré que la solution de micelles glissait aux parois de leur cellule de Couette. Une année plus tard, Britton *et al.* ont appliqué cette technique à l'écoulement cône-plan. Les auteurs ont alors montré pour la première fois, la nucléation et la croissance d'une bande fortement cisailée dans le même système, *i.e.*  $\text{CPCl}/\text{NaSal}$  ( $\phi \simeq 5\%$ ) [30, 31]. Par ailleurs ces travaux montrent la présence de fluctuations temporelles de la vitesse. Ces dynamiques rapides



(1 ms–10 s) suggèrent le mouvement des bandes au sein de l'écoulement et dépendent très fortement des impuretés présentes dans la solution [31].

Plus récemment, Fischer *et al.* ont étudié le système CTAB/D<sub>2</sub>O ( $\phi = 20\%$ ), pour lequel l'existence de bandes de biréfringence ainsi que la présence d'un ordre nématique induit, avaient été montrées précédemment par Cappelaere *et al.* [32]. Les travaux de Fischer *et al.* [59] ont soulevé de nombreuses interrogations et remis en question les théories existantes. En effet, un de leurs résultats majeurs est que les bandes nématiques observées ne correspondent pas aux bandes fortement cisailées. Pour interpréter le phénomène de shear-banding dans ce système, les auteurs supposent alors que la phase nématique induite est un gel fortement visqueux, la rhéofluidification apparente n'étant reliée qu'à la présence de glissement ainsi que d'une « fracture » entre le gel nématique et la phase isotrope. À la suite de ces travaux, il semble clair que la question de l'écoulement des solutions de micelles géantes est toujours sans réponse. Par ailleurs, Fischer *et al.* insistent sur la présence de fluctuations temporelles non résolues par leur montage dans les profils mesurés [59]. La présence de ces fluctuations temporelles complique évidemment l'interprétation des données de NMR surtout si on imagine que la position de la bande (ou de la fracture) peut fluctuer dans le temps.

Dans la suite de ce chapitre, nous présentons des expériences de vélocimétrie à l'aide du montage décrit dans le chapitre 3 sur un système bien connu de micelles géantes : CPCI/NaSal dans de l'eau salée [24, 25]. Notre objectif est double : nous voulons évidemment savoir si l'image simple du shear-banding, où des bandes de cisaillement coexistent sur le plateau, est valide pour ce système dilué ( $\phi = 6\%$ ). Si tel est le cas, nous voulons savoir si le montage développé permet de résoudre une discontinuité du taux de cisaillement et permettre le passage du local ( $\sigma(x), \dot{\gamma}(x)$ ) au global ( $\sigma, \dot{\gamma}$ ) comme dans le cas de l'émulsion précédemment étudiée.

## 4.2.2 Expériences sur le système CPCI/NaSal/Eau salée

### Choix du système

Le système choisi est le mélange de cétypyridinium chloride (CP<sup>+</sup>, Cl<sup>-</sup>) et sodium salicylate (Na<sup>+</sup>, Sal<sup>-</sup>) dans une solution aqueuse salée à 0.5 M (NaCl). C'est le système étudié de manière exhaustive par Berret *et al.* [24, 25]. La concentration massique choisie est  $\phi = 6\%$ , *i.e.* au-delà du régime dilué (0.5–5%) mais loin de la transition isotrope–nématique ( $\phi \simeq 20\%$ ). La température d'étude est fixée à  $T = 21.5^\circ\text{C}$ . La rhéologie non-linéaire de ce système est particulièrement bien connue (cf. référence [24]). La fraction  $\phi$

ainsi que la température  $T$  ont été choisies de sorte que les instabilités élastiques, expulsant l'échantillon du rhéomètre, aient lieu à suffisamment haut cisaillement [24, 25]. Ainsi, pour les paramètres choisis, plusieurs mesures peuvent être obtenues sur la branche visqueuse à haut cisaillement. Cependant, il n'a pas été clairement établi à notre connaissance, que la structure induite par le cisaillement soit caractérisée par un ordre nématique pour les paramètres  $T$  et  $\phi$  étudiés ici [24, 25].

Les profils de vitesse ont été mesurés simultanément aux courbes d'écoulement à l'aide du montage décrit dans le chapitre 3. L'angle de diffusion ( $\simeq 60^\circ$ ) a été choisi de sorte que le volume diffusant ait une taille de  $50 \mu\text{m}$ . Les profils de vitesse ont été obtenus en déplaçant la table supportant le rhéomètre par pas de  $30 \mu\text{m}$ . Chaque fonction de corrélation a été moyennée sur 3 s : le temps requis pour obtenir un profil de vitesse complet est donc environ 2 min.

Pour augmenter la quantité de lumière diffusée par ces échantillons, nous avons ajouté une faible quantité ( $\simeq 1\%$  wt.) de particules colloïdales de diamètre 30 nm (Ludox, Aldrich). Nous avons alors vérifié que les propriétés rhéologiques de cette phase ne sont pas sensiblement affectées par l'addition de ces diffuseurs. La courbe d'écoulement est en effet qualitativement identique, la valeur de la contrainte au plateau est modifiée et passe de 56 à 65 Pa, ainsi que les valeurs d'entrée et de sortie du plateau.

### Les profils de vitesse et la courbe d'écoulement

La figure 4.11 présente la courbe d'écoulement stationnaire obtenue sur ce système pour une température  $T = 21.5^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. Rappelons que le rhéomètre utilisé permet d'imposer  $\dot{\gamma}$  grâce à une boucle de rétroaction informatique sur le couple induit  $\Gamma$ . Cette courbe d'écoulement présente un plateau de contrainte à  $\sigma \simeq 65 \text{ Pa}$ , qui s'étend de  $\dot{\gamma}_A = 2.5$  à  $\dot{\gamma}_B = 26 \text{ s}^{-1}$ . La chute de viscosité mesurée correspond donc à un facteur 10. Pour  $\dot{\gamma} \gtrsim \dot{\gamma}_B$ , la réponse  $\sigma(t)$  n'est plus réellement stationnaire :  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$  fluctuent au cours du temps avec des amplitudes de l'ordre de 2%. L'origine de ces fluctuations est probablement liée au couplage entre le mode de fonctionnement du rhéomètre utilisé et une instabilité élastique du matériau. Pour des cisaillements de l'ordre de  $\dot{\gamma} \simeq 37 \text{ s}^{-1}$ , l'échantillon se fracture et aucune mesure n'a pu être effectuée à plus haut taux de cisaillement.

La figure 4.12 présente les profils de vitesse mesurés simultanément à la courbe d'écoulement pour des cisaillements allant de 1 à  $28 \text{ s}^{-1}$ . Les résultats peuvent être résumés de la manière suivante :

- pour  $\dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_A \simeq 2.5 \text{ s}^{-1}$ , les profils de vitesse sont linéaires dans l'entrefer de la cellule de Couette. À la résolution près du montage, *aucun* glissement significatif n'est

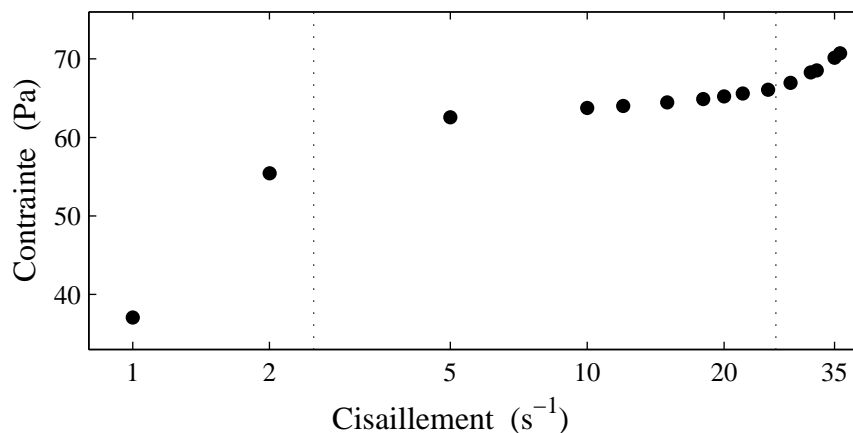


FIG. 4.11 – Courbe d'écoulement obtenue sur le système CPCI/NaSal/Eau Salée à 0.5 M et  $\phi = 6\%$ . La température est maintenue à  $T = 21.5^\circ\text{C}$ . Les lignes verticales correspondant à  $\dot{\gamma}_A = 2.5$  et  $\dot{\gamma}_B = 26 \text{ s}^{-1}$  indiquent le plateau de contrainte.

mesuré : la vitesse au rotor coïncide toujours avec celle indiquée par le rhéomètre et le profil de vitesse s'annule toujours au stator ;

- pour  $\dot{\gamma}_A \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_B \simeq 26 \text{ s}^{-1}$ , les profils de vitesse présentent clairement deux bandes de cisaillements distincts  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ , qui restent approximativement constants le long du plateau. La bande nucléée croît lorsque le cisaillement appliqué est augmenté, jusqu'à envahir la totalité de l'entrefer à  $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_B$  ;
- pour des cisaillements  $\dot{\gamma} \geq \dot{\gamma}_B$ , le profil redevient homogène. Notons cependant qu'une courbure significative est décelée : même dans un entrefer d'épaisseur  $e = 1 \text{ mm}$ , les profils de vitesse diffèrent d'un profil newtonien. Une fois de plus, aucun glissement significatif n'est mesuré.

Les profils mesurés permettent d'accéder à l'épaisseur  $\delta$  de la bande fortement cisailée. La courbe  $\delta$  vs.  $\dot{\gamma}$  est présentée sur la figure 4.13.a. Comme le suggère l'ajustement de ces données, l'épaisseur  $\delta$  croît linéairement avec le cisaillement imposé *i.e.* :

$$\delta = e \frac{\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_A}{\dot{\gamma}_B - \dot{\gamma}_A}, \quad (4.22)$$

cette relation est une conséquence directe de la continuité de la vitesse entre les deux bandes cisillées (cf. relation (4.21), page 150)<sup>5</sup>.

<sup>5</sup> En réalité, la géométrie de Couette induit des termes correctifs venant de la définition même d'un cisaillement moyen dans l'entrefer. Ces termes correctifs sont négligeables devant la précision de l'expérience.

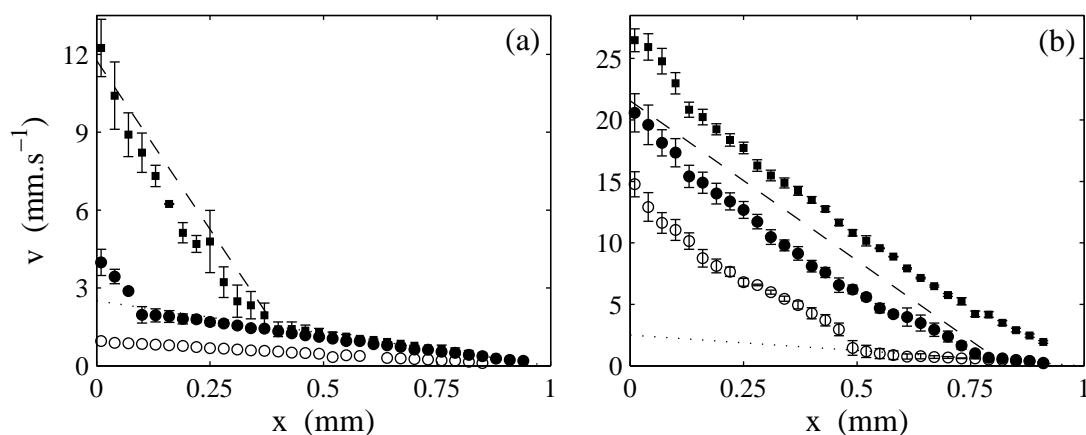


FIG. 4.12 – Profils de vitesse obtenus simultanément à la courbe d'écoulement de la figure 4.11. (a)  $\dot{\gamma} = 1$  ( $\circ$ ),  $5$  ( $\bullet$ ), et  $12$   $\text{s}^{-1}$  ( $\blacksquare$ ). (b)  $\dot{\gamma} = 15$  ( $\circ$ ),  $22$  ( $\bullet$ ), et  $28$   $\text{s}^{-1}$  ( $\blacksquare$ ). Les positions  $x = 0$  et  $x = 1$  correspondent au rotor et au stator respectivement. La ligne pointillée est  $v(x) = \dot{\gamma}_A(e-x)$  avec  $\dot{\gamma}_A = 2.5$   $\text{s}^{-1}$ . La ligne en traits-tirés correspond à un cisaillement  $\dot{\gamma}_B = 26$   $\text{s}^{-1}$

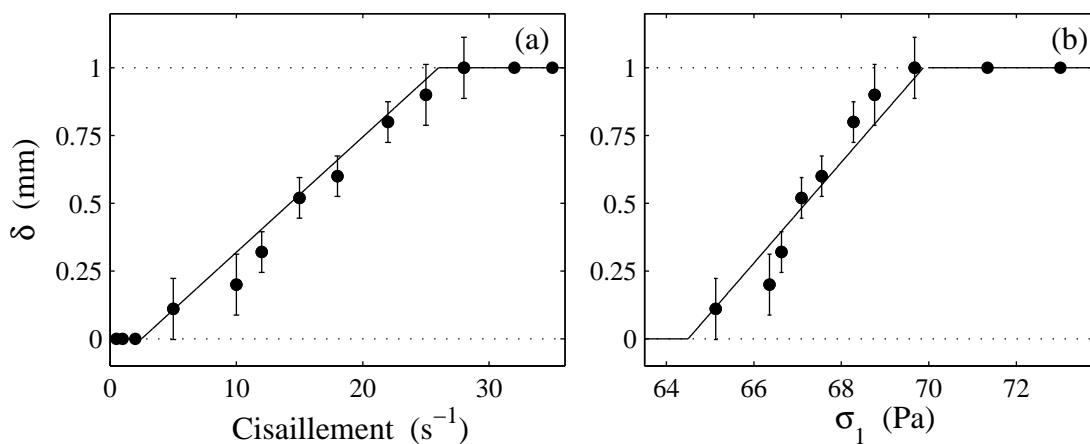


FIG. 4.13 – (a) Épaisseur  $\delta$  de la bande fortement cisailée en fonction du cisaillement imposé  $\dot{\gamma}$ . Avec la valeur  $\dot{\gamma}_A = 2.5$   $\text{s}^{-1}$  tirée des profils de vitesse mesurés, un très bon ajustement linéaire des données est obtenu pour la valeur  $\dot{\gamma}_B = 26$   $\text{s}^{-1}$  (ligne continue). (b)  $\delta$  vs.  $\sigma_1$ . La ligne continue correspond à l'équation (4.25) avec  $\sigma^* = 64.5$  Pa.

Testons désormais l'hypothèse selon laquelle l'interface est stable à une contrainte fixe  $\sigma^*$ . Comme la contrainte n'est pas strictement uniforme et varie dans l'entrefer de la géo-

métrie de Couette selon :

$$\sigma(x) = \sigma_1 \left( \frac{R_1}{R_1 + x} \right)^2, \quad (4.23)$$

où  $R_1 = 24$  mm est le rayon du rotor et  $\sigma_1$  la contrainte au rotor. L'hypothèse que  $\delta$  n'est stable qu'à la contrainte  $\sigma^*$  implique que :

$$\delta(\sigma_1) = R_1 \left( \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} - 1 \right). \quad (4.24)$$

Dans la géométrie utilisée,  $e \ll R_1$  et la relation précédente devient :

$$\delta(\sigma_1) \simeq \frac{R_1}{2} \frac{\sigma_1 - \sigma^*}{\sigma^*}. \quad (4.25)$$

La figure 4.13.b présente l'épaisseur de la bande  $\delta$  en fonction de  $\sigma_1$ . L'ajustement linéaire réalisé indique que  $\delta$  varie linéairement avec  $\sigma_1 - \sigma^*$ , où  $\sigma^* \simeq 64$  Pa. L'hypothèse selon laquelle l'interface est uniquement stable à une contrainte fixe  $\sigma^*$  est bien vérifiée dans nos expériences.

Par ailleurs, la prise en compte de la non-uniformité de la contrainte permet aussi de rendre compte de la légère « pente » du plateau observé (cf. fig. 4.11). En effet, lorsque  $\delta = 0$ , la contrainte au rotor est  $\sigma_1 = \sigma^*$ , alors qu'à la sortie du plateau, *i.e.* lorsque  $\delta = e$ , la contrainte au rotor est  $\sigma_1 \simeq \sigma^*(1 + 2e/R_1)$ . L'augmentation de la contrainte le long du plateau est donc de l'ordre de  $2e\sigma^*/R_1$ . Nous y reviendrons plus longuement dans la section 4.2.3.

### Comportements non-newtoniens pour $\dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_A$

Notre montage permet aussi d'analyser plus en détail les profils de vitesse à l'approche du shear-banding. La courbe 4.14 présente des profils de vitesse mesurés dans un entrefer d'épaisseur  $e = 3$  mm à l'approche de  $\dot{\gamma}_A$ , pour  $\dot{\gamma} = 1$  et  $2 \text{ s}^{-1}$ . Pour  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ , le profil de vitesse est très proche de celui d'un fluide newtonien. Le profil mesuré est donc en bon accord avec les données existantes montrant que la branche visqueuse à bas taux de cisaillement est quasiment newtonienne [25]. En réalité, l'insert de la figure 4.14 révèle que ce profil n'est pas parfaitement linéaire et présente une légère courbure. Comme dans le cas des émulsions, on peut rendre compte de cette courbure grâce au comportement rhéofluidifiant  $\sigma \sim \dot{\gamma}^n$  (cf. équation (4.9), page 141) :

$$\frac{v(x)}{v_0} = r \frac{(R_2/r)^{2/n} - 1}{(R_2/R_1)^{2/n} - 1}, \quad (4.26)$$

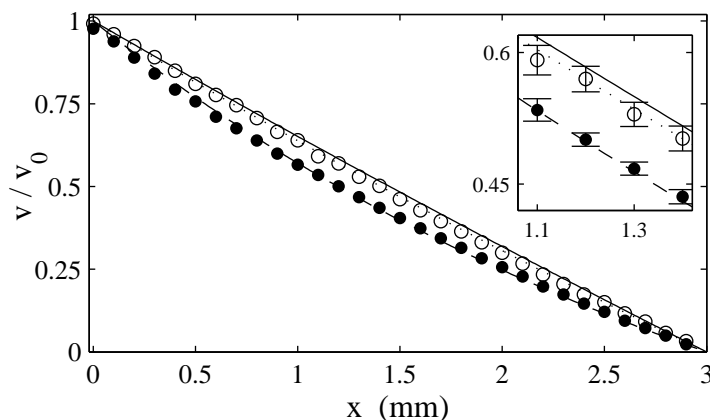


FIG. 4.14 – Profils de vitesse mesurés dans l'entrefer d'épaisseur  $e = 3$  mm. Les profils de vitesse ont été normalisés par la vitesse du rotor  $v_0$ . Pour  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$  (○), les données ont été ajustées par l'équation (4.26) correspondant à un comportement faiblement rhéofluidifiant,  $\sigma \sim \dot{\gamma}^{0.7 \pm 0.1}$  (ligne pointillée). Pour le cas  $\dot{\gamma} = 2 \text{ s}^{-1}$  (●), le meilleur ajustement est donné par :  $\sigma \sim \dot{\gamma}^{0.28 \pm 0.03}$  (ligne en traits-tirés). La ligne continue est le profil de vitesse d'un fluide newtonien. L'insert, centré sur le milieu du gap, permet de mieux distinguer les différents profils.

où  $r = R_1 + x$  est la position radiale dans la cellule de Couette. Une telle loi rhéologique conduit à  $n = 0.7 \pm 0.1$  pour  $\dot{\gamma} = 1 \text{ s}^{-1}$ . Quand  $\dot{\gamma} = 2 \text{ s}^{-1}$ , *i.e.* juste à l'entrée du plateau, le profil de vitesse présente une courbure nettement supérieure (cf. fig. 4.14). Le liquide est alors fortement rhéofluidifiant : le comportement  $\sigma \sim \dot{\gamma}^{0.28 \pm 0.03}$  permet d'ajuster les données avec une très grande précision. Ces résultats montrent que la branche fortement visqueuse présente en réalité une très légère rhéofluidification qui augmente brutalement à l'approche du plateau de contrainte.

Comme le montrent les profils de vitesse mesurés pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_B$ , le fluide nucléé n'est pas caractérisé, lui non plus, par un comportement rhéologique simple. Les profils de vitesse présentent en effet une courbure prononcée même dans l'entrefer d'épaisseur  $e = 1$  mm (cf. fig. 4.12). Nous y revenons plus longuement dans la section suivante.

### 4.2.3 Un modèle pour le passage « global–local »

L'approche que nous allons adopter n'est pas d'écrire un modèle dynamique pour reproduire la structuration spatiale que nous avons observée, mais simplement de savoir si l'information globale  $\sigma(\dot{\gamma})$  permet de remonter au profil local  $v(x)$ . En effet, grâce à la

mesure simultanée du couple  $\Gamma$  et de la vitesse locale  $v(x)$ , les relations suivantes :

$$\begin{cases} \sigma(x) = \frac{\Gamma}{2\pi H (R_1 + x)^2}, \\ \dot{\gamma}(x) = -(R_1 + x) \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{v(x)}{R_1 + x} \right), \end{cases} \quad (4.27)$$

permettent de tester la cohérence des mesures en passant des profils de vitesse  $v(x)$  à une courbe d'écoulement locale  $\sigma(\dot{\gamma})$ .

Au vu des incertitudes expérimentales sur les profils de vitesse (cf. fig. 4.12), il n'est pas raisonnable, comme dans le cas de l'émulsion étudiée précédemment, de dériver les profils pour obtenir un cisaillement local  $\dot{\gamma}(x)$ . Nous allons donc nous baser sur la courbe d'écoulement globale pour ajuster les données locales. La procédure est la suivante :

- à partir de la courbe d'écoulement globale et pour les mesures hors de la zone de coexistence, nous allons définir les lois rhéologiques  $\sigma(\dot{\gamma})$  pour les deux branches  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_B$ . Ces comportements rhéologiques seront extrapolés jusque dans la zone de coexistence afin d'obtenir une loi rhéologique locale (cf. fig. 4.15). Rappelons que les valeurs de  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ , *i.e.* les limites du plateau, sont extraites des profils de vitesse mesurés ;
- la mesure expérimentale de la contrainte  $\sigma^*$  permet de positionner le plateau de contrainte sur cette courbe d'écoulement « locale » (cf. fig. 4.15) ;
- grâce aux relations (4.27), nous calculerons les profils de vitesse  $v(x)$  et la courbe d'écoulement « globale » dans la géométrie de Couette.

### *Comportements rhéologiques des deux branches*

À partir de la courbe d'écoulement mesurée présentée sur la figure 4.11, on cherche les meilleurs ajustements des données pour  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_B$  à l'aide de lois rhéologiques simples. Nous choisissons pour la branche visqueuse le comportement  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  et pour la branche peu visqueuse :  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$  (fluide de Bingham). Les ajustements obtenus sont indiqués sur la courbe 4.16. Le choix de ces comportements est arbitraire : nous avons par exemple testé la loi  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  pour modéliser la branche peu visqueuse. Un tel choix conduit à des écarts négligeables par rapport au fluide de Bingham (cf. référence [135]).

Comme nous l'avons précédemment souligné dans le chapitre 1 (page 25), les valeurs  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$  indiquées par le rhéomètre correspondent à des valeurs moyennées des valeurs locales  $\sigma(x)$  et  $\dot{\gamma}(x)$ . Plus précisément, le rhéomètre mesure le couple  $\Gamma$  et la vitesse de rotation  $\Omega$

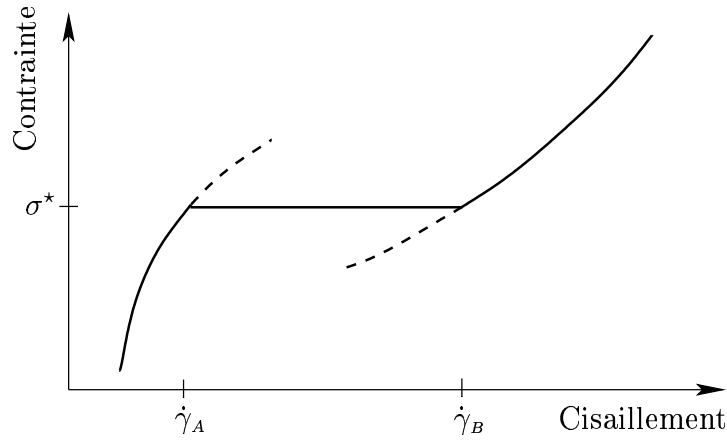


FIG. 4.15 – Courbe d'écoulement « locale », *i.e.*  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$  sont ici des quantités locales. Les courbes pointillées indiquent l'extrapolation des lois rhéologiques ajustées à partir de la rhéologie globale. La valeur  $\sigma^*$  est tirée des mesures de profils de vitesse.

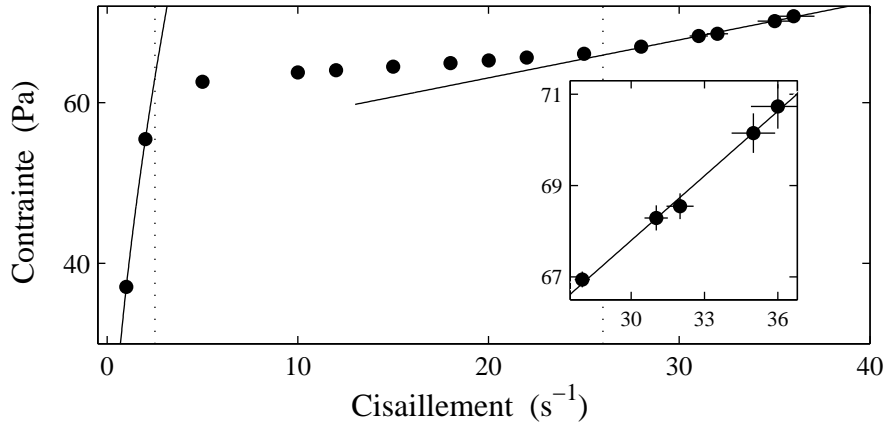


FIG. 4.16 – Courbe d'écoulement de la figure 4.11. Les lignes pointillées correspondant à  $\dot{\gamma}_A = 2.5$  et  $\dot{\gamma}_B = 26 \text{ s}^{-1}$  indiquent les limites du plateau. Les lignes continues sont des ajustements de la branche visqueuse par  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  avec ( $A = 37.07 \text{ Pa.s}^n$ ,  $n = 0.58$ ), et de la branche peu visqueuse par  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$  avec ( $\sigma_0 = 53.63 \text{ Pa}$ ,  $\eta = 0.47 \text{ Pa.s}$ ). L'insert est centré sur la branche peu visqueuse et permet de voir l'accord entre les données expérimentales et l'ajustement. Les barres d'erreur correspondent aux fluctuations temporelles de la contrainte et du cisaillement.

et indique alors :

$$\begin{cases} \langle \sigma \rangle = \frac{R_1^2 + R_2^2}{4\pi H R_1^2 R_2^2} \Gamma, \\ \langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Omega. \end{cases} \quad (4.28)$$



Ces valeurs correspondent à des approximations (d'ordre 2 en  $e/R_1$ ) des valeurs  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$  moyennées sur l'entrefer de la cellule. Il n'est pas évident a priori que :

$$\langle \sigma \rangle = f(\langle \dot{\gamma} \rangle) \iff \sigma = f(\dot{\gamma}), \quad (4.29)$$

où  $\sigma$  et  $\dot{\gamma}$  sont les quantités locales. Ainsi, les ajustements des données  $\langle \sigma \rangle$  vs.  $\langle \dot{\gamma} \rangle$  présentés sur la courbe 4.16 permettent-ils de trouver le comportement local  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}$ ? De brefs calculs présentés dans l'annexe C (page 241), permettent de justifier l'équivalence (4.29) à une très bonne approximation dans la géométrie utilisée. C'est pour cette raison que nous nous permettrons par la suite de confondre les lois rhéologiques déduites de la rhéologie globale et les lois rhéologiques locales.

### Profils de vitesse théoriques

Le comportement rhéologique local est donc le suivant :

- pour  $\sigma < \sigma^*$ , le fluide est décrit par  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  avec  $A = 37.07 \text{ Pa.s}^n$  et  $n = 0.58$  ;
- pour  $\sigma > \sigma^*$ , le fluide est décrit par  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$ , avec  $\eta = 0.47 \text{ Pa.s}$  et  $\sigma_0 = 53.63 \text{ Pa}$  ;
- à  $\sigma = \sigma^*$  se trouve une interface séparant l'état visqueux de l'état peu visqueux.

En géométrie de Couette, ce comportement local devient :

- si, pour tout point  $x$  de l'entrefer  $\sigma(x) < \sigma^*$ , alors l'écoulement est homogène et il suffit d'intégrer  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$  en coordonnées cylindriques pour obtenir le profil suivant :

$$v(x) = r \frac{n}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A} \right]^{1/n} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n} - 1 \right], \quad (4.30)$$

où  $r = R_1 + x$  ;

- si pour tout point  $x$  de l'entrefer  $\sigma(x) > \sigma^*$ , alors l'écoulement est encore homogène et correspond au fluide décrit par  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$ . La même intégration avec la condition de non-glissement mène à :

$$v(x) = r \frac{\Gamma}{4\pi H R_2^2 \eta} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^2 - 1 \right] + r \frac{\sigma_0}{\eta} \ln \left( \frac{r}{R_2} \right); \quad (4.31)$$

- le cas est plus complexe lorsqu'il existe une contrainte dans l'entrefer où l'interface peut exister. Dans ce cas, la position de cette dernière est donnée par la relation (4.24), page 156, que l'on peut écrire sous la forme :

$$\delta(\Gamma) = R_1 \left( \sqrt{\frac{\Gamma}{2\pi H R_1^2 \sigma^*}} - 1 \right). \quad (4.32)$$

Pour  $x > \delta$ ,  $\sigma(x) < \sigma^*$  et le fluide est décrit par  $\sigma = A \dot{\gamma}^n$ , alors que pour  $x < \delta$ ,  $\sigma(x) > \sigma^*$  et le comportement local est donné par  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$ . L'intégration dans la géométrie cylindrique de l'écoulement de Couette avec l'hypothèse de continuité du profil de vitesse, mène à :

$$v(x) = r \frac{n}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A} \right]^{1/n} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n} - 1 \right], \text{ pour } R_1 + \delta < r < R_2 \text{ et à :} \quad (4.33)$$

$$v(x) = r \frac{\Gamma}{4\pi H (R_1 + \delta)^2 \eta} \left[ \left( \frac{R_1 + \delta}{r} \right)^2 - 1 \right] + r \frac{\sigma_0}{\eta} \ln \left( \frac{r}{R_1 + \delta} \right)$$

$$+ r \frac{n}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A} \right]^{1/n} \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + \delta} \right)^{2/n} - 1 \right], \text{ pour } R_1 < r < R_1 + \delta.$$

Grâce à ces profils, on peut remonter au cisaillement  $\dot{\gamma}$  indiqué par le rhéomètre grâce à la relation (4.28), page 159 :

$$\dot{\gamma} \cong \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \frac{v(R_1)}{R_1}. \quad (4.34)$$

En faisant varier la contrainte appliquée  $\sigma$  et donc le couple induit  $\Gamma$ , on peut alors calculer les profils de vitesse correspondants et les cisaillements indiqués par le rhéomètre. On obtient alors la courbe en traits continus indiquée sur la figure 4.17. Les données expérimentales sont en très bon accord avec cette courbe phénoménologique. Soulignons que le seul paramètre libre de ce modèle est la contrainte  $\sigma^*$ . En effet, les valeurs de  $A$ ,  $n$ ,  $\sigma_0$  et  $\eta$  sont extraites de la courbe globale (cf. fig. 4.16). La légère pente du plateau est particulièrement bien reproduite par ces équations. Ce résultat suggère donc que la pente observée est liée uniquement à la géométrie de Couette utilisée<sup>6</sup>.

La figure 4.18 présente les profils de vitesse obtenus à partir des équations (4.30), (4.31) et (4.33), où les contraintes indiquées par le rhéomètre permettent de déduire les couples correspondants  $\Gamma$ . Les profils théoriques et les données expérimentales sont une fois de plus, en très bon accord. Ce résultat n'est en réalité pas surprenant : il permet seulement de vérifier que l'information globale  $\sigma(\dot{\gamma})$  est équivalente à la donnée locale  $v(x)$ .

Cependant, de légères différences sont présentes entre les données et les ajustements. Les profils de vitesse présentent en effet de faibles variations. Afin d'expliquer un tel désaccord, il faut se rappeler que les réponses rhéologiques ne sont pas strictement stationnaires. Si on inclut une faible fluctuation de contrainte  $\sigma$  dans l'équation (4.33), permettant de calculer les profils de vitesse dans le cas hétérogène, on s'attend à un déplacement de la bande.

---

<sup>6</sup> Dans certains cas, des modulations de concentration entre les structures induites par le cisaillement [140] peuvent aussi être à l'origine de plateaux « inclinés » [58].

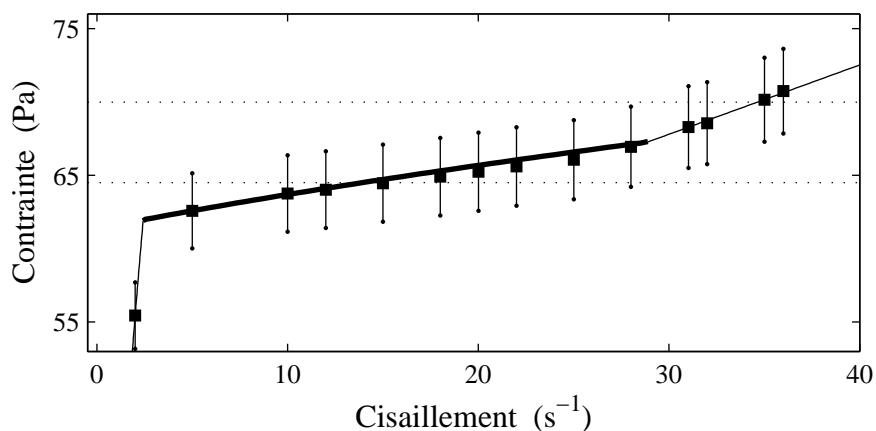


FIG. 4.17 – Courbe d'écoulement globale (■). Les traits continus indiquent la courbe d'écoulement déduite des profils de vitesse théoriques et la ligne épaisse, la zone d'écoulement inhomogène. Les traits verticaux *ne* sont *pas* des barres d'erreur, ils indiquent l'hétérogénéité de la contrainte dans la géométrie utilisée ( $e = 1$  et  $R_1 = 24$  mm). La valeur  $\sigma^* = 64.5$  Pa correspondant à la valeur de la contrainte au rotor pour l'entrée du plateau est indiquée par la ligne pointillée inférieure. La seconde ligne pointillée à  $\sigma^* (1 + e/R_1)^2$  correspond à la contrainte au rotor à partir de laquelle l'écoulement est de nouveau homogène (cf. équation (4.24)).

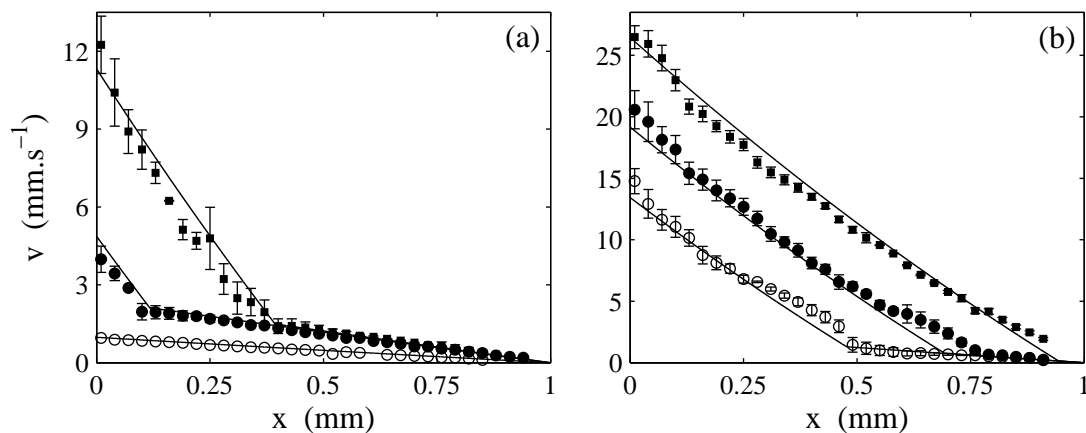


FIG. 4.18 – Profils de vitesse pour (a)  $\dot{\gamma} = 1$  (○),  $5$  (●), et  $12$   $\text{s}^{-1}$  (■). (b)  $\dot{\gamma} = 15$  (○),  $22$  (●), et  $28$   $\text{s}^{-1}$  (■). Les lignes continues sont les profils tirés des équations (4.30), (4.31) et (4.33) avec comme unique paramètre d'ajustement  $\sigma^* = 64.5$  Pa.

La figure 4.19 présente deux profils de vitesse mesurés à  $\dot{\gamma} = 22$  et  $\dot{\gamma} = 28$   $\text{s}^{-1}$ , ainsi que les profils de vitesse théoriques correspondants. Afin de rendre compte des fluctuations

temporelles, la contrainte  $\sigma$  a été variée de  $\pm 0.5\%$  et les profils théoriques ont été calculés (traits pointillés). La bande s'est déplacée de façon significative : une très faible fluctuation de  $\sigma$  entraîne de fortes fluctuations locales du champ de vitesse.

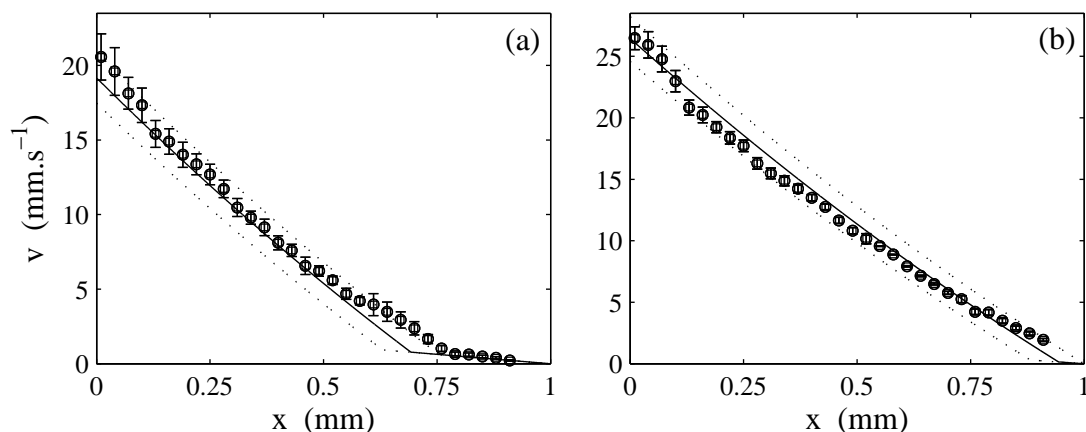


FIG. 4.19 – (a) Profil de vitesse pour  $\dot{\gamma} = 22 \text{ s}^{-1}$ . La ligne continue est le profil théorique calculé par l'équation (4.33), pour une contrainte  $\sigma$  extraite de la rhéologie globale. Les traits pointillés indiquent les profils théoriques pour deux contraintes légèrement différentes  $\sigma \pm 0.5\%$ . (b) Idem pour  $\dot{\gamma} = 28 \text{ s}^{-1}$ .

On peut alors interpréter les variations des profils expérimentaux grâce à ces fluctuations. En effet, la mesure du profil de vitesse n'est pas instantanée : chaque point correspond à un temps d'accumulation de l'ordre de 2–3 s. La durée nécessaire pour obtenir un profil complet est environ 2 min. Les fluctuations temporelles globales de la contrainte et du cisaillement sont bien plus rapides, on mesure en effet une période moyenne de l'ordre de la dizaine de secondes. Expérimentalement on obtient alors des profils de vitesse présentant des variations liées aux fluctuations. Un examen attentif des profils de vitesse révèle que ces variations ont lieu sur 4–5 points de l'entrefer, *i.e.* les profils semblent « homogène » à des échelles inférieures (cf. fig. 4.19). Le temps caractéristique ( $\simeq 10 \text{ s}$ ) des fluctuations est bien en accord avec cette échelle de variation car chaque point de mesure correspond à un temps de l'ordre de 2 à 3 s. Nous reviendrons sur ce point particulier dans le chapitre suivant.

#### 4.2.4 Discussions et perspectives

Les résultats de cette section sont évidemment préliminaires. Nous avons étudié un *unique* système à une *unique* température. Cette étude a montré que pour le système dilué

de CPCl/NaSal dans de l'eau salée ( $\phi = 6\%$ ), l'image de la nucléation d'une bande et la croissance de cette dernière le long du plateau de contrainte est valide. Les études futures se focaliseront sur l'étude d'autres systèmes, tels que CTAB/D<sub>2</sub>O, pour lesquels il existe une polémique [59]. Nous espérons alors pouvoir confirmer (ou infirmer) les résultats de Callaghan *et al.* quant à la croissance d'un gel nématique.

Un autre point particulièrement pertinent serait d'étudier les fluctuations de vitesse. Notre montage permet en effet d'acquérir, en un point de l'entrefer, une série temporelle de la vitesse locale. Une question intéressante serait de savoir si l'on peut mettre en évidence un mouvement de la bande au sein de la cellule. Une autre question reste sans réponse, il s'agit de l'instabilité ayant lieu à haut cisaillement. Quelle est son origine ? Qu'en est-il du couplage avec la structure induite [60, 153] ?

Au-delà des systèmes de micelles géantes, un grand nombre de fluides complexes présentent des comportements similaires, *i.e.* l'existence d'un plateau sur la courbe d'écoulement et la possibilité que le fluide se sépare en plusieurs bandes macroscopiques. C'est notamment le cas pour les systèmes lyotropes : transition lamelles-ognons dans les phases lamellaires [133], transition de texture dans les phases hexagonales [126], ou encore dans les phases cubiques [57]. Cette phénoménologie a aussi été observée dans les matériaux mous vitreux comme précédemment souligné dans ce chapitre [41, 46, 48, 118]. Par ailleurs, certains systèmes présentent aussi un plateau sur la courbe d'écoulement, non pas horizontal, mais vertical [22, 43, 82]. Dans ces cas aussi, des phénomènes de structuration spatiales ont été observés.

Parmi ces exemples, et grâce à des techniques aussi diverses que l'imagerie par résonance magnétique ou encore la diffusion de neutrons, des bandes de structures différentes ont été plusieurs fois identifiées. Ces dernières peuvent coexister dans la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$  (on parle alors de « gradient-banding »), ou dans la direction de la vortacité (on parle alors de « vorticity-banding »). Dans tous ces cas, il semble désormais clair qu'une approche phénoménologique universelle devrait permettre de rendre compte de l'existence de ces bandes. C'est notamment les approches de Olmsted *et al.* qui ont apporté les « règles de sélection » à partir desquelles on peut déduire l'orientation des bandes à la seule lecture de la courbe d'écoulement [66, 109]. Grâce à certaines classes de modèles phénoménologiques (*e.g.* le modèle de Johnson-Segalman), ces mêmes auteurs ont pu reproduire une grande diversité de mesures expérimentales, notamment en ce qui concerne les dynamiques transitoires [67, 124] et l'effet de la géométrie d'écoulement [123]. Dans ces modèles, le critère de sélection de la contrainte  $\sigma^*$  pour laquelle l'interface entre les deux phases est stable est relié à la présence de termes faisant intervenir des dérivées spatiales [92, 112, 157]. Ces termes permettent par exemple de décrire l'interface entre les

deux structures, ou encore de modéliser la diffusion de la contrainte [157]. Notons aussi qu'il existe d'autres approches phénoménologiques permettant eux aussi, de modéliser ces comportements en écrivant directement une équation décrivant la dynamique de l'interface entre deux structures différentes dans un écoulement de cisaillement [4].

Le travail réalisé dans cette section montre que la vélocimétrie par diffusion dynamique de la lumière est un outil suffisamment résolu pour mesurer le champ de vitesse dans ces systèmes. Nous pensons que ce montage permet de répondre à diverses questions quant à la structuration spatiale de l'écoulement de ces fluides. Dans le prochain chapitre, nous étudions la transition de feuilletage décrite précédemment et nous montrons que ce système présente lui aussi, des écoulements inhomogènes.



# Chapitre 5

## Étude locale de la transition de feuilletage : vers une approche locale du rhéochaos

Ce dernier chapitre concerne l'étude de la transition de feuilletage à l'aide du montage de diffusion dynamique hétérodyne décrit dans le chapitre 3. La transition de feuilletage présente différents régimes dynamiques du cisaillement lorsque la contrainte est imposée dans un écoulement de Couette. Ces dynamiques très lentes sont caractérisées par des temps de l'ordre de 600 s et ne correspondent pas simplement à une instabilité élastique classique. En effet, la structure du fluide oscille en phase avec le cisaillement mesuré. Au chapitre 2, ces comportements temporels ont été analysés à l'aide des outils de la théorie des systèmes dynamiques. Il ressort de cette étude que les degrés de liberté spatiaux jouent probablement un rôle important dans la direction du gradient de vitesse  $\nabla v$ . Le montage de vélocimétrie développé au chapitre 3 permet de sonder localement la rhéologie le long de la direction  $\nabla v$ . La résolution de ce dernier nous a permis d'identifier le glissement et les discontinuités de cisaillement dans certains types d'écoulements de fluides complexes (cf. chapitre 4). Nous montrons maintenant que ce montage permet de tester l'hypothèse d'une structuration spatiale lors de la transition de feuilletage.

Dans les sections qui suivent, nous allons réitérer les expériences du chapitre 2, tout en sondant localement le profil de vitesse. Nous verrons alors que l'hypothèse d'une complexité spatio-temporelle était pleinement justifiée.



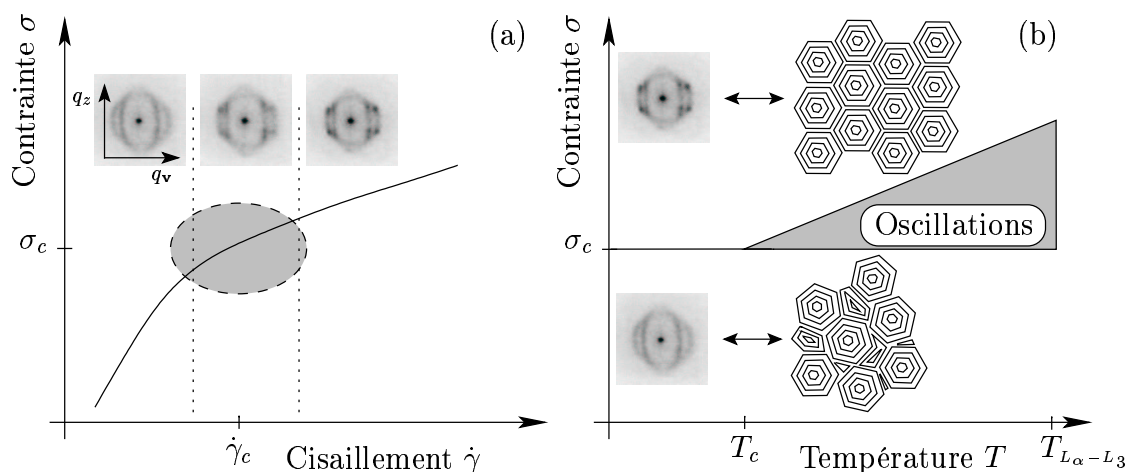


FIG. 5.1 – (a) Courbe d'écoulement classique au voisinage de la transition de feuillette. La zone grisée correspond aux comportements dynamiques du cisaillement observés pour des températures  $T \geq T_c = 27^\circ\text{C}$  à contrainte imposée. (b) Diagramme d'orientation  $\sigma$  vs.  $T$ . Pour  $T \geq T_c$ , le cisaillement présente des oscillations au voisinage de la transition. La transition entre la phase lamellaire et la phase éponge a lieu à  $35^\circ\text{C}$  dans le système étudié.

## 5.1 Étude locale des états stationnaires

Avant d'étudier la complexité temporelle du cisaillement décrite dans le chapitre 2, il convient de caractériser quantitativement la rhéologie *stationnaire* de ce système. C'est pourquoi cette section présente différents résultats obtenus sur des états *stationnaires* au voisinage de la transition de feuillette. Comme expliqué au chapitre 2, les réponses temporelles globales dépendent fortement de la température et de la variable rhéologique imposée. Ces résultats sont résumés dans le tableau 5.1 et reportés sur la figure 5.1.

	$\sigma$ imposé	$\dot{\gamma}$ imposé
$T < T_c$	stationnaire	stationnaire
$T \geq T_c$	<b>oscillations</b>	stationnaire

TAB. 5.1 – Réponses temporelles au voisinage de la transition de feuillette en fonction de la température  $T$  et de la variable rhéologique imposée,  $T_c = 27^\circ\text{C}$ .

Il existe donc trois « chemins » stationnaires pour étudier la transition de feuillette : (i) à cisaillement imposé et à  $T < T_c$ ; (ii) à cisaillement imposé et à  $T \geq T_c$ ; (iii) enfin à contrainte imposée et à  $T < T_c$ . Les résultats présentés dans les paragraphes suivants

concernent des expériences de rhéologie stationnaire effectuées à *cisaillement imposé* à  $T = 26^\circ\text{C}$ , puis à  $T = 30^\circ\text{C}$ . Dans ces expériences, la vitesse de rotation  $\Omega$  de la cellule de Couette et donc la vitesse du rotor  $v_0$ , est imposée grâce à une boucle de rétroaction informatique contrôlant le couple  $\Gamma$  appliqué. Le temps caractéristique de cette boucle de rétroaction est très petit devant les temps caractéristiques des fluctuations du système étudié.

### 5.1.1 Rhéologie et vélocimétrie à $T = 26^\circ\text{C}$ et à cisaillement imposé

#### Comportement rhéologique et couplage structure-écoulement

Le protocole rhéologique utilisé est le suivant :

- l'entrefer utilisé a une épaisseur  $e = 1$  mm et la température est fixée à  $26^\circ\text{C}$  ;
- un premier palier à contrainte imposée  $\sigma = 10.5$  Pa est appliqué pendant  $\delta t = 13000$  s ;
- on applique ensuite différents paliers de cisaillement ;
- l'incrément entre deux paliers de cisaillement est  $\delta\dot{\gamma} \simeq 5$  s $^{-1}$  ;
- la durée de chaque palier est  $\delta t \simeq 3600$  s.

Le premier palier à contrainte imposée ( $\sigma = 10.5$  Pa,  $\delta t = 13000$  s) permet d'obtenir un état initial parfaitement stationnaire composé uniquement d'ignons de taille fixée dans un état désordonné. Sans ce premier palier, les expériences sont non-reproductibles. L'incrément  $\delta\dot{\gamma}$  et la durée  $\delta t$  sont ensuite choisis de sorte que les expériences réalisées soient suffisamment reproductibles. La figure 5.2 présente les réponses temporelles  $\sigma(t)$  ainsi que les paliers de cisaillement appliqués. La boucle de rétroaction informatique du rhéomètre permet de maintenir un cisaillement constant sans aucune fluctuation temporelle significative ( $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma} \simeq 0.1\%$ ). Après un transitoire de quelques dizaines de minutes, la contrainte relaxe vers un état stationnaire, *i.e.* caractérisé par de très faibles fluctuations temporelles  $\delta\sigma/\sigma \simeq 1-5\%$ . La moyenne temporelle de cet état quasiment stationnaire (cf. lignes pointillées sur la figure 5.2.a) nous permet alors de construire la courbe d'écoulement de la figure 5.3.

Les figures de diffraction obtenues simultanément à la courbe d'écoulement de la figure 5.3 sont présentées pour différents cisaillements sur les figures 5.3.a-f. Rappelons que ces images sont obtenues par digitalisation des figures de diffraction obtenues dans le plan  $(q_v, q_z)$  et correspondent donc à une mesure de la structure du fluide, *intégrée* le long du gradient de vitesse  $\nabla v$  (cf. fig. 2.3, page 54). Rappelons aussi que les images obtenues présentent *deux* figures de diffraction, car le faisceau laser traverse deux fois l'échantillon. Pour des cisaillements  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_1 \simeq 10$  s $^{-1}$ , la figure de diffraction est un anneau isotrope indiquant

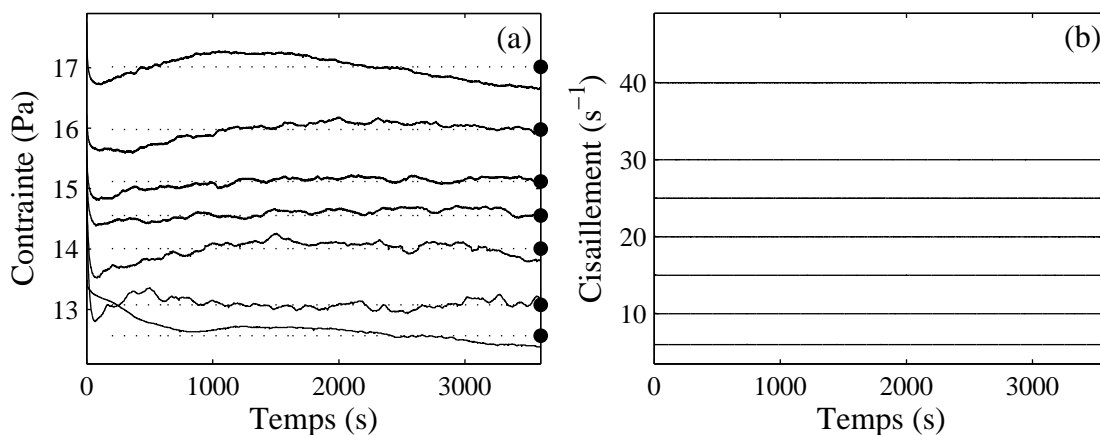


FIG. 5.2 –  $T = 26^\circ\text{C}$ . (a) Réponses temporelles  $\sigma(t)$ . Les lignes pointillées terminées par des points indiquent les moyennes de  $\sigma(t)$  à partir desquelles la courbe d'écoulement de la figure 5.3 est construite. (b) Paliers de cisaillements appliqués.

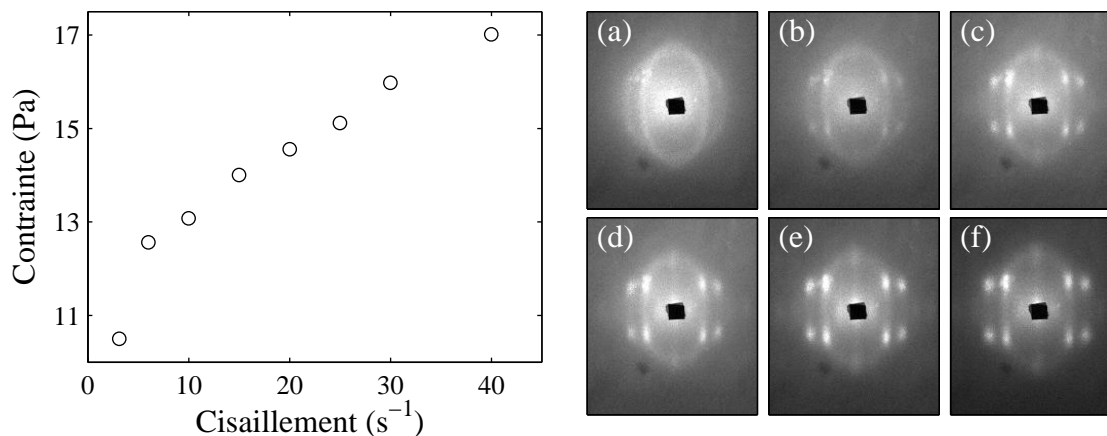


FIG. 5.3 – Courbe d'écoulement stationnaire obtenue à  $T = 26^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. (a)–(f) Figures de diffraction obtenues simultanément à la courbe d'écoulement. Les cisaillements sont les suivants : (a)  $\dot{\gamma} = 6$ , (b) 10, (c) 15, (d) 20, (e) 25 et (f)  $30 \text{ s}^{-1}$ .

que la structure d'ognon est désordonnée. À  $\dot{\gamma} \simeq \dot{\gamma}_1 \simeq 10 \text{ s}^{-1}$ , des pics de faible intensité apparaissent sur l'anneau : c'est le seuil de la transition de feuilletage, les ognons sont alors confinés sur des plans orientés et orthogonaux au gradient de vitesse  $\nabla v$ . Lorsque le cisaillement est augmenté, les pics deviennent de plus en plus contrastés. La transition de feuilletage semble donc « continue » car le contraste des pics croît continûment lorsque le cisaillement est augmenté. À  $\dot{\gamma} \simeq \dot{\gamma}_2 \simeq 20 \text{ s}^{-1}$ , le contraste des pics est maximal sur

l'anneau.

Par ailleurs, la courbe d'écoulement de la figure 5.3 ne présente aucune discontinuité évidente : il est difficile de déterminer les différentes régions de structures d'ogons à la seule lecture de cette courbe. Notons que la transition de feuilletage est fortement rhéofluidifiante, la viscosité chute de  $\eta = 1.3$  à  $\eta = 0.4$  Pa.s, lorsque  $\dot{\gamma}$  est augmenté de 10 à 40 s<sup>-1</sup>.

### Vélocimétrie locale

Les profils de vitesse sont obtenus grâce au montage de diffusion dynamique décrit dans le chapitre 3. L'indice optique de la phase lamellaire est  $n = 1.35$ . Nous avons préalablement réalisé une calibration à l'aide d'un fluide newtonien de même indice optique (suspension diluée de Latex dans un mélange eau-glycérol), dans le même entrefer d'épaisseur  $e = 1$  mm. Cette calibration permet d'obtenir les paramètres  $f_x$ ,  $f_\theta$ ,  $x_r$  et  $x_s$  nécessaires pour passer de la mesure des fonctions de corrélation aux profils de vitesse (cf. chapitre 3). La table mécanique sur laquelle est posé le rhéomètre est déplacée par pas de 30  $\mu\text{m}$  dans la direction du gradient de vitesse. Aucun diffuseur n'a été ajouté aux phases lamellaires étudiées. En effet, ces dernières diffusent suffisamment la lumière pour assurer une bonne convergence statistique des fonctions de corrélation en quelques secondes. Chaque fonction de corrélation est donc accumulée sur un temps de 3 à 5 s. Le profil de vitesse complet est obtenu en 3 min environ.

Pour des cisaillements  $\dot{\gamma} \ll \dot{\gamma}_1$  et  $\dot{\gamma} \gg \dot{\gamma}_2$ , le montage permet d'obtenir des profils de vitesse stationnaires particulièrement bien définis. De façon surprenante, au voisinage de la transition de feuilletage *i.e.* pour  $\dot{\gamma} \gtrsim \dot{\gamma}_1$ , bien que la rhéologie globale soit stationnaire ( $\partial_t \sigma \simeq 0$  et  $\partial_t \dot{\gamma} = 0$ ), la vitesse locale présente des fluctuations temporelles dont l'amplitude peut atteindre 20%. Comme nous le verrons dans la section 5.2, les périodes de ces fluctuations sont de l'ordre de 100–1000 s. Cette complexité temporelle nous empêche d'obtenir une *image* instantanée de l'écoulement car les périodes de ces fluctuations correspondent approximativement au temps nécessaire pour mesurer un profil de vitesse.

Nous avons donc décidé de nous intéresser dans un premier temps à la moyenne temporelle des vitesses locales. Les fluctuations du champ de vitesse feront l'objet de la section suivante. Afin d'obtenir des informations sur les moyennes temporelles de l'écoulement, différents profils de vitesse sont mesurés au même cisaillement, puis moyennés. Au voisinage de la transition de feuilletage, il faut environ une quinzaine de profils de vitesse pour obtenir une bonne convergence statistique du profil. La déviation standard de ces mesures permet alors d'estimer les amplitudes locales des fluctuations de la vitesse.

La figure 5.4 présente les profils de vitesse obtenus simultanément à la courbe d'écoule-

ment de la figure 5.3 à cisaillement imposé et à  $T = 26^\circ\text{C}$ . Chaque mesure est une moyenne sur plusieurs profils de vitesse consécutifs (jusqu'à 20) au même cisaillement imposé. On

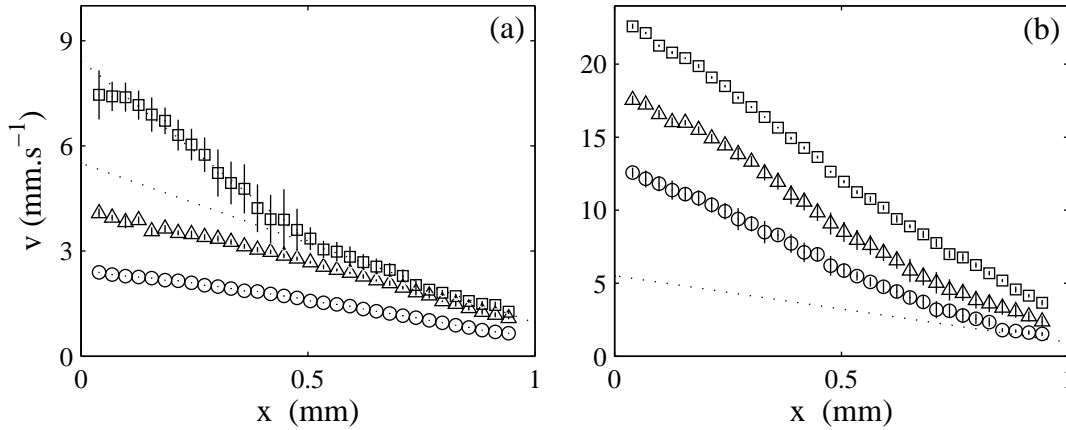


FIG. 5.4 – Profils de vitesse moyens obtenus simultanément à la courbe d'écoulement de la figure 5.3 à  $T = 26^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. Les barres d'erreurs sont les déviations standard des différentes mesures et traduisent les fluctuations locales de la vitesse. (a)  $\dot{\gamma} = 3$  ( $\circ$ ),  $6$  ( $\Delta$ ) et  $10$   $\text{s}^{-1}$  ( $\square$ ). La ligne pointillée est un guide pour visualiser la bande cisailée et correspond à un cisaillement local de  $10.3$   $\text{s}^{-1}$ . (b)  $\dot{\gamma} = 15$  ( $\circ$ ),  $20$  ( $\Delta$ ) et  $25$   $\text{s}^{-1}$  ( $\square$ ). La courbe pointillée correspond au profil de vitesse d'un fluide newtonien cisailé à  $\dot{\gamma}_A \simeq 4.6$   $\text{s}^{-1}$  et qui glisse au stator comme la phase lamellaire à  $\dot{\gamma} = 10$   $\text{s}^{-1}$ .

peut résumer les résultats de la façon suivante :

- pour  $\dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_1 \simeq 6$   $\text{s}^{-1}$ , les profils de vitesse sont quasiment linéaires. On observe aussi un glissement significatif : la vitesse au rotor ne coïncide pas avec celle indiquée par le rhéomètre et les profils de vitesse ne s'annulent pas au stator. Par ailleurs, les profils de vitesse sont quasiment stationnaires : la vitesse locale ne fluctue pas ;
- pour  $\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2 \simeq 20$   $\text{s}^{-1}$ , les profils de vitesse présentent deux bandes de cisaillements locaux distincts  $\dot{\gamma}_A \simeq 4.6$   $\text{s}^{-1}$  et  $\dot{\gamma}_B$ . Comme pour la solution de micelles géantes précédemment étudiée, la bande cisailée à  $\dot{\gamma}_B$  croît lorsque le cisaillement appliqué est augmenté, jusqu'à envahir la totalité de l'entrefer à  $\dot{\gamma} \simeq \dot{\gamma}_2$ . À  $\dot{\gamma} = 10$   $\text{s}^{-1}$ , le cisaillement dans la bande fortement cisailée est  $\dot{\gamma}_B \simeq 10.3$   $\text{s}^{-1}$ . Cette valeur varie légèrement le long de la zone de coexistence entre les deux bandes. Dans cette gamme de cisaillements, la vitesse locale fluctue de façon significative. En effet, l'amplitude de ces fluctuations peut atteindre plus de 20%. Par ailleurs, ces fluctuations sont localisées : leur amplitude est grande à l'interface séparant les deux bandes. Soulignons

- pour finir que le fluide glisse toujours aux parois de la cellule de Couette ;
- pour des cisaillements  $\dot{\gamma} \geq \dot{\gamma}_2$ , les profils sont à nouveau homogènes et stationnaires : la vitesse locale ne fluctue quasiment plus. Par ailleurs, un glissement significatif est une fois de plus décelé.

### 5.1.2 Rhéologie et vélocimétrie à $T = 30^\circ\text{C}$ et à cisaillement imposé

#### Comportement rhéologique et couplage structure-écoulement

Nous avons réitéré les expériences précédentes à une température supérieure  $T = 30^\circ\text{C}$  et dans le même entrefer d'épaisseur  $e = 1$  mm. Le protocole rhéologique est légèrement différent : un premier palier à cisaillement imposé  $\dot{\gamma} = 5$  s<sup>-1</sup> est appliqué pendant  $\delta t = 7200$  s. Ce palier permet de débiter l'expérience à partir d'un état initial parfaitement stationnaire d'ognons désordonnés ayant une taille donnée. L'incrément de cisaillement  $\delta\dot{\gamma}$  est ensuite adapté entre 2.5 et 5 s<sup>-1</sup> le long de la courbe d'écoulement, afin de pouvoir résoudre avec une plus grande précision la zone de coexistence entre les deux bandes de cisaillement. Le temps d'asymptotisation est  $\delta t \simeq 5400$  s pour ces paliers de cisaillements. Ce protocole permet encore une fois, la définition d'un état rhéologique quasiment stationnaire, *i.e.*  $\partial_t \sigma \simeq 0$ . En effet, la figure 5.5 montre clairement que les réponses  $\sigma(t)$ , bien que faiblement bruitée, nous permettent de définir un état stationnaire (cf. lignes pointillées, fig. 5.5.a). Une fois de plus, les fluctuations temporelles du cisaillement appliqué sont négligeables ( $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma} = 0.1\%$ ).

La courbe d'écoulement correspondante est présentée sur la figure 5.6. Comme précédemment, cette dernière ne présente pas de discontinuité prononcée lors de la transition de feuilletage. Les figures de diffraction obtenues simultanément à cette courbe d'écoulement sont présentées pour différents cisaillements sur les figures 5.6.a-f. Pour  $\dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_1 \simeq 15$  s<sup>-1</sup>, les figures de diffraction sont des anneaux isotropes : il n'y a aucune corrélation spatiale entre les oignons. À  $\dot{\gamma} \simeq \dot{\gamma}_1$ , de faibles pics apparaissent sur l'anneau. Comme à  $T = 26^\circ\text{C}$ , la transition de feuilletage semble « continue » car le contraste des pics sur l'anneau croît progressivement lorsque le cisaillement imposé est augmenté au-delà de  $\dot{\gamma}_1$ .

#### Vélocimétrie locale

Les profils de vitesse mesurés simultanément à cette courbe d'écoulement sont présentés sur la figure 5.7. Comme pour  $T = 26^\circ\text{C}$ , la phénoménologie rencontrée est la suivante :

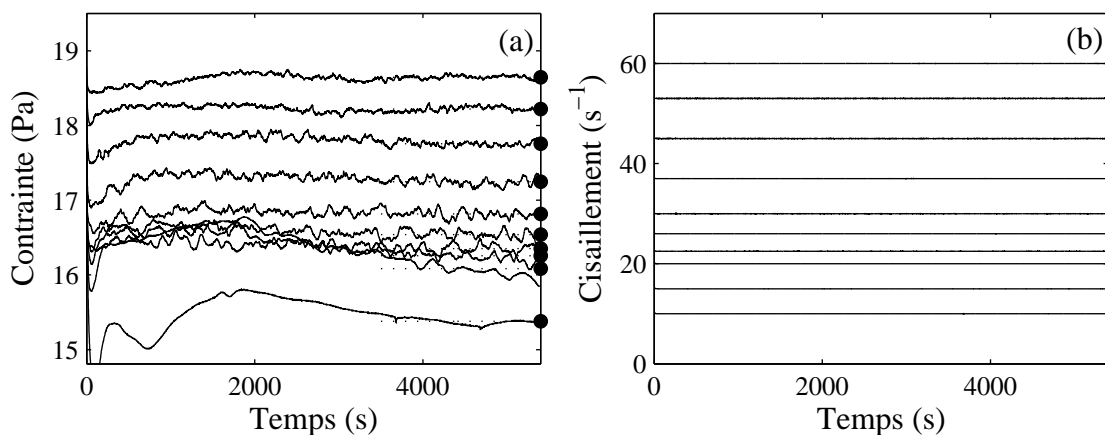


FIG. 5.5 –  $T = 30^\circ\text{C}$ . (a) Réponses temporelles  $\sigma(t)$ . Les lignes pointillées terminées par des points indiquent les moyennes de  $\sigma(t)$  à partir desquelles la courbe d'écoulement de la figure 5.6 est construite. (b) Paliers de cisaillements appliqués.

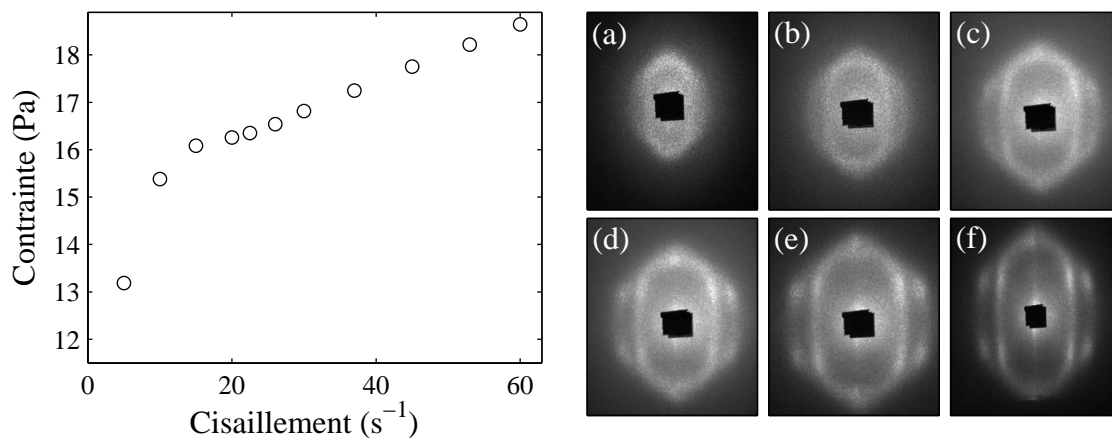


FIG. 5.6 – Courbe d'écoulement stationnaire obtenue à  $T = 30^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. (a)–(f) Figures de diffraction obtenues simultanément à la courbe d'écoulement pour les cisaillements suivants : (a)  $\dot{\gamma} = 10$ , (b) 15, (c) 22.5, (d) 26, (e) 30 et (f)  $45 \text{ s}^{-1}$ . Pour cette dernière image, le champ de la caméra a été modifié. La taille de l'anneau sur la figure (f) ne peut donc être comparée aux autres cisaillements (a)–(e).

- pour  $\dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_1 \simeq 15 \text{ s}^{-1}$ , les profils de vitesse sont linéaires dans l'entrefer de la cellule de Couette et sont quasiment stationnaires : la vitesse locale ne fluctue pas. De plus, le fluide glisse de façon significative aux parois ;
- pour  $\dot{\gamma}_1 \leq \dot{\gamma} \leq \dot{\gamma}_2 \simeq 37 \text{ s}^{-1}$ , les profils de vitesse présentent deux bandes de cisaille-

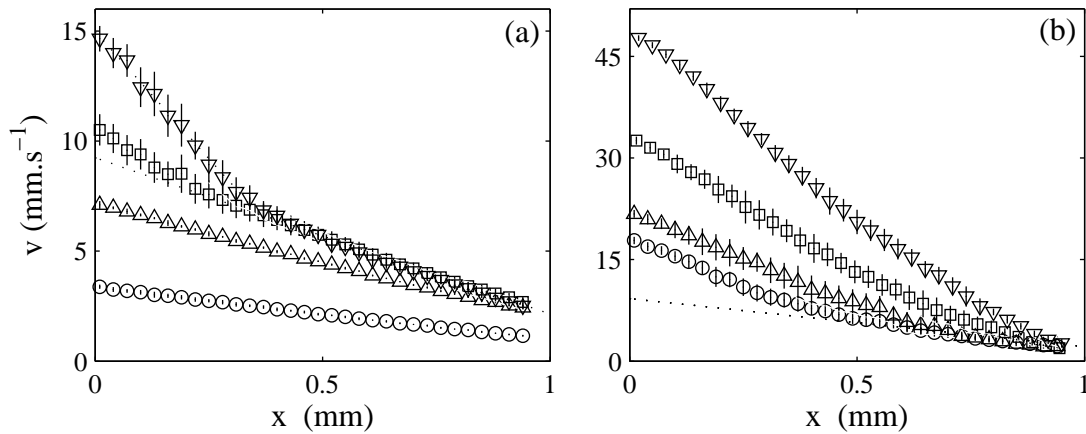


FIG. 5.7 – Profils de vitesse moyens obtenus simultanément à la courbe d'écoulement de la figure 5.6 à  $T = 30^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. Les barres d'erreurs sont les déviations standard des différentes mesures et correspondent aux fluctuations locales de la vitesse. (a)  $\dot{\gamma} = 5$  ( $\circ$ ),  $10$  ( $\triangle$ ),  $15$  ( $\square$ ) et  $20$   $\text{s}^{-1}$  ( $\nabla$ ). La ligne pointillée est un guide pour visualiser la bande cisailée et correspond à un cisaillement local de  $23$   $\text{s}^{-1}$ . (b)  $\dot{\gamma} = 22.5$  ( $\circ$ ),  $26$  ( $\triangle$ ),  $37$  ( $\square$ ) et  $53$   $\text{s}^{-1}$  ( $\nabla$ ). La courbe pointillée correspond au profil de vitesse d'un fluide newtonien cisailé à  $\dot{\gamma}_A \simeq 7.1$   $\text{s}^{-1}$  et qui glisse au stator comme la phase lamellaire à  $\dot{\gamma} = 15$   $\text{s}^{-1}$ .

ments distincts  $\dot{\gamma}_A \simeq 7.1$   $\text{s}^{-1}$  et  $\dot{\gamma}_B$ . La bande cisailée à  $\dot{\gamma}_B$  croît lorsque le cisaillement appliqué est augmenté et envahit l'entrefer à  $\dot{\gamma} \simeq \dot{\gamma}_2$ . À  $\dot{\gamma} = 20$   $\text{s}^{-1}$ , le cisaillement dans la bande fortement cisailée est  $\dot{\gamma}_B \simeq 23$   $\text{s}^{-1}$ . Cette valeur reste approximativement constante dans la zone de coexistence. La vitesse locale fluctue une fois de plus de façon spectaculaire. Les fluctuations sont localisées et atteignent 20% à l'interface entre les deux bandes. La vitesse locale fluctue peu dans la bande faiblement cisailée ;

- pour  $\dot{\gamma} \geq \dot{\gamma}_2$ , les profils de vitesse sont à nouveau homogènes et stationnaires. Notons cependant que le fluide glisse toujours aux parois de la cellule de Couette.

### 5.1.3 Un scénario de « shear-banding » lors de la transition de feuilletage

Les résultats précédents indiquent sans aucune ambiguïté la présence du phénomène de « shear-banding » dans la transition de feuilletage à cisaillement imposé et pour les températures étudiées ( $T = 26^\circ\text{C}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$ ). On peut donner pour cette transition l'image simple de la nucléation d'une bande fortement cisailée qui croît lorsque  $\dot{\gamma}$  est aug-



menté. Par ailleurs, grâce aux figures de diffraction mesurées simultanément aux profils de vitesse, on peut penser que la bande fortement cisillée correspond à la structure ordonnée d'ognons. Le scénario observé est alors celui présenté schématiquement sur la figure 5.8 :

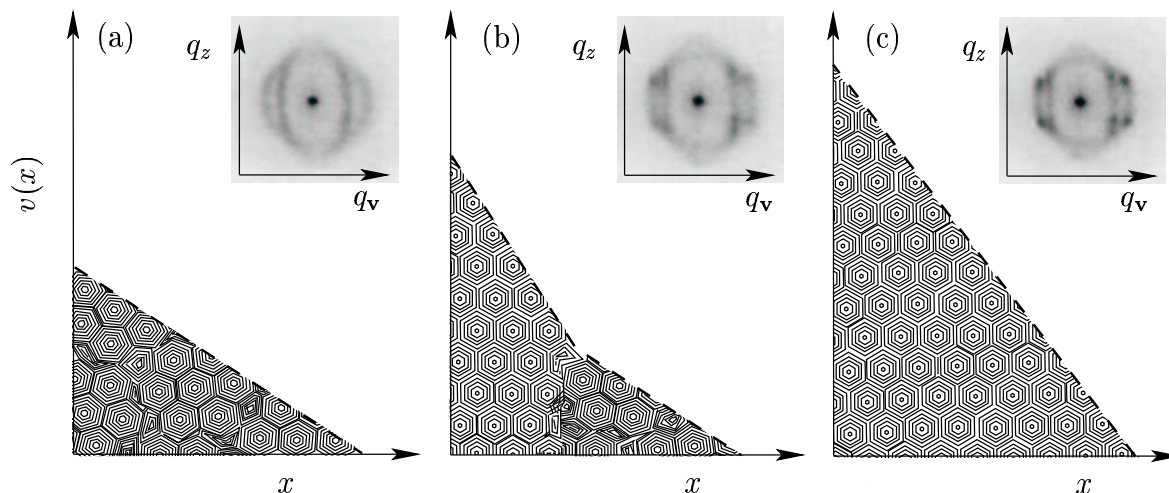


FIG. 5.8 – Résumé schématique des expériences effectuées à  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$  à cisaillement imposé : (a) pour  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_1$ , (b) pour  $\dot{\gamma}_1 < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_2$  et (c) pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_2$ .

- pour  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_1$ , les oignons sont tous dans l'état isotrope et le profil de vitesse est homogène et stationnaire ;
- pour  $\dot{\gamma} \simeq \dot{\gamma}_1$  des pics de faible intensité apparaissent sur l'anneau. L'apparition de ces pics est corrélée à la nucléation au rotor d'une bande fortement cisillée : cette bande correspond donc très certainement à la structure feuilletée ;
- lorsque le cisaillement imposé est augmenté au-delà de  $\dot{\gamma}_1$ , le contraste des pics sur l'anneau croît ainsi que l'épaisseur de la bande fortement cisillée ;
- pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_2$ , le contraste des pics sur l'anneau est maximal, la structure des oignons est entièrement feuilletée dans l'entrefer et les profils de vitesse sont à nouveau homogènes et stationnaires.

Nos expériences, combinant simultanément une mesure rhéologique, une mesure du profil de vitesse et une mesure de la structure du fluide, permettent de conclure que la transition de feuilletage est qualitativement semblable à celle que l'on attend dans la phénoménologie du shear-banding. La transition de feuilletage est donc une transition discontinue entre deux états de structures différentes. Lors de la transition, il y a nucléation et croissance d'une bande de fort cisaillement correspondant à la structure feuilletée, dans une structure désordonnée plus visqueuse. Le profil est donc inhomogène au voisinage de la transition.

Rappelons cependant que les images de diffraction mesurées correspondent à une mesure de la structure du fluide *intégrée* le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ . Pour affirmer sans aucun doute possible le scénario de la figure 5.8, il faudrait en toute rigueur pouvoir sonder la structure des oignons *localement* le long de  $\nabla v$ .

À ce stade, de nombreuses questions restent sans réponses :

- quelle est la nature rhéologique des deux organisations d’oignons ?
- contrairement au cas des micelles géantes (cf. chapitre 4), aucun plateau ou autre discontinuité prononcée n’est présent sur les courbes d’écoulement ;
- un glissement significatif est mesuré systématiquement dans nos expériences. Peut-on « corriger » les courbes d’écoulement globales de cette contribution liée au glissement et faire apparaître un plateau de contrainte ? Quelle est la variation du glissement en fonction de la contrainte locale ?
- peut-on à partir de la courbe d’écoulement globale  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}$ , remonter au profil de vitesse  $v(x)$  comme dans le cas des micelles géantes préalablement étudié ?
- quelle est l’origine des fluctuations temporelles de la vitesse locale ?

Les sections suivantes présentent des éléments de réponses à ces différentes questions. Nous verrons dans un premier temps que l’on peut ôter de la rhéologie globale les contributions liées au glissement et ainsi passer des données indiquées par le rhéomètre  $(\sigma, \dot{\gamma})$  à une courbe d’écoulement effective  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$ , comme dans le cas de l’émulsion étudiée au chapitre 4 (cf. page 140). De ces données corrigées, on peut aussi calculer les profils de vitesse  $v(x)$  en supposant, comme pour le cas des micelles géantes (cf. chapitre 4, page 156), que l’interface entre les deux bandes cisillées est stable à une contrainte fixe  $\sigma^*$ . Ce modèle permettant le passage des données « globales » aux données « locales » autorise théoriquement l’existence d’écoulements inhomogènes à contrainte imposée. Nous mettrons en évidence de tels écoulements inhomogènes à contrainte imposée dans le cas où les réponses temporelles sont stationnaires, *i.e.*  $T < T_c$ . La section 5.2 concernera l’étude des fluctuations de vitesse observées. Nous montrerons alors que ces fluctuations sont probablement liées au mouvement de la bande fortement cisillée au sein de l’entrefer. Enfin nous terminerons ce chapitre en présentant des mesures ponctuelles de la vitesse en fonction du temps et en différents points de l’entrefer et dans la zone de température où le cisaillement présente des oscillations, *i.e.* à  $T = 30^\circ\text{C}$  et à contrainte imposée.

### 5.1.4 Les oignons glissent

Comme pour l’émulsion préalablement étudiée (cf. chapitre 4), le glissement observé est probablement lié à l’existence aux parois, de films fortement cisillés composés d’une

sous-phase peu visqueuse. Ces films dits de « lubrification » pourraient être par exemple constitués d'eau ou correspondre à plusieurs membranes de tensioactifs parfaitement orientées le long de l'écoulement. L'épaisseur de ces films n'est pas résolue par notre montage.

À ce stade, il est important de souligner que *toutes* les courbes d'écoulement présentées sur le fluide étudié, notamment dans le chapitre 2, ne peuvent représenter le comportement rhéologique *local* du fluide. En effet, ces dernières incluent cet effet de « glissement » aux parois. Par ailleurs, il est probable que dans le cas où le fluide présente des oscillations ( $T \geq T_c = 27^\circ\text{C}$  et  $\sigma$  imposé), le fluide glisse aussi aux parois. Cet effet de glissement pourrait donc compliquer les comportements dynamiques observés. Dans les paragraphes suivants nous analysons plus en détail le glissement mesuré à partir des profils de vitesse. Nous présenterons alors dans la section suivante (page 185) une méthode pour corriger le cisaillement indiqué par le rhéomètre des contributions liées au glissement et ainsi ajuster les profils de vitesse mesurés.

### Vitesses de glissement

On peut estimer les vitesses du fluide au rotor  $v_1$  et au stator  $v_2$  en extrapolant les profils mesurés. De ces deux quantités, on déduit les vitesses de glissement  $v_{s1} = v_0 - v_1$  et  $v_{s2} = v_2$ , où  $v_0$  est la vitesse du rotor indiquée par le rhéomètre. Ces vitesses de glissement correspondent à la différence de vitesse au sein du film de lubrification.

Analysons tout d'abord les expériences réalisées à  $T = 30^\circ\text{C}$ . La figure 5.9.a présente ces vitesses de glissement  $v_{si}$  en fonction des contraintes  $\sigma$  indiquées par le rhéomètre. La figure 5.9.b présente quant à elle, ces mêmes vitesses de glissement  $v_{si}$  en fonction des contraintes locales  $\sigma_i$ . L'indice  $i$  dénote les cas respectifs du rotor  $i = 1$ , et du stator  $i = 2$ . Sur la figure 5.9.a sont aussi indiquées les contraintes  $\sigma_A$  et  $\sigma_B$  correspondant à la zone de coexistence entre les deux bandes cisailées. Les valeurs exactes de ces contraintes sont extraites des ajustements réalisés plus loin dans ce chapitre (relation (5.16), page 192). Pour le cas  $T = 30^\circ\text{C}$ , on observe trois régimes distincts qui confirment le scénario de shear-banding observé.

(i) Pour des contraintes locales inférieures à  $\sigma_A \simeq 15.9$  Pa, les vitesses de glissement au rotor et au stator augmentent légèrement avec la contrainte appliquée. Rappelons que dans cette gamme de contrainte, l'écoulement est homogène et composé d'ognons désordonnés uniquement. Lorsque ces vitesses de glissement sont représentées en fonction des contraintes locales  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  (cf. fig. 5.9.b), il n'y a pas de dissymétrie entre les vitesses de glissement au rotor et au stator. En d'autres termes, la vitesse de glissement  $v_s$  est une fonction de la contrainte locale uniquement, *i.e.*  $v_s = f(\sigma)$ . En effet, comme nous l'avons vu dans le cas de

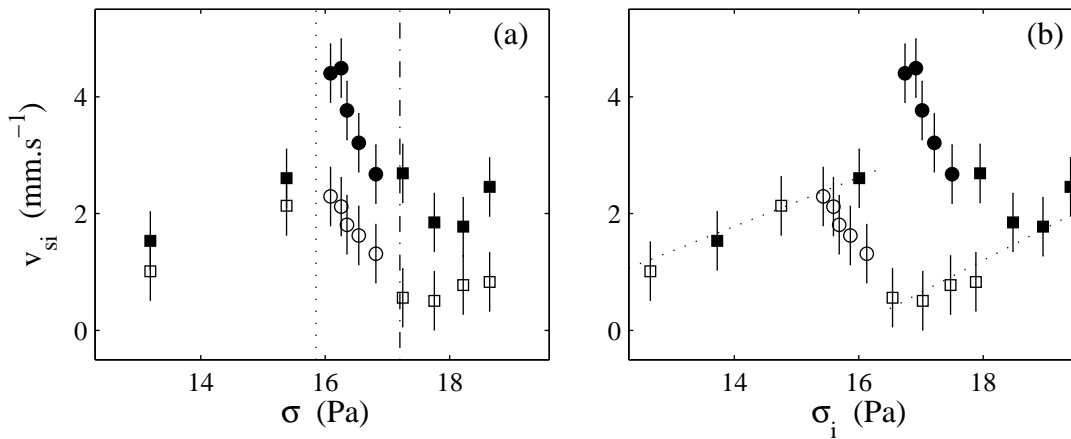


FIG. 5.9 –  $T = 30^\circ\text{C}$ . (a) Vitesses de glissement  $v_{si}$  au rotor (●,■) et au stator (○,□) en fonction de la contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre. La ligne pointillée indique  $\sigma_A = 15.9$  Pa, la valeur indiquée par le rhéomètre correspondant à la nucléation de la bande fortement cisailée. La ligne en traits et pointillés indique  $\sigma_B = 17.2$  Pa, la contrainte donnée par le rhéomètre lorsque la bande fortement cisailée a envahi l'entrefer. (b) Vitesses de glissement  $v_{si}$  au rotor (●,■) et au stator (○,□) en fonction des contraintes locales au rotor  $\sigma_1$  et au stator  $\sigma_2$ . Les lignes pointillées sont des guides. Dans chacune de ces figures, les symboles carrés (■,□) indiquent les profils homogènes dans l'entrefer et les symboles ronds (●,○) les profils inhomogènes.

l'émulsion précédemment étudiée (cf. section 4.1.3, page 135), l'inertie et les phénomènes de centrifugation ne jouent aucun rôle dans un système concentré et homogène : la différence entre les vitesses de glissement au stator et au rotor ne peut dépendre que de la non-uniformité de la contrainte dans l'écoulement de Couette, on a donc  $v_s = f(\sigma)$  [16]. C'est bien le cas pour  $\sigma < \sigma_A$ , où le fluide n'est composé que de la texture d'ognons désordonnés.

(ii) Pour  $\sigma_A \leq \sigma \leq \sigma_B$ , les vitesses de glissement diminuent fortement lorsque la contrainte augmente (cf. 5.9.a). Dans cette gamme de contrainte, l'écoulement est inhomogène et composé de deux bandes de cisaillements distincts. Au rotor se trouve une bande fortement cisailée correspondant à l'état feuilleté d'ognons alors qu'au stator se trouve une bande faiblement cisailée composée d'ognons désordonnés. Lorsque ces vitesses de glissement sont représentées en fonction des contraintes locales  $\sigma_i$ , on observe une forte dissymétrie. En effet, les données  $v_{si}$  vs.  $\sigma_i$  ne se superposent plus : la vitesse de glissement au rotor est bien plus importante que celle au stator (cf. 5.9.b). Ce résultat confirme le scénario de shear-banding pour la transition de feuilletage. En effet pour  $\sigma_A \leq \sigma \leq \sigma_B$ , il y a *deux* fluides de nature différente au sein de l'entrefer : ces deux textures n'ont pro-

blement pas la même affinité avec les parois de la cellule de Couette et ont donc des comportements différents vis-à-vis du glissement aux parois.

(iii) Pour  $\sigma \geq \sigma_B$ , les vitesses de glissement  $v_{si}$  augmentent à nouveau légèrement avec la contrainte  $\sigma$ . Sur la figure 5.9.b, on remarque que la dissymétrie entre rotor et stator disparaît : les vitesses de glissement correspondent à une fonction de la seule variable  $\sigma$  (cf. symboles carrés et lignes pointillées sur la figure 5.9.b). En effet, dans cette gamme de contrainte la structure est à nouveau homogène dans l'entrefer de la cellule de Couette et correspond à l'organisation feuilletée. Il n'y a donc plus de dissymétrie entre le rotor et le stator : la vitesse de glissement est à nouveau une fonction de la contrainte locale uniquement.

### Épaisseurs des films lubrifiants

Comme pour le cas de l'émulsion étudiée au chapitre 4, il est légitime de penser que ce glissement apparent est lié à la présence aux parois de films lubrifiants fortement cisailés. Dans ce scénario, la contrainte est continue dans l'entrefer de la cellule de Couette. En effet, l'écoulement au sein des films de lubrification est certainement laminaire car ces derniers ont une très faible épaisseur. On peut donc à partir des mesures des vitesses de glissement  $v_{si}$  estimer l'épaisseur  $h_i$  des films lubrifiants. En effet, l'hypothèse de la continuité de la contrainte mène à :

$$h_i = \frac{\eta_f v_{si}}{\sigma_i}, \quad (5.1)$$

où  $\eta_f$  est la viscosité des films lubrifiants. La figure 5.10 présente les épaisseurs calculées à partir de la relation (5.1) pour  $T = 30^\circ\text{C}$ , en fonction de la contrainte  $\sigma$  et des contraintes locales  $\sigma_i$ . Pour déterminer  $h_i$ , nous avons supposé que la viscosité du film lubrifiant est celle de l'eau, *i.e.*  $\eta_f \simeq 10^{-3}$  Pa.s. L'ordre de grandeur de l'épaisseur de ces films est 100 nm. Une fois de plus, la figure 5.10 confirme le scénario de shear-banding en soulignant la dissymétrie rotor-stator liée à la structuration du fluide lors de la transition de feuilletage.

### Quelques hypothèses quant à l'origine des films lubrifiants

La figure 5.10 montre clairement que l'ordre de grandeur des films lubrifiants est 100 nm. Rappelons que le pas smectique de la phase lamellaire étudiée est  $d = 15$  nm [78] et que la taille des oignons à ces cisaillements est de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$ . Il est donc probable que ces films lubrifiants soient constitués uniquement d'eau ou bien de quelques membranes parfaitement orientées.

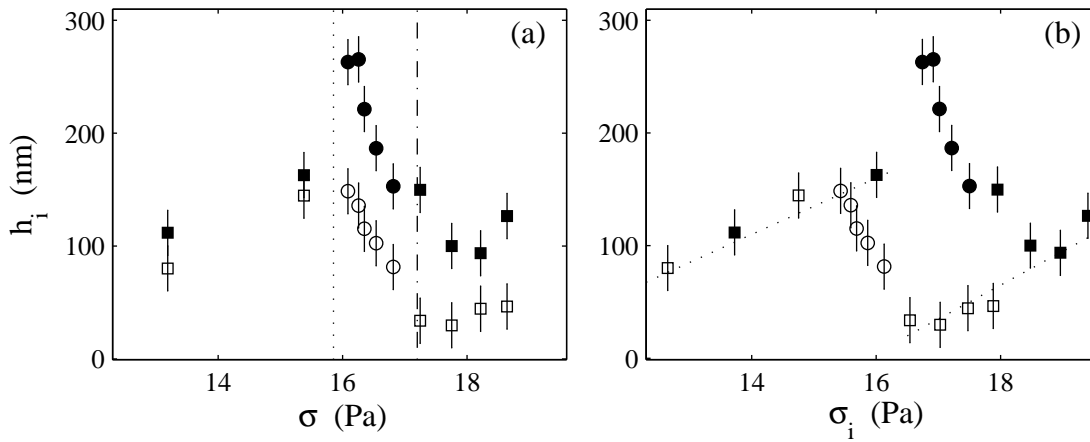


FIG. 5.10 –  $T = 30^\circ\text{C}$ . (a) Épaisseurs des films  $h_i$  au rotor ( $\bullet, \blacksquare$ ) et au stator ( $\circ, \square$ ) en fonction de la contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre. Les lignes pointillées indiquent  $\sigma_A = 15.9$  Pa et les lignes en traits et pointillés  $\sigma_B = 17.2$  Pa. (b)  $h_i$  au rotor ( $\bullet, \blacksquare$ ) et au stator ( $\circ, \square$ ) vs.  $\sigma_i$ . Les lignes pointillées sont des guides. Les symboles carrés ( $\blacksquare, \square$ ) indiquent les profils homogènes dans l'entrefer et les symboles ronds ( $\bullet, \circ$ ) les profils inhomogènes.

Une première hypothèse quant à l'origine de ces films, serait que les parois induisent une « transition » entre les oignons et une phase lamellaire parfaitement orientée. Rappelons que ces membranes orientées le long de l'écoulement sont aussi observées à très hauts cisaillements dans la plupart des systèmes de phases lamellaires lyotropes [52, 133] (cf. fig. 1.13, page 37). La viscosité de cet état orienté est de l'ordre de  $\eta_f \simeq 10^{-3}$  Pa.s. On pourrait aussi penser que la contrainte locale puisse modifier le nombre de membranes ainsi orientées le long des parois et donc expliquer les variations de  $h$  avec  $\sigma$ .

Une seconde hypothèse est de penser, comme pour le cas des émulsions et des mousses, que la contrainte agit comme une force de « drainage » retirant l'eau piégée entre les oignons dans le volume, afin de lubrifier l'écoulement aux parois. La dissymétrie observée lors de la zone de coexistence pourrait alors s'expliquer par une différence de perméation à travers les deux organisations microscopiques d'oignons : l'état feuilleté et l'état désordonné.

Enfin, il faut aussi se rappeler que les oignons possèdent une complexité supplémentaire par rapport aux mousses et aux émulsions. Les oignons sont en effet des suspensions colloïdales concentrées pouvant se « comprimer » sous l'action d'une pression externe, en relarguant de l'eau. Par ailleurs, Diat *et al.* ont mesuré le pas smectique  $d$  de la phase lamellaire lyotrope étudiée dans cette thèse, par diffusion de neutrons dans un écoulement de cisaillement. Ils ont alors montré que  $d$  diminuait significativement avec le cisaillement

appliqué [54]. Cette constatation expérimentale a ensuite été vérifiée plusieurs fois dans diverses textures d'ognons de phases lamellaires [89, 142, 152]. Les auteurs suggèrent que cette diminution de  $d$  est liée à la compression des ognons par la pression visqueuse générée par l'écoulement [54]. L'eau relarguée sert alors à lubrifier l'écoulement entre les ognons. Il est légitime de supposer que l'eau relarguée puisse aussi lubrifier l'écoulement aux parois<sup>1</sup>. Pour vérifier ce dernier scénario, il est utile de présenter la somme  $h_1 + h_2$  en fonction de

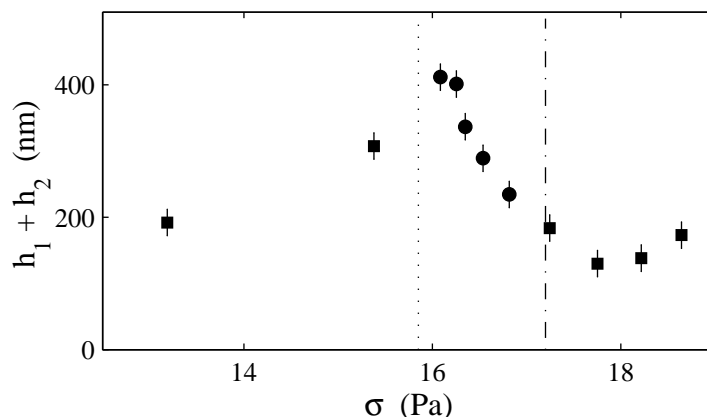


FIG. 5.11 – Épaisseur totale des films lubrifiants, *i.e.*  $h_1 + h_2$  vs. contrainte  $\sigma$ . La ligne pointillée indique  $\sigma_A = 15.9$  Pa et la ligne en traits et pointillés  $\sigma_B = 17.2$  Pa, *i.e.* la zone de coexistence des deux bandes cisailées. Les profils homogènes sont indiqués par des symboles carrés (■) et les profils inhomogènes par des ronds (●).

la contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre (cf. fig. 5.11). En effet, dans l'hypothèse où les films lubrifiants sont composés d'eau uniquement, la quantité  $h_1 + h_2$  représente la quantité totale d'eau présente aux parois, permettant ainsi la lubrification. On retrouve quantitativement les trois régions distinctes du shear-banding. Pour  $\sigma < \sigma_A$ , ces données suggèrent que la quantité d'eau croît lorsque la contrainte est augmentée. L'écoulement favoriserait la compression des ognons et donc l'augmentation de la quantité d'eau aux parois. Cependant, la figure 5.11 montre clairement que la quantité d'eau aux parois diminue le long de la zone de coexistence, *i.e.* pour  $\sigma_A < \sigma < \sigma_B$ . Lorsque la bande fortement cisailée correspondant à l'état feuilleté croît, la quantité totale d'eau aux parois diminue. Il est probable que l'eau présente dans les films est alors « redistribuée » dans la zone feuilletée. L'eau redistribuée servirait à lubrifier l'écoulement entre les plans orientés d'ognons dans

<sup>1</sup> Rappelons que cette eau est aussi à l'origine de la turbidité de la phase lamellaire observée sous écoulement.

la bande fortement cisailée. Au-delà de  $\sigma_B$ , la contrainte tend à nouveau à augmenter la quantité d'eau : la pression générée par l'écoulement permet probablement à nouveau la compression des ongons.

Tous ces scénarii sont évidemment hautement hypothétiques, seules des expériences mesurant localement le pas smectique  $d$  le long du gradient de vitesse dans l'entrefer de la cellule de Couette pourraient vérifier ces hypothèses<sup>2</sup>.

### Cas à $T = 26^\circ\text{C}$ : influence du protocole ?

La figure 5.12 présente les vitesses de glissement obtenues à  $T = 26^\circ\text{C}$ , grâce aux profils de vitesse de la figure 5.4. Ces données expérimentales ne confirment pas les analyses du

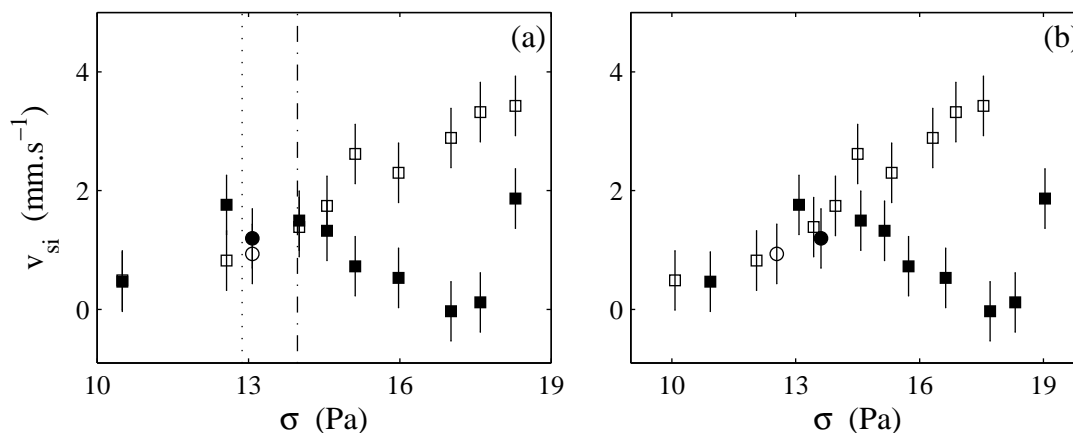


FIG. 5.12 –  $T = 26^\circ\text{C}$ . (a) Vitesses de glissement  $v_{si}$  au rotor ( $\bullet, \blacksquare$ ) et au stator ( $\circ, \square$ ) en fonction de la contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre. La ligne pointillée indique  $\sigma_A = 12.9$  Pa, la valeur indiquée par le rhéomètre correspondant à la nucléation de la bande fortement cisailée. La ligne en traits et pointillés indique  $\sigma_B = 14.0$  Pa la contrainte donnée par le rhéomètre lorsque la bande fortement cisailée a envahi l'entrefer. (b) Vitesses de glissement  $v_{si}$  au rotor ( $\bullet, \blacksquare$ ) et au stator ( $\circ, \square$ ) en fonction des contraintes locales au rotor  $\sigma_1$  et au stator  $\sigma_2$ . Dans chacune de ces figures, les symboles carrés ( $\blacksquare, \square$ ) indiquent les profils homogènes dans l'entrefer et les symboles ronds ( $\bullet, \circ$ ) les profils inhomogènes.

glissement à  $T = 30^\circ\text{C}$ , présentées au paragraphe précédent. En effet, ces données ne sont pas caractérisées par les trois régions de contraintes préalablement identifiées, *i.e.*  $\sigma < \sigma_A$ ,  $\sigma_A < \sigma < \sigma_B$  et  $\sigma > \sigma_B$ . En particulier, pour les contraintes supérieures à  $\sigma_B$ , ces

<sup>2</sup> Ces expériences devraient par ailleurs être particulièrement résolues. En effet, la variation de  $d$  attendue dans cette gamme de cisaillement est inférieure à 5% [54].



résultats à  $T = 26^\circ\text{C}$  indiquent une forte dissymétrie entre les vitesses de glissement au rotor et au stator alors même que le fluide est uniquement composé d'ognons feuilletés. La figure 5.13 présente les épaisseurs des films de lubrification à  $T = 26^\circ\text{C}$ , calculées à l'aide de la relation (5.1) et avec  $\eta_f = 10^{-3}$  Pa.s. L'ordre de grandeur de l'épaisseur ces films est

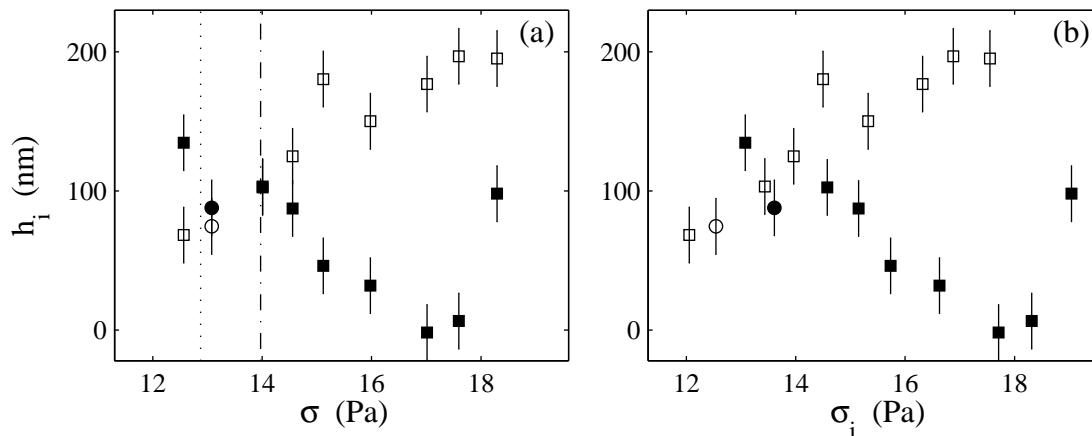


FIG. 5.13 –  $T = 26^\circ\text{C}$ . (a) Épaisseurs des films  $h_i$  au rotor ( $\bullet, \blacksquare$ ) et au stator ( $\circ, \square$ ) en fonction de la contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre. Les lignes pointillées indiquent  $\sigma_A = 12.9$  Pa et les lignes en traits et pointillés  $\sigma_B = 14$  Pa. (b)  $h_i$  au rotor ( $\bullet, \blacksquare$ ) et au stator ( $\circ, \square$ ) vs.  $\sigma_i$ . Les lignes pointillées sont des guides. Les symboles carrés ( $\blacksquare, \square$ ) indiquent les profils homogènes dans l'entrefer et les symboles ronds ( $\bullet, \circ$ ) les profils inhomogènes.

100 nm, comme pour  $T = 30^\circ\text{C}$ .

En réalité, les données à  $T = 26^\circ\text{C}$  ont été obtenues à l'aide d'un protocole rhéologique différent de celui utilisé à  $T = 30^\circ\text{C}$ . En effet, l'incrément de cisaillement choisi ( $\delta\dot{\gamma} \simeq 5 \text{ s}^{-1}$ ) est trop grand pour résoudre suffisamment la zone de coexistence entre les deux structures : seulement deux profils de vitesse inhomogènes ont pu être ainsi mesurés. Par ailleurs, l'intervalle de temps utilisé ( $\delta t \simeq 3600$  s) n'est certainement pas assez long pour assurer une parfaite asymptotisation de la contrainte. D'un point de vue plus général, comme nous l'avons souligné dans le chapitre 2, les réponses rhéologiques de la texture ognon (et plus généralement des systèmes de phases de membranes) sont fortement non-reproductibles. Seules des protocoles bien définis permettent d'extraire des expériences, des caractéristiques invariantes. Cette non-reproductibilité pourrait être liée à la présence de dynamiques microscopiques extrêmement lentes qui empêcheraient d'atteindre des états asymptotiques. En particulier, si on pense que le relargage d'eau lié à la compression des ognons se fait par un processus de perméation à travers les membranes, il est justifié de

penser que les temps mis en jeu puissent être extrêmement longs, notamment pour les basses températures<sup>3</sup>. Pour confirmer ces hypothèses, il faudrait réitérer les expériences présentées dans ce chapitre en augmentant significativement le temps d'attente  $\delta t$  et en diminuant l'incrément  $\delta\dot{\gamma}$ . Il faut cependant souligner que les expériences présentées ici sont déjà malheureusement très longues. Celle à  $T = 30^\circ\text{C}$  par exemple comporte plus de 10 points durant chacun environ 90 min. Pour aller significativement plus loin, une avancée technique permettant d'automatiser complètement les mesures de vitesses locales serait nécessaire.

### 5.1.5 Corrections liées au glissement et passage « global–local »

Dans les paragraphes qui suivent, nous allons montrer qu'à partir de la courbe d'écoulement globale  $\sigma$  *vs.*  $\dot{\gamma}$ , nous pouvons ajuster les profils de vitesse mesurés. La procédure est sensiblement la même que celle utilisée dans le chapitre précédent sur les micelles géantes (cf. section 4.2.3, page 157). Une nouvelle complication est cependant présente : il s'agit de la contribution des films de glissement à la rhéologie globale.

#### Courbe d'écoulement effective

Comme pour le cas de l'émulsion étudiée précédemment (cf. page 139), les courbes d'écoulement 5.3 et 5.6 ne renseignent pas sur le véritable comportement rhéologique de la texture ognon. Il convient donc d'ôter les contributions liées au glissement. Pour cela, on définit le cisaillement effectif  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  par :

$$\dot{\gamma}_{\text{eff}} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_1 + R_2} \frac{v_1 - v_2}{R_1 e}, \quad (5.2)$$

où  $v_1$  et  $v_2$  sont les vitesses respectives du fluide au rotor et au stator<sup>4</sup>. Le facteur  $(R_1^2 + R_2^2)/(R_1 + R_2)$  provient de la définition du cisaillement donné par le rhéomètre et permet de comparer  $(\sigma, \dot{\gamma}_{\text{eff}})$  à  $(\sigma, \dot{\gamma})$  (cf. relations (1.20), page 25). La figure 5.14 présente les courbes d'écoulement effectives dans les cas  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$  à cisaillement imposé.

Dans les deux cas, il est indispensable d'effectuer cette « correction » pour connaître le comportement rhéologique du fluide. Dans le cas  $T = 30^\circ\text{C}$ , il est clair que cette correction fait apparaître sur la courbe d'écoulement effective, un plateau légèrement incliné à une contrainte donnée de l'ordre de 16 Pa. Pour  $T = 26^\circ\text{C}$ , le protocole rhéologique utilisé, *i.e.*  $\delta\dot{\gamma} \simeq 5 \text{ s}^{-1}$  et  $\delta t \simeq 3600 \text{ s}$ , ne permet sans doute pas de révéler aussi clairement ce

<sup>3</sup> Le temps de perméation dépend en effet de façon drastique de la proximité de la transition vers la phase éponge à  $T_{L_\alpha-L_\beta} = 35^\circ\text{C}$  pour l'échantillon étudié [89, 142].

<sup>4</sup> Ces vitesses sont mesurées par extrapolation linéaire des profils de vitesse mesurés.

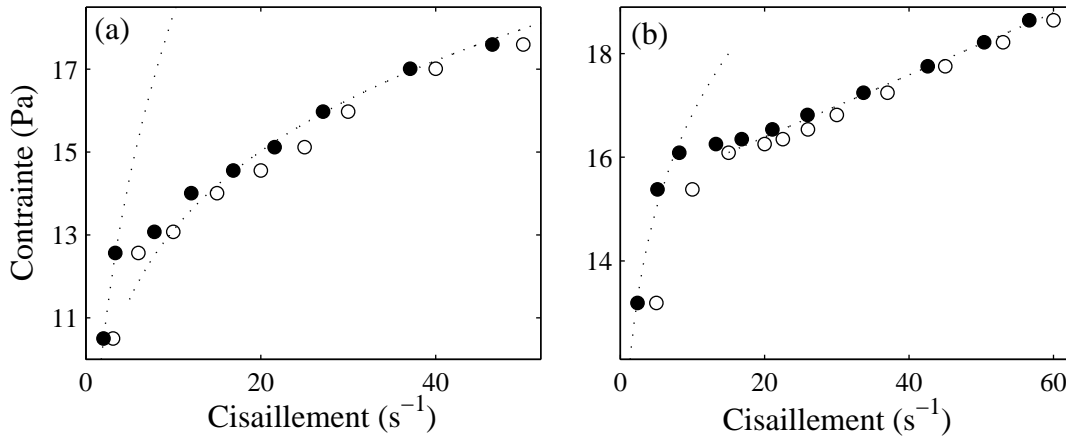


FIG. 5.14 – Courbes d'écoulement effectives  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  (●) et courbes d'écoulement globales  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}$  (○). (a)  $T = 26^\circ\text{C}$ , les lignes pointillées sont des ajustements des branches homogènes par une loi de puissance  $\sigma = 8.18\dot{\gamma}^{0.37}$  pour  $\dot{\gamma} \leq 6 \text{ s}^{-1}$  et par une autre loi de puissance  $\sigma = 8.35\dot{\gamma}^{0.20}$  pour  $\dot{\gamma} \geq 20 \text{ s}^{-1}$ . (b)  $T = 30^\circ\text{C}$ , les lignes pointillées sont des ajustements des branches homogènes par une loi de puissance  $\sigma = 11.49\dot{\gamma}^{0.17}$  pour le cas  $\dot{\gamma} \leq 15 \text{ s}^{-1}$  et par un fluide de Bingham  $\sigma = 15.19 + 0.06\dot{\gamma}$  pour  $\dot{\gamma} \geq 37 \text{ s}^{-1}$ .

plateau car les mesures ne sont pas suffisamment résolues. L'intervalle  $\delta\dot{\gamma}$  est trop grand pour mettre en évidence clairement la zone de coexistence et donc le plateau.

### Comportements rhéologiques des deux branches

Pour connaître le comportement rhéologique des branches homogènes, il faut ajuster les courbes effectives ( $\sigma, \dot{\gamma}_{\text{eff}}$ ) dans les zones de cisaillements où les profils sont homogènes. Rappelons qu'il est justifié de considérer que les ajustements de la rhéologie effective correspondent à la rhéologie locale pour un écoulement homogène (pour plus de détails, se reporter à l'annexe C, page 241). Les comportements rhéologiques ajustés sont les suivants :

- $T = 26^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} \leq 6 \text{ s}^{-1}$ , oignons désordonnés et  $\sigma = A_1\dot{\gamma}^{n_1}$ , avec  $A_1 = 8.18$  et  $n_1 = 0.37$  ;
- $T = 26^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} \geq 20 \text{ s}^{-1}$ , oignons ordonnés et  $\sigma = A_2\dot{\gamma}^{n_2}$ , avec  $A_2 = 8.35$  et  $n_2 = 0.20$  ;
- $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} \leq 15 \text{ s}^{-1}$ , oignons désordonnés et  $\sigma = A_1\dot{\gamma}^{n_1}$ , avec  $A_1 = 11.49$  et  $n_1 = 0.17$  ;
- $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\dot{\gamma} \geq 37 \text{ s}^{-1}$ , oignons ordonnés et  $\sigma = \sigma_0 + \eta\dot{\gamma}$ , avec  $\sigma_0 = 15.19 \text{ Pa}$  et  $\eta = 0.06 \text{ Pa.s}$ .

Ces ajustements des branches homogènes sont présentés sur la figure 5.14. Soulignons que le choix du comportement rhéologique pour la branche d'ognons feuilletés (rhéofluidifiant

$\sigma = A\dot{\gamma}^n$  ou fluide de Bingham  $\sigma = \sigma_0 + \eta\dot{\gamma}$ ) est arbitraire. Nous avons décidé de présenter l'analyse avec ces comportements rhéologiques, car ils conduisent aux meilleurs ajustements des profils de vitesse. Cependant, les mesures réalisées ne permettent pas de trancher entre ces comportements rhéologiques. Il faudrait notamment beaucoup plus de points sur les courbes d'écoulement pour pouvoir ajuster correctement les branches homogènes.

### Courbe d'écoulement locale

Les ajustements des branches homogènes permettent de connaître le comportement rhéologique local de la texture ognon au voisinage de la transition de feuilletage. Ce comportement local est représenté schématiquement sur la figure 5.15. Comme pour le cas

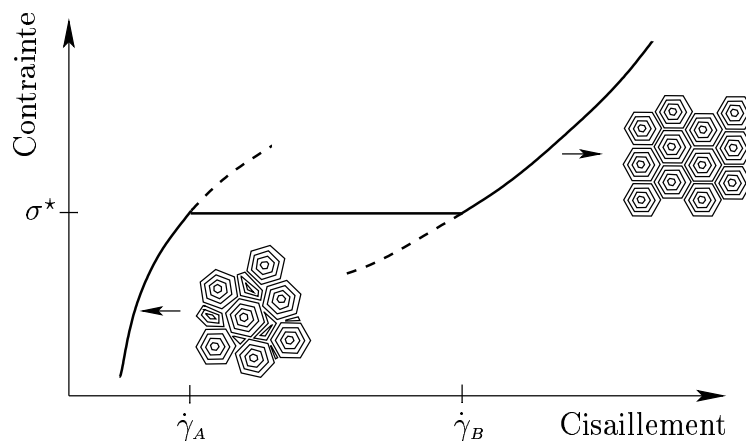


FIG. 5.15 – Courbe d'écoulement locale de la transition de feuilletage.  $\sigma^*$  est la contrainte où peuvent coexister les bandes de structures différentes.

des micelles géantes, nous allons supposer que les interfaces entre les bandes de différents cisaillements ne peuvent être stables qu'à une contrainte donnée  $\sigma^*$ . À cette valeur de contrainte, le système se sépare en plusieurs bandes de cisaillements  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$ . La courbe d'écoulement présente alors un plateau de contrainte à  $\sigma^*$  : augmenter le cisaillement imposé ne fait que croître la proportion de bandes cisillées à  $\dot{\gamma}_B$ . Les valeurs de  $\dot{\gamma}_A$  et  $\dot{\gamma}_B$  sont définies par l'intersection du plateau de contrainte avec les branches homogènes. La contrainte  $\sigma^*$  est l'unique paramètre libre des ajustements que nous allons réaliser.

Dans une géométrie d'écoulement où la contrainte est uniforme (*e.g.* un cône-plan), le scénario observé est simplement le suivant :

- pour  $\dot{\gamma} < \dot{\gamma}_A$  ( $\sigma < \sigma^*$ ), les ognons sont tous désordonnés et le profil de vitesse est homogène et cisillé à  $\dot{\gamma}$  ;

- pour  $\dot{\gamma}_A < \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_B$  ( $\sigma = \sigma^*$ ), l'écoulement est inhomogène et composé d'une bande d'ognons feuilletés dont l'épaisseur  $\delta$  est donnée par la relation suivante :

$$\frac{\delta}{e} = \frac{\dot{\gamma} - \dot{\gamma}_A}{\dot{\gamma}_B - \dot{\gamma}_A}. \quad (5.3)$$

Cette relation est une conséquence directe de la continuité de la vitesse entre les bandes (cf. relation (4.21), page 150). La bande d'ognons feuilletés est cisailée à  $\dot{\gamma}_B$ , alors que celle composée d'ognons désordonnés est cisailée à  $\dot{\gamma}_A$  ;

- pour  $\dot{\gamma} > \dot{\gamma}_B$  ( $\sigma > \sigma^*$ ), les ognons sont tous dans l'état feuilleté et le profil de vitesse homogène est cisailé à  $\dot{\gamma}$ .

### Profils théoriques dans l'écoulement de Couette

Dans l'écoulement de Couette, la contrainte n'est pas uniforme. Il faut donc prendre en compte les effets liés à cette géométrie pour calculer les profils de vitesse. En effet, la contrainte locale décroît dans l'entrefer de la cellule de Couette selon :

$$\sigma(x) = \sigma_1 \left( \frac{R_1}{R_1 + x} \right)^2, \quad (5.4)$$

où  $\sigma_1 = \Gamma/(2\pi HR_1^2)$  est la contrainte au rotor. Par ailleurs, l'interface séparant les bandes de cisaillements différents n'est stable qu'à la contrainte  $\sigma^*$ , *i.e.*  $\sigma(\delta) = \sigma^*$ . L'épaisseur  $\delta$  de la bande fortement cisailée le long du plateau est alors donnée par :

$$\delta(\sigma_1) = R_1 \left( \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} - 1 \right). \quad (5.5)$$

Cette propriété se traduit sur la courbe d'écoulement globale par une « pente » sur le plateau de contrainte. En effet, à l'entrée de la zone de coexistence *i.e.*  $\delta = 0$ , la contrainte au rotor est  $\sigma_1 = \sigma^*$ . À la sortie du plateau  $\delta = e$  et la contrainte au rotor est  $\sigma_1 = \sigma^* (1 + e/R_1)^2$ . La contrainte a donc augmenté le long de la zone de coexistence : le plateau est incliné.

Pour calculer les profils théoriques, on se donne un couple  $\Gamma$ . À partir de cette donnée, il est ensuite simple de calculer l'épaisseur  $\delta$ , si elle existe, grâce à la relation (5.5). Dans le cas où le profil est homogène, le profil de vitesse est alors donné par l'intégration suivante :

$$\frac{v(r)}{r} = \frac{v_2}{R_2} + \int_{R_2}^r \frac{\dot{\gamma}(u)}{u} du, \quad (5.6)$$

où  $r$  est la position radiale,  $v_2 = v(R_2)$  et  $\dot{\gamma}(r)$  est donné par le comportement rhéologique local :

$$\sigma(r) = f_i(\dot{\gamma}(r)), \quad (5.7)$$

où  $f_i$  correspond aux ajustements des branches homogènes précédentes ( $i = 1$  correspond aux oignons désordonnés et  $i = 2$  aux oignons ordonnés). Dans le cas où l'écoulement est inhomogène, il faut « séparer » l'intégrale précédente selon :

$$\begin{cases} \frac{v(r)}{r} = \frac{v_2}{R_2} + \int_{R_2}^r \frac{\dot{\gamma}(u)}{u} du \text{ pour } r > R_1 + \delta \text{ et :} \\ \frac{v(r)}{r} = \frac{v(R_1 + \delta)}{R_1 + \delta} + \int_{R_1 + \delta}^r \frac{\dot{\gamma}(u)}{u} du \text{ pour } r < R_1 + \delta, \end{cases} \quad (5.8)$$

où  $\delta$  est donné par l'équation (5.5) et les  $\dot{\gamma}(r)$  par les comportements rhéologiques des deux branches :

$$\begin{cases} \sigma(r) = f_1(\dot{\gamma}(r)) \text{ pour } r > R_1 + \delta \text{ et :} \\ \sigma(r) = f_2(\dot{\gamma}(r)) \text{ pour } r < R_1 + \delta. \end{cases} \quad (5.9)$$

Cependant, les expériences réalisées précédemment ont toutes été réalisées à cisaillement imposé. La seule quantité imposée est la vitesse  $v_0$  du rotor. Il serait donc plus naturel de calculer les profils de vitesse à partir de cette unique donnée. Il est cependant impossible de calculer les profils théoriques  $v(x)$  à partir de cette donnée de  $v_0$  : on ne peut en effet intégrer les relations (5.6) et (5.8). Cependant, si on se donne un ensemble continu de couple  $\Gamma$  et donc un ensemble continu de contrainte  $\sigma$ , il est ensuite simple de trouver la valeur de contrainte  $\sigma$  qui approxime le mieux le cisaillement appliqué  $\dot{\gamma}$ . Ceci est évidemment possible uniquement dans le cas où la courbe d'écoulement globale théorique  $\sigma(\dot{\gamma})$  est inversible, *i.e.* à une contrainte donnée, il n'existe qu'un cisaillement  $\dot{\gamma}$  possible. En géométrie de Couette, cette propriété est assurée. En effet, la courbure de cette géométrie induit une « pente » sur le plateau de contrainte. On peut donc associer à tout cisaillement  $\dot{\gamma}$  appliqué sur le plateau, une contrainte donnée  $\sigma$ .

Par la suite, nous allons donc nous donner un ensemble continu de contraintes  $\sigma$  ainsi que le paramètre d'ajustement  $\sigma^*$ . Nous calculerons alors l'ensemble continu de profils correspondants. Nous pourrons alors associer à ces profils, des cisaillements  $\dot{\gamma}$ . Nous pourrons ensuite comparer les profils expérimentaux obtenus à cisaillement imposé, aux profils théoriques  $v(x)$  correspondants.

Pour calculer les profils de vitesse dans la géométrie de Couette à partir de la courbe d'écoulement locale 5.15, on se donne un couple  $\Gamma$  arbitraire. De cette valeur de couple, on déduit une contrainte indiquée par le rhéomètre grâce à :

$$\sigma = \frac{R_1^2 + R_2^2}{4\pi H R_1^2 R_2^2} \Gamma. \quad (5.10)$$

où  $H$  est la hauteur de la cellule de Couette. À partir de  $\sigma$ , on peut déduire la vitesse de glissement au stator  $v_{s2}$ . Cette valeur est calculée par interpolation des courbes  $v_{si}$  vs.  $\sigma_i$  présentées sur les figures 5.9 et 5.12. Grâce à  $\sigma$  et à  $v_{s2}$ , on peut alors calculer les profils de vitesse théoriques  $v(x)$ . La procédure est la suivante :

- si pour tout point  $x$  de l'entrefer  $\sigma(x) < \sigma^*$ , alors l'écoulement est homogène et composé uniquement d'ognons désordonnés, le profil de vitesse est alors donné par :

$$v(x) = v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{n_1}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A_1} \right]^{1/n_1} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n_1} - 1 \right]. \quad (5.11)$$

Le terme  $v_{s2} r/R_2$  traduit la rotation solide liée au glissement au stator ;

- si pour tout point  $x$  de l'entrefer  $\sigma(x) > \sigma^*$ , alors l'écoulement est encore homogène et correspond à l'état feuilleté d'ognons. Dans le cas où la rhéologie locale de ce dernier est un fluide de Bingham, le profil de vitesse est le suivant :

$$v(x) = v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{\Gamma}{4\pi H R_2^2 \eta} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^2 - 1 \right] + r \frac{\sigma_0}{\eta} \ln \left( \frac{r}{R_2} \right), \quad (5.12)$$

alors que si l'état feuilleté est décrit par un fluide rhéofluidifiant, le profil est :

$$v(x) = v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{n_2}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A_2} \right]^{1/n_2} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n_2} - 1 \right]; \quad (5.13)$$

- lorsqu'il existe une position  $x$  telle que  $\sigma(x) = \sigma^*$ , la relation (5.5) permet de calculer l'épaisseur de la bande fortement cisailée. Pour  $x > \delta$  ( $\sigma(x) < \sigma^*$ ), le fluide est composé d'ognons désordonnés alors que pour  $x < \delta$  ( $\sigma(x) > \sigma^*$ ), le fluide est composé d'ognons feuilletés. Dans le cas où le comportement rhéologique choisi pour modéliser la branche d'ognons ordonnés est  $\sigma = A_2 \dot{\gamma}^{n_2}$ , le profil est donné par :

$$v(x) = v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{n_1}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A_1} \right]^{1/n_1} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n_1} - 1 \right], \text{ pour } R_1 + \delta < r < R_2 \text{ et :} \quad (5.14)$$

$$v(x) = r \frac{n_2}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H (R_1 + \delta)^2 A_2} \right]^{1/n_2} \left[ \left( \frac{R_1 + \delta}{r} \right)^{2/n_2} - 1 \right] + v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{n_1}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A_1} \right]^{1/n_1} \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + \delta} \right)^{2/n_1} - 1 \right], \text{ pour } R_1 < r < R_1 + \delta.$$

Dans le cas où le comportement choisi est celui du fluide de Bingham  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$ ,

le profil devient :

$$v(x) = v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{n_1}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A_1} \right]^{1/n_1} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n_1} - 1 \right], \text{ pour } R_1 + \delta < r < R_2 \text{ et :} \quad (5.15)$$

$$v(x) = r \frac{\Gamma}{4\pi H (R_1 + \delta)^2 \eta} \left[ \left( \frac{R_1 + \delta}{r} \right)^2 - 1 \right] + r \frac{\sigma_0}{\eta} \ln \left( \frac{r}{R_1 + \delta} \right) + v_{s2} \frac{r}{R_2} + r \frac{n_1}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A_1} \right]^{1/n_1} \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + \delta} \right)^{2/n_1} - 1 \right], \text{ pour } R_1 < r < R_1 + \delta.$$

Les relations (5.11)–(5.15) permettent de calculer les profils théoriques  $v(x)$  pour différentes contraintes indiquées par le rhéomètre. À partir de ces profils, on peut déterminer le cisaillement effectif  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  grâce à la relation (5.2). Par cette procédure on obtient la courbe d'écoulement théorique  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$ . Cette dernière est présentée sur la figure 5.16, pour les cas respectifs  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$ . Ces courbes permettent d'ajuster correctement la pente du plateau notamment pour  $T = 30^\circ\text{C}$ . Les valeurs de l'unique paramètre libre permettant au mieux d'ajuster les données sont :  $\sigma^* = 13.4$  Pa à  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $\sigma^* = 16.5$  Pa à  $T = 30^\circ\text{C}$ . À  $T = 26^\circ\text{C}$ , deux points uniquement ont pu être mesurés dans la zone de

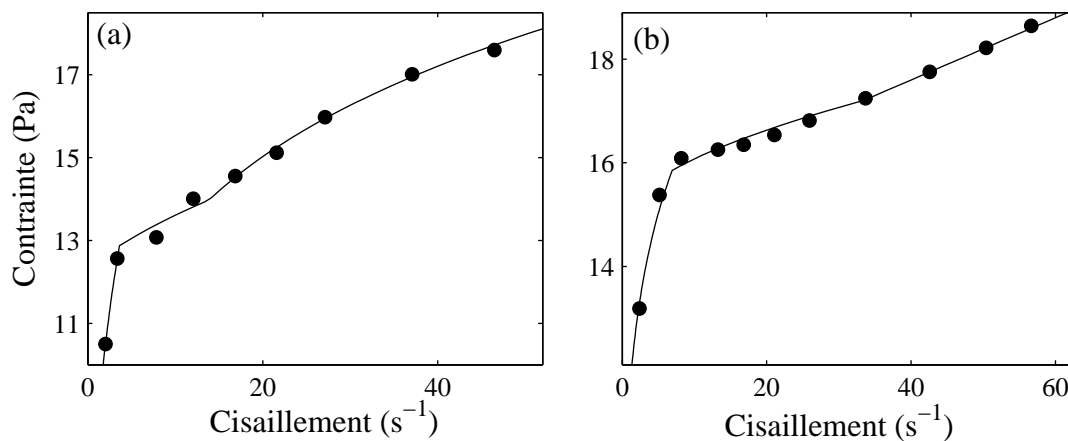


FIG. 5.16 – Courbes d'écoulement effectives  $\sigma$  vs.  $\dot{\gamma}_{\text{eff}}$  (•). (a)  $T = 26^\circ\text{C}$  et (b)  $T = 30^\circ\text{C}$ . Les lignes continues sont les courbes d'écoulement théoriques déduites des relations (5.11)–(5.15).

coexistence grâce au protocole rhéologique utilisé : l'ajustement de la courbe effective est donc moins convaincant. Soulignons que les valeurs  $\sigma_A$  et  $\sigma_B$  présentées sur les figures 5.9–5.11 et correspondant aux contraintes indiquées par le rhéomètre à l'entrée et à la sortie



du plateau ont été obtenues à partir des valeurs précédentes de  $\sigma^*$  grâce aux relations :

$$\begin{cases} \sigma_A = \frac{R_1^2 + R_2^2}{2R_2^2} \sigma^*, \\ \sigma_B = \frac{R_1^2 + R_2^2}{2R_1^2} \sigma^*. \end{cases} \quad (5.16)$$

Par ailleurs, en interpolant les données  $v_{si}$  vs.  $\sigma_i$  des figures 5.9 et 5.12, on peut déduire les vitesses de glissement au rotor  $v_{s1}$  pour les contraintes  $\sigma$  qui ont permis de calculer les profils de vitesse  $v(x)$ . La connaissance de  $v_{s1}$  et des profils théoriques  $v(x)$  permet de déterminer les vitesses au rotor  $v_0$ , car  $v_0 = v_{s1} + v(x=0)$ . À partir de ces vitesses de rotor on peut déterminer les cisaillements  $\dot{\gamma}$  indiqués par le rhéomètre :

$$\dot{\gamma} = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \frac{v_0}{R_1}. \quad (5.17)$$

Grâce à cette procédure, on peut désormais ajuster les profils de vitesse des figures 5.4 et 5.7 qui ont tous été obtenus à cisaillement imposé. Ces ajustements par les équations (5.11)–(5.15) sont présentés sur les figures 5.17 et 5.18.

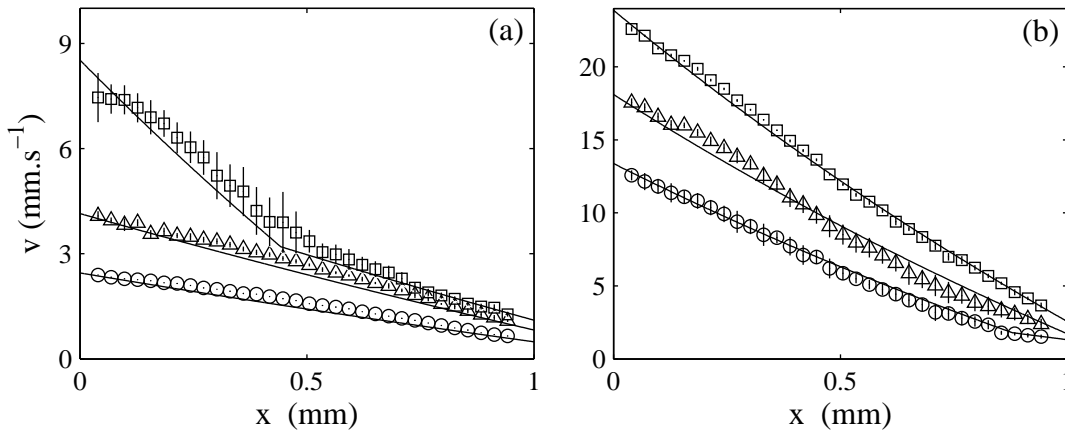


FIG. 5.17 – Profils de vitesse moyens à  $T = 26^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. Les barres d'erreurs sont les déviations standard des différentes mesures et correspondent aux fluctuations locales de la vitesse. (a)  $\dot{\gamma} = 3$  ( $\circ$ ),  $6$  ( $\triangle$ ) et  $10 \text{ s}^{-1}$  ( $\square$ ). (b)  $\dot{\gamma} = 15$  ( $\circ$ ),  $20$  ( $\triangle$ ) et  $25 \text{ s}^{-1}$  ( $\square$ ). Les lignes continues sont les ajustements des données à l'aide des relations (5.11)–(5.15) et avec comme unique paramètre libre  $\sigma^* = 13.4 \text{ Pa}$ .

Les profils théoriques permettent de reproduire très correctement l'ensemble des profils de vitesse expérimentaux. La position de la bande fortement cisailée est particulièrement

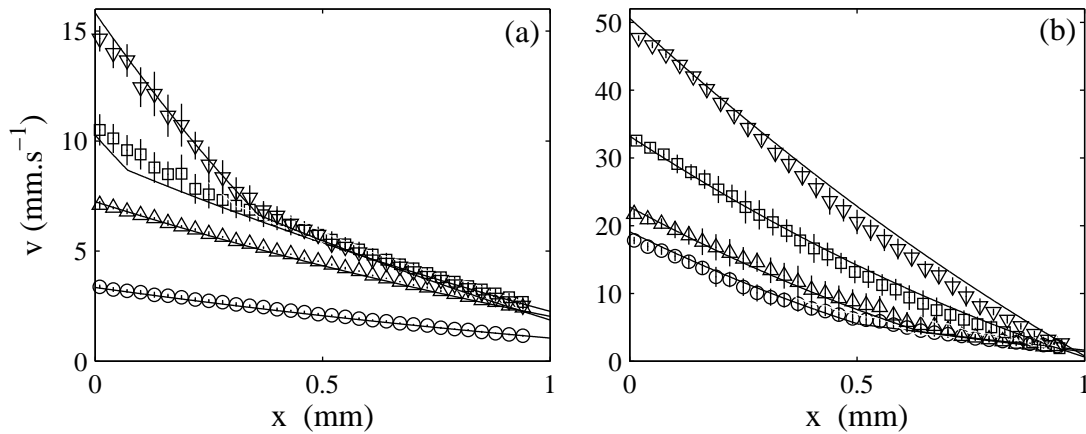


FIG. 5.18 – Profils de vitesse moyens à  $T = 30^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé. Les barres d'erreurs sont les déviations standard des différentes mesures et correspondent aux fluctuations locales de la vitesse. (a)  $\dot{\gamma} = 5$  ( $\circ$ ),  $10$  ( $\Delta$ ),  $15$  ( $\square$ ) et  $20$   $\text{s}^{-1}$  ( $\nabla$ ). (b)  $\dot{\gamma} = 22.5$  ( $\circ$ ),  $26$  ( $\Delta$ ),  $37$  ( $\square$ ) et  $53$   $\text{s}^{-1}$  ( $\nabla$ ). Les lignes continues sont les ajustements des données à l'aide des relations (5.11)–(5.15) et avec comme unique paramètre libre  $\sigma^* = 16.5$  Pa.

bien reproduite ainsi que la courbure des profils homogènes à hauts cisaillements, notamment pour le cas  $T = 30^\circ\text{C}$  (cf. fig. 5.18). Le bon accord entre les ajustements réalisés et les données expérimentales valide l'hypothèse selon laquelle l'interface entre les bandes de cisaillement n'est stable qu'à une contrainte donnée  $\sigma^*$ . Rappelons que d'un point de vue théorique, cette condition de stabilité est liée à la présence de termes spatiaux dans les modèles rhéologiques [92, 157].

Par ailleurs, la figure 5.19 présente les épaisseurs de la bande fortement cisillée  $\delta$  extraites à partir des profils expérimentaux à  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$  en fonction de  $\sigma_1$ , la contrainte au rotor. On retrouve le résultat des ajustements précédents : l'interface est bien donnée par la relation (5.5) dans la zone de coexistence.

Soulignons cependant que l'accord entre les données expérimentales et les profils théoriques n'est pas strictement parfait. Ces faibles différences sont en partie liées à la procédure d'ajustement utilisée. En effet, pour calculer les profils de vitesse, il est nécessaire de connaître les vitesses de glissement  $v_{s1}$  et  $v_{s2}$  pour un ensemble continu de contraintes  $\sigma$ . L'interpolation des données expérimentales  $v_{si}$  vs.  $\sigma_i$ , pour lesquelles les incertitudes sont relativement grandes, introduit probablement beaucoup d'erreurs.

Par ailleurs, il est probable que les fluctuations temporelles de la vitesse locale puissent engendrer de légères différences entre les ajustements et les profils de vitesse. Pour certains

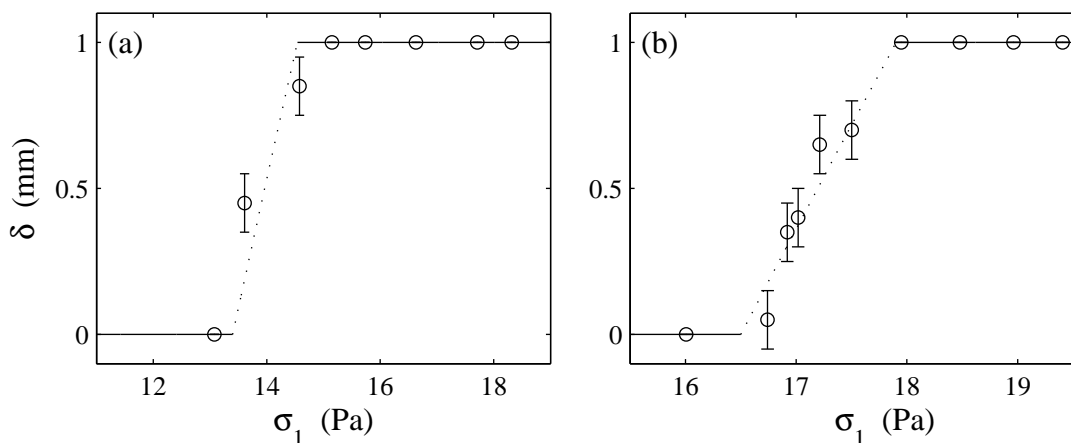


FIG. 5.19 – Épaisseurs  $\delta$  de la bande fortement cisailée *vs.*  $\sigma_1$ , la contrainte au rotor. (a)  $T = 26^\circ\text{C}$ ,  $\delta$  est extrait de la figure 5.4 et (b)  $T = 30^\circ\text{C}$ ,  $\delta$  est extrait de la figure 5.7. La ligne pointillée est calculée grâce à la relation (5.5) avec  $R_1 = 24$  mm et  $\sigma^* = 13.4$  Pa pour  $T = 26^\circ\text{C}$  et 16.5 Pa pour  $T = 30^\circ\text{C}$ .

profils de vitesse à  $T = 26^\circ\text{C}$  notamment, il est certain qu'il faut plus de mesures de profils à un même cisaillement pour assurer une bonne convergence statistique du profil moyenné. Ces effets seront discutés plus longuement dans la section 5.2.

### 5.1.6 Validation du modèle à $T = 26^\circ\text{C}$ et à contrainte imposée

Pour calculer les profils de vitesse grâce aux relations (5.11)–(5.15), il faut se donner un couple  $\Gamma$  et donc une contrainte globale  $\sigma$ . La connaissance de la vitesse de glissement  $v_{s1}$  permet alors de remonter au cisaillement  $\dot{\gamma}$  indiqué par le rhéomètre. Cette courbe d'écoulement théorique  $\sigma$  *vs.*  $\dot{\gamma}$  est inversible, *i.e.* à une contrainte donnée, il n'existe qu'un cisaillement  $\dot{\gamma}$  possible. C'est cette propriété qui nous a par ailleurs permis d'ajuster les profils de vitesse pour les différents cisaillements sur les figures 5.17 et 5.18. Le fait que la courbe  $\sigma$  *vs.*  $\dot{\gamma}$  soit monovaluée est lié à la géométrie de Couette. En effet, la courbure de cette géométrie induit une « pente » sur le plateau de contrainte.

Dans le cadre du modèle en géométrie de Couette, il n'y a donc pas de différence entre les courbes d'écoulement à contrainte imposée et celle à cisaillement imposé. On s'attend donc théoriquement à observer des écoulements inhomogènes même lorsque  $\sigma$  est imposé. Cependant, lorsque la contrainte est imposée au voisinage de la transition de feuilletage pour  $T \geq T_c = 27^\circ\text{C}$ , il est impossible de définir un état stationnaire car le cisaillement présente des oscillations auto-entretenues (cf. fig. 5.1, page 168). Dans cette gamme de

température, il n'existe donc probablement pas d'écoulements inhomogènes stationnaires. À plus basse température, *i.e.* pour  $T < T_c$ , la rhéologie est de nouveau stationnaire. Il est donc probable d'observer la phénoménologie du shear-banding à contrainte imposée dans ce domaine de température.

Nous avons donc réitéré les expériences précédentes mais à  $T = 26^\circ\text{C}$  et à contrainte imposée. Le protocole rhéologique choisi est le suivant :

- entrefer d'épaisseur  $e = 1$  mm et température fixée à  $T = 26^\circ\text{C}$ ;
- un premier palier est appliqué à  $\sigma = 10.5$  Pa pendant  $\delta t = 10800$  s;
- l'incrément de contrainte est ensuite  $\delta\sigma \simeq 0.25\text{--}0.75$  Pa;
- l'intervalle de temps est  $\delta t \simeq 4000\text{--}7000$  s.

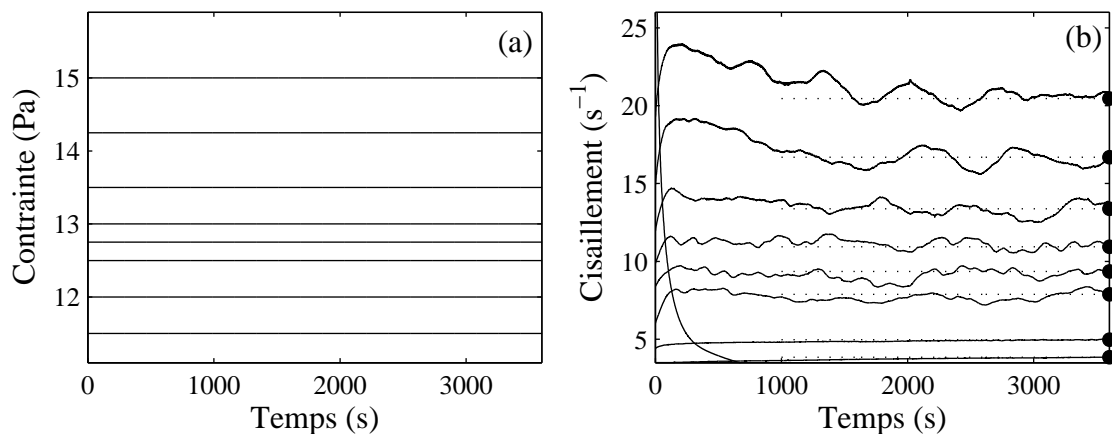


FIG. 5.20 –  $T = 26^\circ\text{C}$ . (a) Paliers de contraintes appliquées. (b) Réponses temporelles  $\dot{\gamma}(t)$ , les lignes pointillées terminées par des points indiquent les moyennes de  $\dot{\gamma}(t)$  à partir desquelles la courbe d'écoulement de la figure 5.21 est construite.

Les réponses temporelles du cisaillement sont présentées sur la figure 5.20. Loin du seuil de la transition de feuilletage, le cisaillement relaxe vers un état stationnaire relativement bien défini ( $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma} \simeq 1\text{--}2\%$ ). Cependant, comme souligné dans le chapitre 2 (page 56), les réponses temporelles du cisaillement sont fortement bruitées au voisinage de la transition de feuilletage et présentent des fluctuations dont l'amplitude peut atteindre 5%. La vitesse du rotor  $v_o$  fluctue donc de manière importante.

La courbe d'écoulement obtenue est présentée sur la figure 5.21. Les données à contrainte imposée suivent la courbe d'écoulement obtenue précédemment à cisaillement imposé (cf. fig 5.3, page 170). Comme pour les expériences réalisées à cisaillement imposé à  $T = 26^\circ\text{C}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$ , les figures de diffraction à contrainte imposée et  $T = 26^\circ\text{C}$  suggèrent que

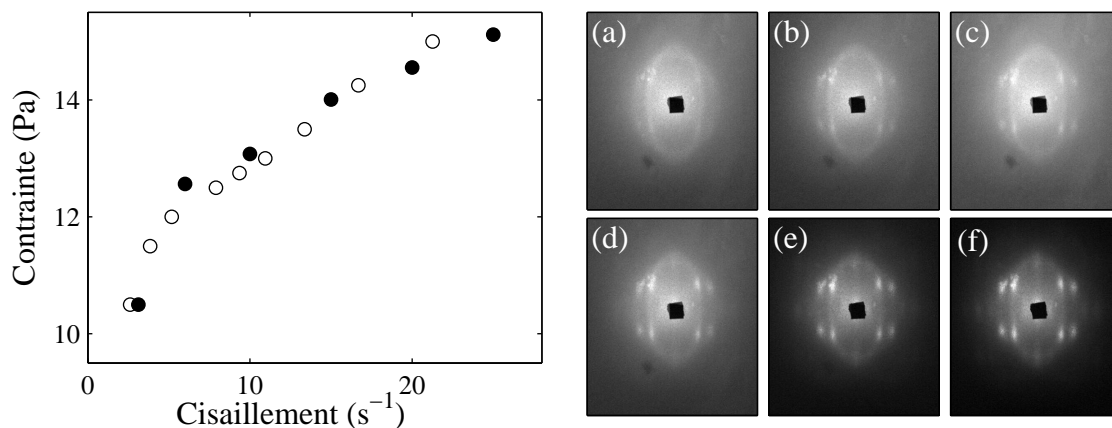


FIG. 5.21 – Courbe d’écoulement stationnaire obtenue à  $T = 26^\circ\text{C}$  et à contrainte imposée ( $\circ$ ) et courbe d’écoulement à  $T = 26^\circ\text{C}$  et cisaillement imposé ( $\bullet$ ) (cf. fig. 5.3). (a)–(f) Figures de diffraction obtenues simultanément à la courbe d’écoulement à contrainte imposée. Les contraintes sont les suivantes : (a)  $\sigma = 12$ , (b) 12.5, (c) 12.75, (d) 13, (e) 13.5 et (f) 14.25 Pa.

la transition de feuilletage est continue. En effet, des pics de faibles intensité apparaissent sur l’anneau à  $\sigma = 12.5$  Pa. Le contraste de ces derniers croît progressivement jusqu’à saturer à  $\sigma = 13.5$  Pa. Les profils de vitesse mesurés simultanément sont présentés sur la figure 5.22. Pour des contraintes  $\sigma < 12.5$  Pa, les profils sont linéaires dans l’entrefer et la vitesse locale ne fluctue pas. Pour  $12.5 < \sigma < 13.5$  Pa, les profils de vitesse présentent deux bandes de cisaillements distincts. La bande fortement cisailée est nucléée au rotor et envahit l’entrefer à  $\sigma \simeq 13.5$  Pa. Dans cette gamme de contrainte, il est clair que la vitesse locale présente de très grandes fluctuations : l’amplitude de ces dernières peut atteindre 20%. Au-delà de 13.5 Pa, les profils sont à nouveau homogènes et stationnaires. Comme pour les expériences précédentes à cisaillement imposé, un glissement significatif est mesuré aux parois. Pour finir, notons que les valeurs de contrainte 12.5 et 13.5 Pa, correspondant à la zone de coexistence sont en accord avec celles extraites des ajustements réalisés à cisaillement imposé et  $T = 26^\circ\text{C}$  :  $\sigma_A = 12.9$  et  $\sigma_B = 14$  Pa.

Ces expériences à contrainte imposée et pour des températures telles que les réponses rhéologiques sont approximativement stationnaires montrent sans aucune ambiguïté la présence de shear-banding à contrainte imposée en géométrie de Couette. Même si ce résultat n’est pas surprenant en soi, nous pensons que nos expériences apportent la première preuve de shear-banding, à la fois sur la structure du fluide et le profil de vitesse en géométrie de Couette. Nous avons décidé pour ne pas alourdir le texte de ne pas présenter la procédure

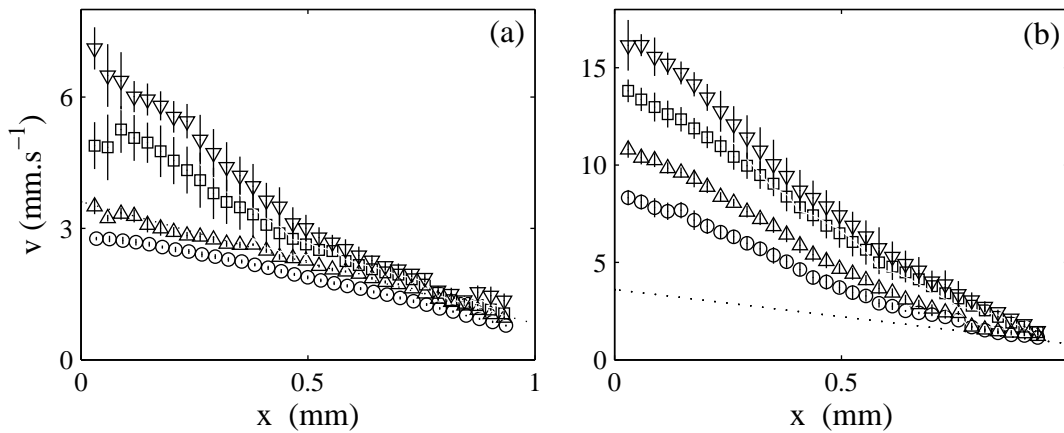


FIG. 5.22 – Profils de vitesse moyens obtenus simultanément à la courbe d’écoulement 5.21 à  $T = 26^\circ\text{C}$  et à contrainte imposée. Les barres d’erreurs sont les déviations standard des différentes mesures et correspondent aux fluctuations locales de la vitesse. (a)  $\sigma = 11.5$  (o), 12 ( $\Delta$ ), 12.5 ( $\square$ ) et 12.75 Pa ( $\nabla$ ). (b)  $\sigma = 13$  (o), 13.5 ( $\Delta$ ), 14.25 ( $\square$ ) et 15 Pa ( $\nabla$ ). La courbe pointillée correspond au profil de vitesse d’un fluide newtonien cisailé à  $\dot{\gamma}_A \simeq 2.8 \text{ s}^{-1}$  et qui glisse au stator comme la phase lamellaire à  $\sigma = 12$  Pa.

d’ajustement des profils de vitesse à contrainte imposée. Par ailleurs, cette procédure ne conduit pas à un accord aussi fidèle que sur les figures 5.17 et 5.18.

En effet, dans l’expérience précédente, la contrainte est imposée avec une excellente précision : les fluctuations temporelles de  $\sigma$  sont inférieures à 0.001%. Or, la vitesse locale fluctue de façon spectaculaire. Les profils de la figure 5.22 présentent en effet des amplitudes de fluctuations locales pouvant atteindre 20%. Les équations permettant le passage « local–global » ne peuvent modéliser que des profils stationnaires si la contrainte est fixe. De la même façon, les profils de vitesse obtenus à cisaillement imposé présentent eux aussi des fluctuations temporelles de la vitesse. Ces fluctuations sont par ailleurs localisées au niveau de l’interface entre les deux bandes de cisaillement. La section suivante concerne l’étude aussi exhaustive que possible de ces fluctuations locales.

## 5.2 Étude des fluctuations de la vitesse locale

Dans les expériences précédentes, nous avons montré sans aucune ambiguïté, la phénoménologie du shear-banding lors de la transition de feuilletage, à partir d’une étude *moyennée* dans le temps. Cependant, dans la zone de coexistence entre les deux structures

d'ognons, la vitesse locale fluctue fortement. La période de ces fluctuations est de l'ordre du temps nécessaire pour obtenir un profil de vitesse ( $\simeq 100\text{--}1000$  s). Pour s'affranchir de cette complexité, les profils analysés précédemment correspondent tous à une moyenne temporelle de profils individuels à un *même* cisaillement imposé (figures 5.4 et 5.7) ou une *même* contrainte fixe (fig. 5.22). La déviation standard de ces différentes mesures permet alors d'estimer les fluctuations temporelles de la vitesse locale. À l'aide d'un modèle mécanique simple, nous avons pu ajuster l'ensemble des profils de vitesse *moyennés*, en supposant que l'interface entre les bandes de différents cisaillements est stable à une contrainte fixe  $\sigma^*$ . Cependant, de nombreuses questions restent sans réponses. En effet, la vitesse locale fluctue de façon spectaculaire : l'amplitude de ces dernières peut atteindre plus de 20% dans la zone de coexistence. Par ailleurs, les barres d'erreur des profils des figures 5.4, 5.7 et 5.22 indiquent clairement une localisation de ces fluctuations : l'amplitude est maximale à l'interface entre les deux bandes.

Dans cette section, nous allons dans un premier temps caractériser quantitativement cette localisation des fluctuations. Ensuite, nous allons montrer à l'aide de séries temporelles de vitesse mesurées en plusieurs points, que la forme des fluctuations dépend elle aussi de la position dans l'entrefer. Nous présenterons ensuite divers arguments suggérant que ces fluctuations locales sont liées au mouvement de la bande fortement cisailée dans l'entrefer. Grâce au modèle mécanique préalablement présenté, nous pourrons alors reproduire qualitativement les phénomènes observés. Nous verrons cependant rapidement les limites de ce dernier pour expliquer l'origine microscopique de ces fluctuations.

### 5.2.1 Localisation de l'amplitude des fluctuations

Nous allons reprendre l'analyse des profils de vitesse obtenus précédemment, en nous limitant au cas où  $T = 30^\circ\text{C}$  et à  $\dot{\gamma}$  imposé. En effet, le protocole utilisé à cette température nous a permis de résoudre parfaitement la zone de coexistence. La figure 5.23 présente les profils de vitesse moyens obtenus à  $\dot{\gamma} = 10, 15$  et  $22.5\text{ s}^{-1}$ , ainsi que les amplitudes des fluctuations de vitesse relatives  $\delta v/v$  en fonction de la position  $x$ . Rappelons que ces profils correspondent à la moyenne de plusieurs profils consécutifs (jusqu'à 20) obtenus à un même cisaillement. L'amplitude des fluctuations est simplement estimée en prenant la déviation standard de ces mesures.

À faibles cisaillements, *i.e.* hors de la zone de coexistence, les profils de vitesse sont stationnaires. L'amplitude moyenne des fluctuations de la vitesse est inférieure à 5%, l'ordre de grandeur de l'incertitude intrinsèque du montage utilisé. Pour les cisaillements supérieurs à  $10\text{ s}^{-1}$ , les profils présentent deux bandes de cisaillements distincts. La figure 5.23.b

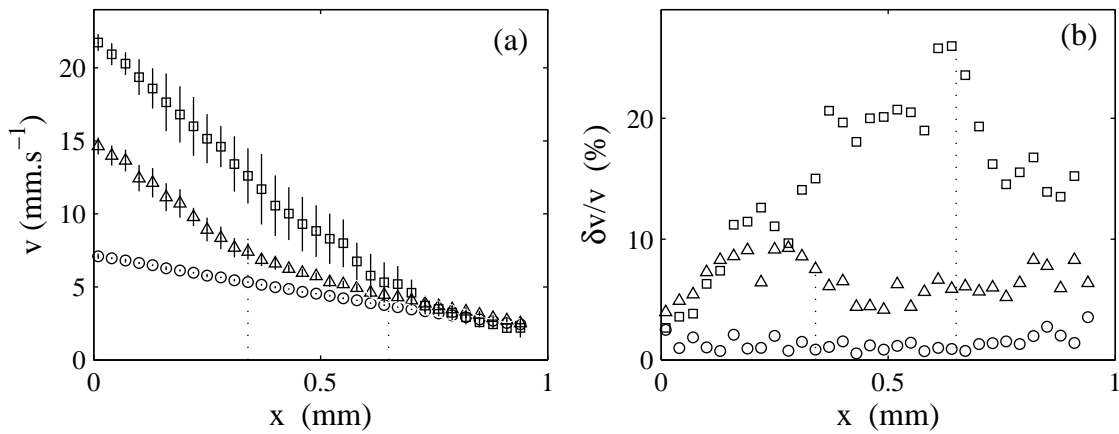


FIG. 5.23 – (a) Profils de vitesse moyens obtenus à  $T = 30^\circ\text{C}$  et pour divers cisaillements imposés :  $\dot{\gamma} = 10$  ( $\circ$ ),  $20$  ( $\triangle$ ) et  $26\text{ s}^{-1}$  ( $\square$ ). (b) Amplitude relative  $\delta v/v$  des fluctuations temporelles de vitesse en fonction de la position dans l'entrefer. Les lignes pointillées indiquent les positions  $x = 0.35$  et  $x = 0.65$  mm.

montre alors clairement que l'amplitude des fluctuations passe par un maximum au niveau de l'interface entre les bandes. À  $\dot{\gamma} = 26\text{ s}^{-1}$  par exemple, l'épaisseur de la bande fortement cisailée est environ  $0.65$  mm. Les fluctuations de vitesse sont faibles au rotor ( $\simeq 5\%$ ) et croissent progressivement jusqu'à atteindre quasiment  $25\%$  en  $x \simeq 0.65$  mm, la position de l'interface entre les bandes. Dans la bande faiblement cisailée, l'amplitude relative diminue à nouveau. Par ailleurs, l'amplitude maximale des fluctuations croît avec le cisaillement appliqué, *i.e.* plus la bande fortement cisailée est grande, plus les fluctuations sont importantes.

À plus hauts cisaillements, juste avant la sortie de la zone de coexistence, les fluctuations de la vitesse sont encore localisées et relativement importantes. Pour  $\dot{\gamma} = 30\text{ s}^{-1}$  par exemple (cf. fig. 5.24), la bande fortement cisailée a envahi plus de  $90\%$  de l'entrefer et l'amplitude relative des fluctuations est quasiment constante ( $\simeq 20\%$ ) pour  $x = 0.3\text{--}0.8$  mm. Près du rotor, l'amplitude des fluctuations diminue progressivement et s'annule quasiment en  $x = 0$  mm. Notons que nous ne pouvons analyser les fluctuations au voisinage du stator pour ces cisaillements. En effet à ces cisaillements, le fluide glisse peu au stator et les profils de vitesse s'annulent quasiment en  $x = 1$  mm (cf. fig. 5.9, page 179). La figure 5.24.b présente alors une divergence de  $\delta v/v$  en  $x \rightarrow 1$  mm, liée à l'annulation des profils de vitesse<sup>5</sup>. Hors

<sup>5</sup> En d'autres termes, l'incertitude sur la mesure de  $\delta v$  est trop grande pour que la valeur de  $\delta v/v$  ne diverge pas pour  $v \rightarrow 0$ .



de la zone de coexistence, à  $\dot{\gamma} = 45 \text{ s}^{-1}$  par exemple, le profil est homogène et la structure des oignons est entièrement feuilletée dans l'entrefer. Cependant, les fluctuations restent importantes pour  $x = 0.3\text{--}0.8 \text{ mm}$  ( $\simeq 10\%$ ). À haut cisaillement ( $\dot{\gamma} = 60 \text{ s}^{-1}$ , cf. fig. 5.24), l'amplitude des fluctuations redevient inférieure à l'incertitude intrinsèque de la mesure. Les profils mesurés sont donc à nouveau stationnaires.

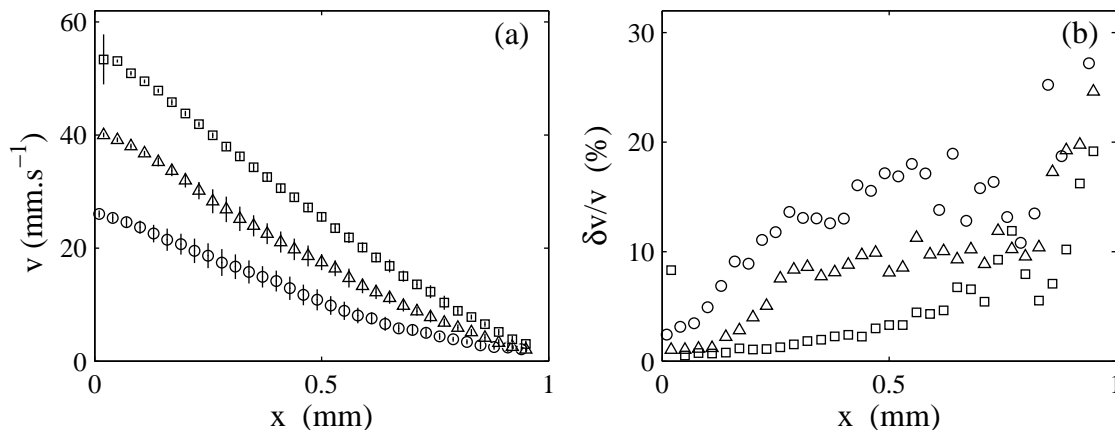


FIG. 5.24 – (a) Profils de vitesse moyens obtenus à  $T = 30^\circ\text{C}$  et pour divers cisaillements imposés :  $\dot{\gamma} = 30$  ( $\circ$ ),  $45$  ( $\triangle$ ) et  $60 \text{ s}^{-1}$  ( $\square$ ). (b) Amplitude relative  $\delta v/v$  des fluctuations temporelles de vitesse en fonction de la position dans l'entrefer.

Il est très important de se rappeler que la réponse rhéologique globale  $\sigma(t)$  est quasiment stationnaire. En effet, les fluctuations de la contrainte indiquée par le rhéomètre ne dépassent pas 5%. Par ailleurs, la boucle de rétroaction contrôlant le couple  $\Gamma$  appliqué sur la cellule de Couette, permet de maintenir un cisaillement  $\dot{\gamma}$  quasiment constant ( $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma} \simeq 0.1\%$ ).

### 5.2.2 Analyse locale des fluctuations de vitesse

L'analyse précédente montre clairement une dépendance de l'amplitude des fluctuations avec la position dans l'entrefer. Mais qu'en est-il de la forme même des fluctuations? Afin de répondre à cette question cruciale, nous avons réalisé des mesures de la vitesse en différents points de l'entrefer en fonction du temps. L'étude précédente a révélé que les fluctuations de la vitesse sont maximales dans la zone de coexistence entre les bandes de cisaillement. Afin de se placer à un cisaillement tel que le profil soit inhomogène et donc espérer mesurer de grandes fluctuations, nous avons utilisé le protocole rhéologique suivant :

- cisaillement imposé grâce à la boucle de rétroaction ;
- température fixée à  $T = 30^\circ\text{C}$  ;
- premier palier de cisaillement à  $\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$  pendant  $\delta t = 7200 \text{ s}$  ;
- $\delta\dot{\gamma} = 5 \text{ s}^{-1}$  de  $\dot{\gamma} = 5$  à  $20 \text{ s}^{-1}$  et  $\delta t = 5400 \text{ s}$  ;
- nous appliquons ensuite un palier à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$ .

À  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$ , nous obtenons alors un état rhéologique stationnaire où plusieurs expériences vont être effectuées afin de caractériser quantitativement les fluctuations temporelles. Nous réalisons tout d'abord plusieurs mesures consécutives de profils de vitesse  $v(x)$ , afin de déterminer la position de l'interface entre les bandes de cisaillements. La figure 5.25 présente ces mesures consécutives ainsi que leur moyenne. Le profil présente clairement

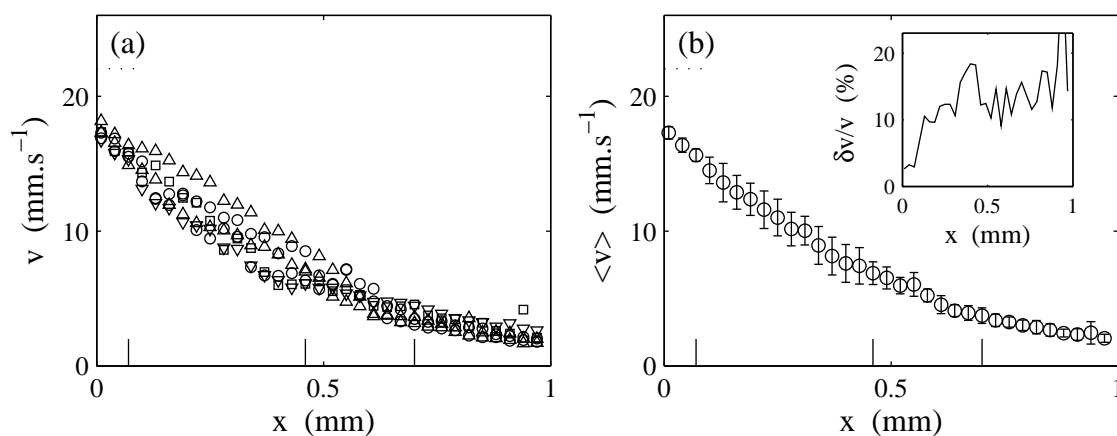


FIG. 5.25 – (a) 6 profils de vitesse obtenus à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$ . (b) Moyenne de ces 6 profils, les barres d'erreur sont les déviations standard de ces mesures. Les lignes pointillées horizontales indiquent la vitesse du rotor. Les lignes verticales indiquent les positions où sont mesurées les séries temporelles de la figure 5.29 :  $x_1 = 0.07$ ,  $x_2 = 0.46$  et  $x_3 = 0.70 \text{ mm}$ . L'insert présente les fluctuations de vitesse mesurées à partir des déviations standard des 6 profils mesurés.

deux bandes de cisaillement. L'interface entre ces dernières est située approximativement à  $x = 0.6 \text{ mm}$ . Une fois encore, l'amplitude des fluctuations de la vitesse locale, quasiment nulle au rotor, croît progressivement jusqu'à  $x = 0.6 \text{ mm}$  et est à nouveau quasiment nulle dans la bande faiblement cisillée.

### Fluctuations de la contrainte globale $\sigma(t)$

La figure 5.26 présente la réponse rhéologique  $\sigma(t)$  indiquée par le rhéomètre ainsi que la variable rhéologique imposée  $\dot{\gamma}(t)$ . Il est évident que la boucle de rétroaction contrôlant le couple appliqué sur la cellule de Couette, permet de maintenir un cisaillement parfaitement constant à  $22.5 \text{ s}^{-1}$ . En effet, les fluctuations temporelles  $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma}$  sont de l'ordre de 0.1%. On note cependant la présence de plusieurs « irrégularités » extrêmement rares et inférieures à  $1 \text{ s}^{-1}$ , correspondant probablement à des perturbations mécaniques externes (porte qui claque, vibrations extérieures...). Comme le montre la figure 5.26.b, la réponse de la contrainte est elle aussi, quasiment stationnaire : les fluctuations temporelles sont de l'ordre de 0.5%.

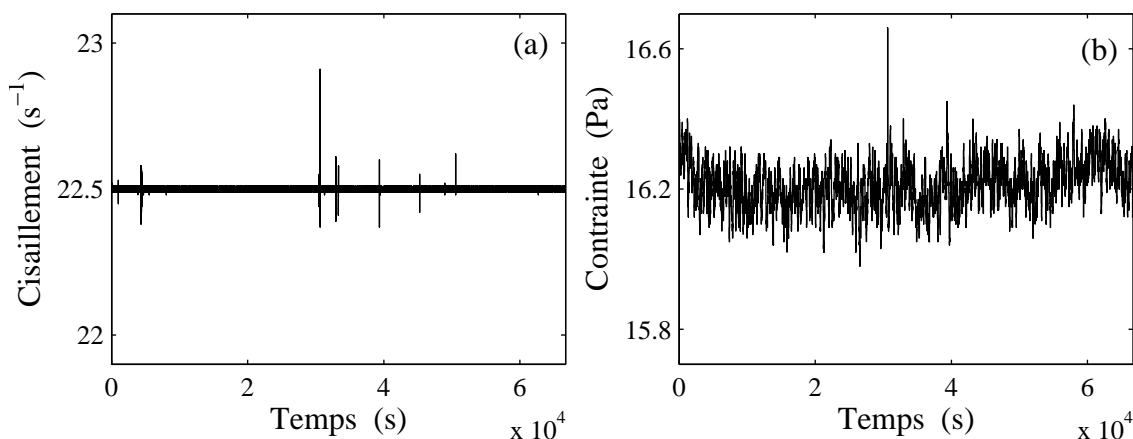


FIG. 5.26 – (a) Série  $\dot{\gamma}(t)$  obtenue à l'aide d'une boucle de rétroaction contrôlant le couple  $\Gamma$  appliqué. (b) Réponse rhéologique  $\sigma(t)$  au cisaillement appliqué  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  et à  $T = 30^\circ\text{C}$ .

La figure 5.27.a présente la distribution de probabilité de ces fluctuations de contrainte (« Probability Density Function », PDF). La ligne continue est la gaussienne :

$$p(\sigma) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Sigma^2} \exp \frac{-(\sigma - \langle \sigma \rangle)^2}{2\Sigma^2}, \quad (5.18)$$

de moyenne  $\langle \sigma \rangle \simeq 16.21 \text{ Pa}$  et de déviation standard  $\Sigma \simeq 0.065 \text{ Pa}$ , calculées à partir de la série  $\sigma(t)$ . Le très bon accord entre la PDF expérimentale et cette gaussienne indique clairement que les fluctuations de contraintes mesurées sont gaussiennes à l'échelle statistique étudiée (environ  $6 \cdot 10^4$  points, soit  $6 \cdot 10^4 \text{ s}$ ). La figure 5.27.b présente quant à elle, le spectre de puissance de la série temporelle  $\sigma(t)$ <sup>6</sup>. Rappelons que le spectre de puissance

<sup>6</sup> Pour éliminer le pic à fréquence nulle, la moyenne de  $\sigma(t)$  est retirée. Notons aussi que pour minimiser les effets de bords, nous avons multiplié la série  $\sigma(t)$  par la fonction de Hanning.

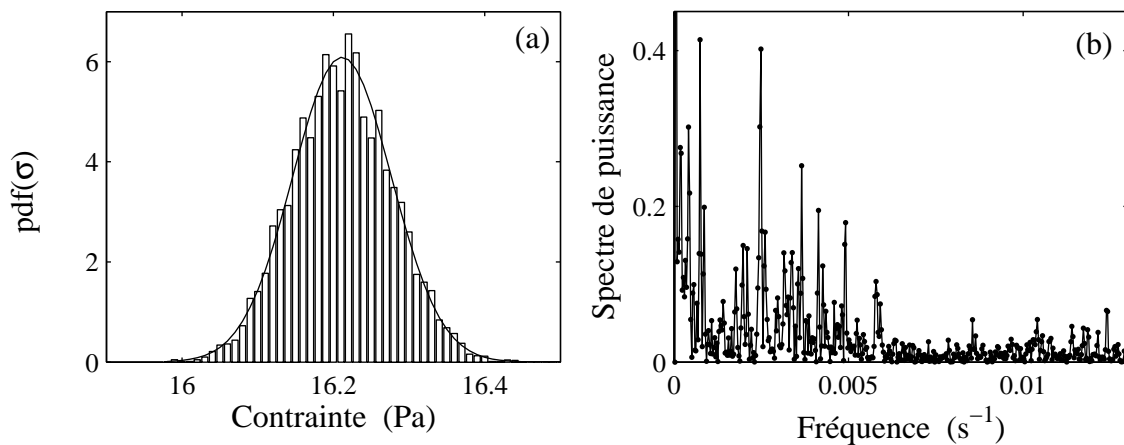


FIG. 5.27 – (a) PDF de la série  $\sigma(t)$  de la figure 5.26.b. La ligne continue est la gaussienne (5.18) avec  $\langle \sigma \rangle = 16.21$  et  $\Sigma = 0.065$  Pa. (b) Spectre de puissance correspondant à la série temporelle  $\sigma(t)$  de la figure 5.26.b.

d'une série  $\sigma(t)$  correspond au module carré de la transformée de Fourier de cette dernière. Ce spectre comporte une forêt de pics aux basses fréquences. Les périodes des fluctuations de la contrainte s'étendent de 100 à 1000 s. Ce sont donc des dynamiques lentes similaires à celles du rhéochaos, où le cisaillement oscille à contrainte fixe sur des périodes de l'ordre de 600 s (cf. chapitre 2).

### Fluctuations de la vitesse locale

Pour obtenir une série temporelle de la vitesse locale, plusieurs fonctions de corrélations consécutives sont mesurées en un point donné de l'entrefer. Chaque fonction est accumulée sur un temps  $t_a$  de l'ordre de 3–5 s. Le temps où débute la corrélation est stockée dans un fichier afin de pouvoir associer à chaque mesure de vitesse, un temps donné. Notons que  $t_a$  est petit par rapport aux dynamiques intrinsèques du système (100–500 s). Nous avons aussi vérifié que  $t_a$  n'influence pas la mesure de la vitesse, lorsque ce dernier est choisi entre 1 et 5 s.

La figure 5.28.a présente une mesure de vitesse locale obtenue en un point donné de l'entrefer  $x_2 = 0.46$  mm et au même cisaillement  $\dot{\gamma} = 22.5$   $s^{-1}$ . Le point  $x_2$  est situé dans la bande fortement cisailée, dans la zone où la vitesse locale fluctue fortement (cf fig. 5.25). Cette série comporte 2250 points ce qui correspond à une durée de 11500 s environ. La vitesse locale présente clairement une dynamique complexe composée d'oscillations de périodes comprises entre 100 et 1000 s. Le spectre de puissance obtenu à partir de cette série

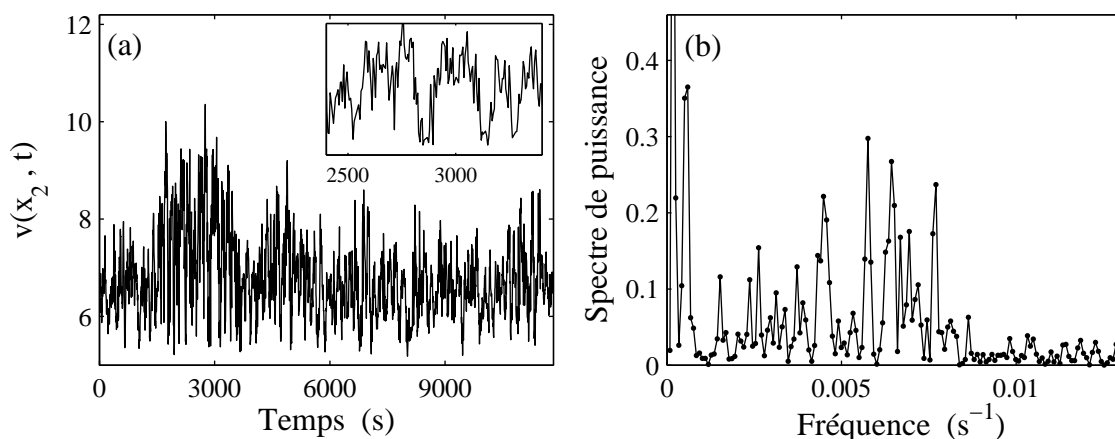


FIG. 5.28 – (a) Série  $v(x_2, t)$  mesurée en  $x_2 = 0.46$  mm (cf. fig. 5.25.b). L'insert est un zoom centré sur quelques oscillations à  $t \simeq 3000$  s. (b) Spectre de puissance correspondant.

temporelle est présenté sur la figure 5.28.b. Ce spectre confirme la présence de dynamiques lentes de la vitesse locale.

Nous avons vu que l'amplitude des fluctuations dépend de la position dans l'entrefer. Pour savoir si la forme des fluctuations dépend elle aussi de l'espace, nous avons effectué des mesures en différents points de l'entrefer :  $x_1 = 0.07$ ,  $x_2 = 0.46$  et  $x_3 = 0.70$  mm et toujours au même cisaillement  $\dot{\gamma} = 22.5$  s $^{-1}$  et à  $T = 30^\circ\text{C}$  (cf. fig. 5.29).

- Mesure en  $x_1 = 0.07$  mm, *i.e.* au voisinage du rotor dans la bande fortement cisailée. La vitesse locale fluctue peu : la variation relative de la vitesse est de l'ordre de 4%, à savoir l'ordre de grandeur de l'incertitude de mesure intrinsèque du montage utilisé. Il est donc difficile d'analyser précisément cette série. Cependant, on remarque assez nettement la présence d'une dynamique lente caractérisée par des temps de l'ordre de 100 s. La figure 5.29 présente aussi la distribution de ces fluctuations. La ligne pointillée est la gaussienne (5.18) avec comme moyenne et déviation standard celles obtenues grâce à la mesure de  $v(x_1, t)$ . L'accord entre cette gaussienne et les données suggère que les fluctuations temporelles de la vitesse en  $x_1$  sont gaussiennes.
- Mesure en  $x_2 = 0.46$  mm, *i.e.* dans la bande fortement cisailée. La vitesse locale fluctue fortement, l'amplitude de ces fluctuations est de l'ordre de 14%. Comme précédemment discuté, cette série présente une dynamique lente caractérisée par des temps de l'ordre de 100 à 1000 s. La PDF de cette série temporelle est présentée sur la figure 5.29, ainsi que la gaussienne de moyenne et déviation standard calculées à partir de la série  $v(x_2, t)$ . L'accord entre la PDF et la gaussienne est moins bon

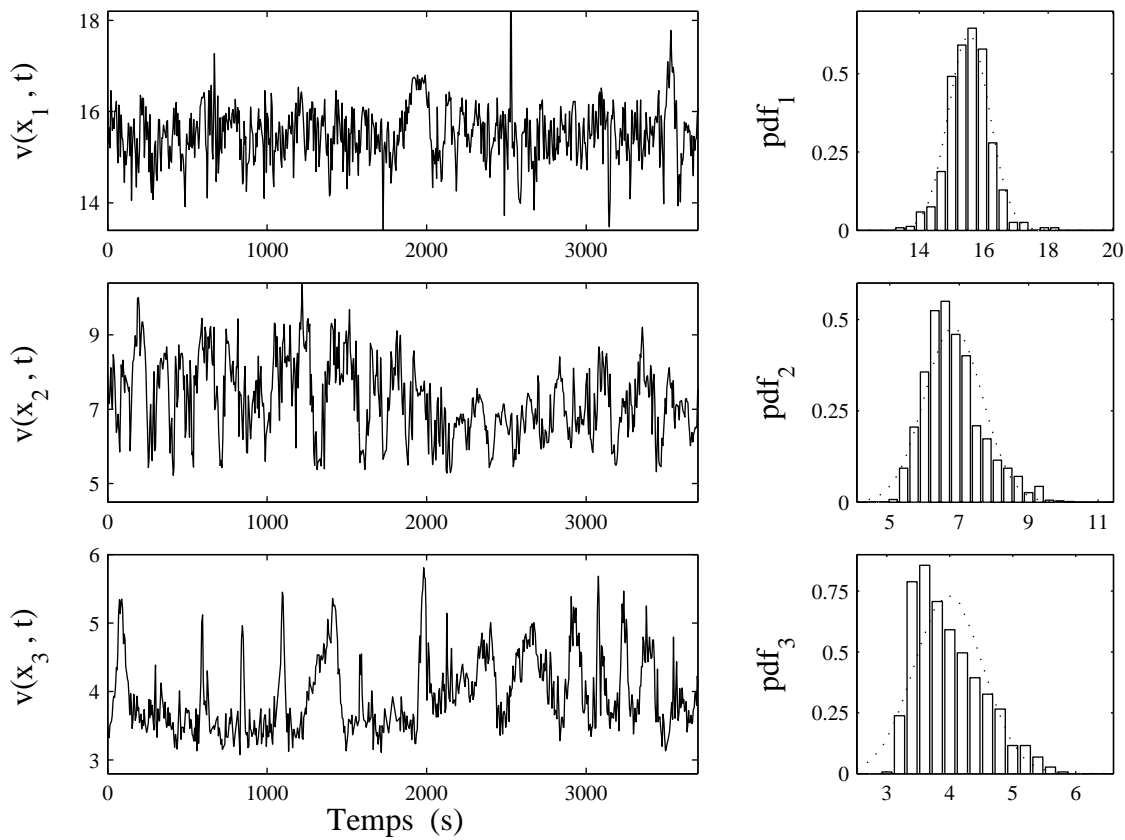


FIG. 5.29 – Mesures de la vitesse locale en différents points de l’entrefer :  $x_1 = 0.07$ ,  $x_2 = 0.46$  et  $x_3 = 0.70$  mm (cf. lignes verticales sur la figure 5.25.b). Ces mesures *n’ont pas* été réalisées simultanément. À droite de chaque série est présentée la distribution de vitesses correspondante. Les lignes pointillées sont les gaussiennes (5.18) avec comme moyennes et déviations standard celles calculées à partir des séries temporelles  $v(x_i, t)$ .

que pour  $v(x_1, t)$ . La distribution de probabilité présente en effet une très légère dissymétrie : il semble qu’il y ait plus d’événements à grandes vitesses, qu’à petites vitesses.

- Mesure en  $x_3 = 0.70$  mm, *i.e.* dans la bande faiblement cisailée. Rappelons que l’interface entre les deux bandes est située approximativement en  $x = 0.60$  mm. La vitesse locale fluctue par « intermittence » entre une ligne de base quasiment constante ( $\simeq 3.5$  mm.s $^{-1}$ ) et une valeur plus grande (5–6 mm.s $^{-1}$ ). La durée de ces « sauts » varie entre 50 et 300 s et la fréquence entre 100 et 300 s. La distribution des vitesses confirme cette dynamique intermittente. En effet, la distribution est fortement dissymétrique et présente une « queue » d’événements rares aux grandes

vitesse. La vitesse la plus probable est nettement inférieure à la vitesse moyenne. Il est clair que la dynamique n'est pas gaussienne.

Dans ce paragraphe, nous avons mis en évidence une dynamique de la vitesse locale présentant des fréquences de l'ordre de 100 à 1000 s. Nous avons vu précédemment que l'amplitude de ces fluctuations dépendait de la position dans l'entrefer. Les mesures réalisées ici montrent que la forme de ces fluctuations dépend elle aussi de l'espace : au voisinage du rotor, ces dernières sont quasiment gaussiennes alors que dans la bande faiblement cisailée, juste après l'interface entre les bandes, la vitesse locale fluctue par intermittence. Avant de donner une image spatio-temporelle de ces fluctuations, nous allons montrer que la structure du fluide présente elle aussi une dynamique complexe.

### 5.2.3 Fluctuations structurelles

Le montage utilisé permet de réaliser différentes mesures simultanément : une mesure rhéologique ( $\sigma, \dot{\gamma}$ ), une mesure de la vitesse locale  $v(x)$  et une mesure de la structure du fluide. Cette dernière, basée sur la diffusion statique de la lumière, correspond à une mesure *intégrée* de la structure du fluide le long du gradient de vitesse  $\nabla v$ . En effet, le faisceau laser permettant d'obtenir les images de diffraction traverse la cellule le long du gradient de vitesse (cf. fig. 2.3, page 54).

À partir des images de diffraction obtenues dans le plan  $(q_v, q_z)$ , nous pouvons définir un paramètre  $\phi$  caractérisant le contraste des pics sur l'anneau de diffraction (cf. chapitre 2, page 69).  $\phi$  est défini à partir des images de diffraction comme la différence entre l'intensité moyenne dans les régions de l'anneau où les pics sont présents  $I_{\max}$  et l'intensité moyenne des régions de l'anneau où aucun pic n'est présent  $I_{\min}$ , *i.e.*  $\phi = I_{\max} - I_{\min}$ . Lorsque les oignons sont tous désordonnés, l'anneau est isotrope et  $\phi = 0$ . Lorsque les pics apparaissent,  $\phi$  n'est plus nul et sa valeur indique le contraste des pics sur l'anneau.

La figure 5.30 présente le paramètre  $\phi$  en fonction du temps, mesuré lors de l'état stationnaire rhéologique à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  et à  $T = 30^\circ\text{C}$ . Afin d'améliorer le rapport signal sur bruit, chaque image analysée correspond à une moyenne de 5 images séparées de 40 ms. L'intervalle de temps entre chaque point est 10 s. Les valeurs de  $\phi$  sont positives car l'anneau présente des pics de diffraction. Ces derniers sont liés à l'organisation feuilletée des oignons dans la bande fortement cisailée (cf. fig. 5.25). La figure 5.30 montre nettement que le paramètre  $\phi$  fluctue dans le temps. Une fois encore, ces fluctuations sont lentes et présentent des temps caractéristiques de l'ordre de 100 s. Ainsi il est clair que la structure du fluide *intégrée* le long de  $\nabla v$ , présente elle aussi une dynamique complexe.

Insistons cependant sur le fait que ces fluctuations ont une amplitude faible. Ces fluc-

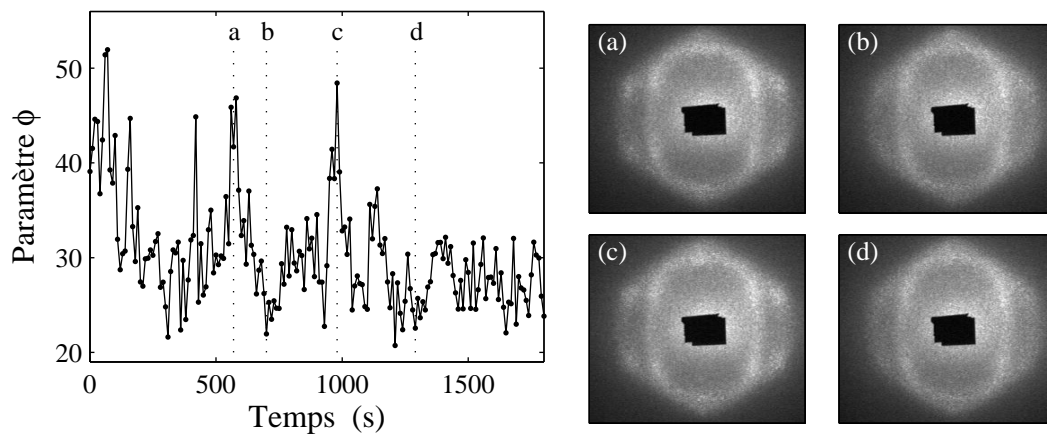


FIG. 5.30 – Paramètre  $\phi(t)$  mesuré lors de l'état stationnaire de la figure 5.26 à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  et à  $T = 30^\circ\text{C}$ . Les figures (a)–(d) correspondent aux images prises aux temps indiqués par les lignes pointillées. Ces images indiquent la variation du contraste des pics lorsque  $\phi$  est maximal (a et c) et minimal (b et d)

tuations de structure ne sont pas comparables aux *oscillations* structurales détaillées dans le chapitre 2 et obtenues à contrainte imposée, notamment celles mesurées dans l'entrefer d'épaisseur  $e = 0.5 \text{ mm}$ , où la structure du fluide oscille entre un état (quasiment) désordonné et un état (quasiment) ordonné (cf. fig. 2.18, page 69). Dans le cas présent, la structure du fluide présente de très faibles fluctuations autour d'un état feuilleté (cf. images de diffraction sur la figure 5.30).

#### 5.2.4 Quelques images « instantanées » de l'écoulement

Les expériences présentées dans les paragraphes précédents suggèrent toutes que les fluctuations observées correspondent au mouvement de la bande fortement cisailée dans l'entrefer. En effet, si l'épaisseur de la bande fortement cisailée fluctue, on s'attend à trouver l'ensemble des résultats précédents : des fluctuations de la structure du fluide intégrée le long de  $\nabla v$ , des fluctuations de vitesse localisées et une dynamique intermittente au voisinage de l'interface séparant les bandes de cisaillement. Dans ce paragraphe, nous allons reprendre l'analyse des expériences moyennées effectuées à  $T = 30^\circ\text{C}$  dans la section précédente, page 173. Chaque profil mesuré correspondait alors à une moyenne d'un grand nombre de profils individuels consécutifs. Le temps de mesure d'un profil est de l'ordre de 2–3 min. Par ailleurs, les périodes des fluctuations de la vitesse locale s'étendent aussi de 1 à 5 min : lors de la mesure d'un profil, il est probable que la vitesse locale fluctue. Le profil



obtenu n'est donc pas une image instantanée de l'écoulement. Cependant, certains profils montrent clairement que l'écoulement est resté quasiment stationnaire lors de la mesure. Nous allons voir que ces profils particuliers confirment le scénario selon lequel l'épaisseur de la bande fortement cisailée fluctue.

La figure 5.31 présente deux profils individuels obtenus à  $\dot{\gamma} = 15 \text{ s}^{-1}$ , ainsi que la moyenne effectuée sur les 13 profils individuels, préalablement présentée sur la figure 5.7, page 175. À ce cisaillement, le profil moyen est quasiment linéaire et présente de fortes

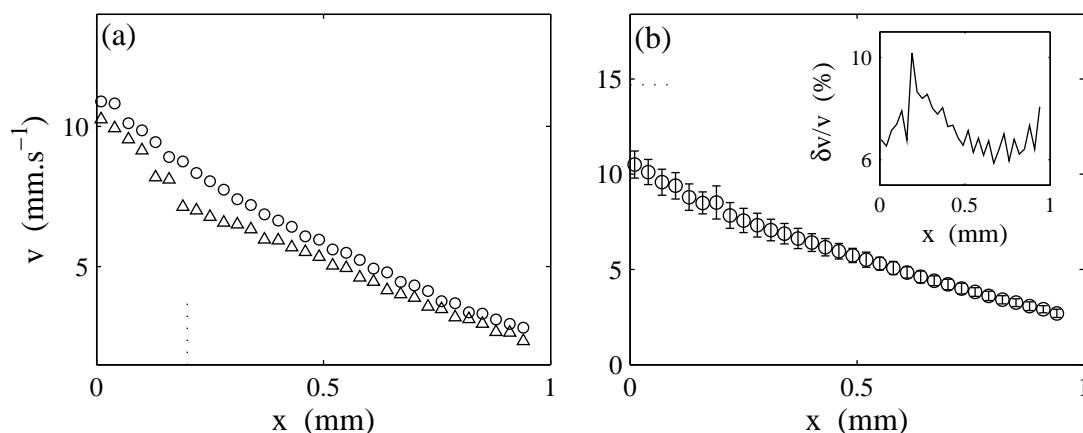


FIG. 5.31 – (a) Deux profils individuels obtenus à  $\dot{\gamma} = 15 \text{ s}^{-1}$  et à  $T = 30^\circ\text{C}$ . La ligne pointillée indique  $x = 0.20 \text{ mm}$ . (b) Moyenne de 13 profils au même cisaillement et présentée précédemment sur la figure 5.7, page 175. La ligne pointillée indique la vitesse du rotor. L'insert présente l'amplitude des fluctuations relatives de la vitesse en fonction de la position  $x$ .

fluctuations localisées en  $x \simeq 0.20 \text{ mm}$ . Parmi les mesures individuelles, on trouve effectivement un profil quasiment linéaire ( $\circ$ ). Le second profil, quant à lui, présente clairement une bande fortement cisailée au rotor ( $\triangle$ ). L'épaisseur de cette dernière est approximativement  $0.1 \text{ mm}$ . Ces « images instantanées » de l'écoulement ont été probablement obtenues lorsque l'écoulement était quasiment stationnaire pendant le temps de la mesure ( $\simeq 2\text{--}3 \text{ min}$ ). Soulignons que ces images instantanées montrent clairement que la vitesse du fluide au rotor reste quasiment constante dans le temps.

À plus hauts cisaillements, dans la zone de coexistence, il est difficile de trouver de telles images instantanées. En effet, les fluctuations sont trop importantes et probablement trop rapides. On peut cependant extraire des mesures, certains profils extrêmes suggérant un mouvement de la bande fortement cisailée. La figure 5.32 par exemple, présente deux profils de vitesse obtenus à partir d'une moyenne sur plusieurs profils individuels extraits de la série

de 13 profils mesurés à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$ . À ce cisaillement, le profil moyen présente une bande fortement cisailée dont l'épaisseur est de l'ordre de 0.4 mm (cf. fig. 5.32.b). La figure 5.32.a

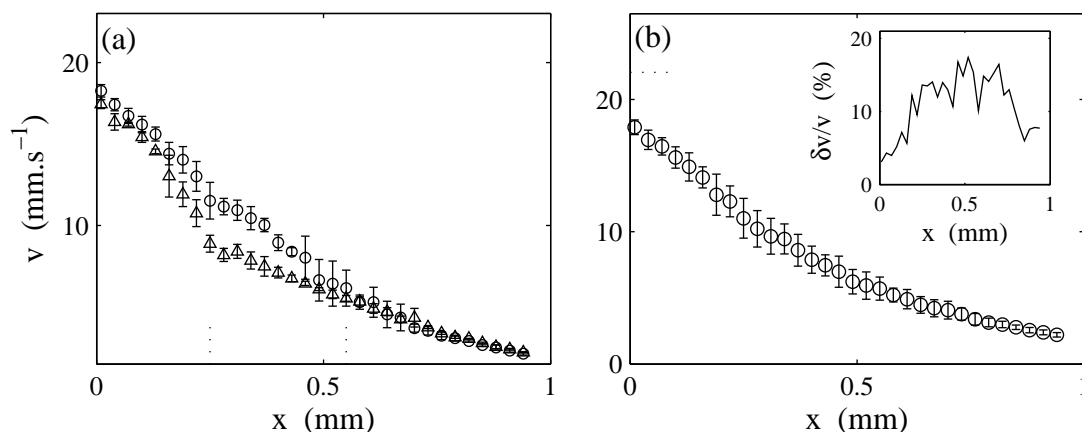


FIG. 5.32 – (a) Deux profils obtenus à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  et à  $T = 30^\circ\text{C}$ , à partir de d'une moyenne de 4 ( $\Delta$ ) et 3 profils ( $\circ$ ) individuels. Les lignes pointillées indiquent les positions  $x = 0.25$  et  $x = 0.55$  mm. (b) Moyenne de 13 profils au même cisaillement et présentée sur la figure 5.7, page 175. La ligne pointillée indique la vitesse du rotor. L'insert présente l'amplitude des fluctuations relatives de la vitesse en fonction de la position  $x$ .

révèle deux cas extrêmes : un des profils présente une bande d'épaisseur 0.55 mm environ, alors que l'épaisseur de la bande dans le second profil est 0.25 mm. Il est important de noter qu'encore une fois, la vitesse du fluide au rotor reste constante : le cisaillement dans la bande fortement cisailée a changé entre ces deux profils. Ces mesures montrent aussi pourquoi, le profil de la figure 5.32.b, une fois moyenné, présente une forme beaucoup plus lisse et donc une rupture de pente moins nette que les profils de la figure 5.32.a.

Pour finir, la figure 5.33 présente deux profils moyennés sur plusieurs profils extraits d'une série de 20 mesures à  $\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$ . À ce cisaillement, la bande d'ignons feuilletés a envahi l'entrefer de la cellule et le profil est homogène. Les fluctuations temporelles sont en revanche particulièrement importantes (cf. 5.33.b). Ces profils moyennés particuliers permettent de visualiser ces fluctuations. Une de ces mesures présente un profil quasiment linéaire, alors que le second présente une discontinuité de cisaillement en  $x \simeq 0.60$  mm suggérant la nucléation d'une bande faiblement cisailée au stator.

Toutes ces mesures confirment l'hypothèse selon laquelle les fluctuations de vitesse locale sont liées aux fluctuations spatiales des bandes dans l'entrefer. Ces données montrent aussi les limites de notre montage pour étudier cette complexité spatio-temporelle. Les

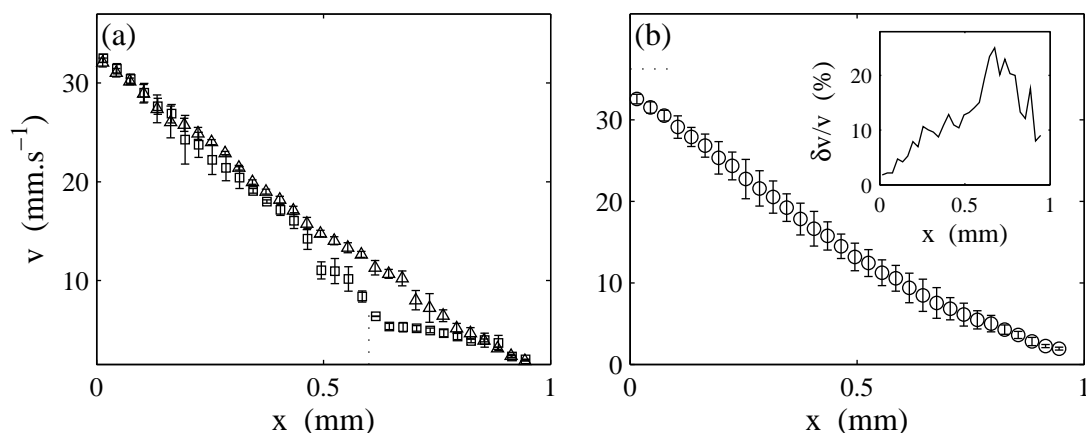


FIG. 5.33 – (a) Deux profils obtenus à  $\dot{\gamma} = 37 \text{ s}^{-1}$  et  $T = 30^\circ\text{C}$ , à partir de d’une moyenne de 3 ( $\square$ ) et 2 profils ( $\triangle$ ) individuels. La ligne pointillée indique  $x = 0.60$  mm. (b) Moyenne de 20 profils au même cisaillement et présentée sur la figure 5.7, page 175. La ligne pointillée indique la vitesse du rotor. L’insert présente l’amplitude des fluctuations relatives de la vitesse en fonction de la position  $x$ .

profils présentés sur les figures 5.32.a et 5.33.a semblent suggérer la présence de plus de deux bandes de cisaillement dans l’entrefer. Comme le montage utilisé ne donne pas une image instantanée de l’écoulement, il est difficile de confirmer ces hypothèses.

### 5.2.5 Une approche mécanique de ces fluctuations

Les résultats des expériences précédentes peuvent être résumés de la façon suivante :

- la vitesse locale fluctue fortement au voisinage de l’interface entre les deux bandes ;
- la vitesse du fluide au rotor est approximativement constante lorsque  $\dot{\gamma}$  est imposé ;
- la vitesse locale fluctue peu dans la bande faiblement cisailée ;
- les fluctuations de vitesse sont liées au mouvement de la bande dans l’entrefer ;
- à  $\dot{\gamma}$  imposé, la boucle de rétroaction du rhéomètre permet de maintenir  $\dot{\gamma}$  sans aucune fluctuation temporelle significative ( $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma} = 0.1\%$ ) ;
- à  $\dot{\gamma}$  imposé, la contrainte  $\sigma$  fluctue faiblement ( $\delta\sigma/\sigma \simeq 1\text{--}5\%$ ).

Pour illustrer et comprendre ces résultats, il est utile de s’appuyer sur les équations permettant d’ajuster les profils de vitesse  $v(x)$  à partir des données de rhéologie globale  $(\sigma, \dot{\gamma})$  et des vitesses de glissement  $v_{si}$  (cf. équations (5.11)–(5.15), page 190). Ces équations permettront d’illustrer simplement le fait que de faibles fluctuations des paramètres du modèle, en particulier des contraintes  $\sigma$  et  $\sigma^*$ , permettent d’engendrer des fluctuations

importantes de la vitesse locale. Grâce à ce modèle, nous montrerons aussi que ce sont les fluctuations de la contrainte  $\sigma^*$ , et non celles de  $\sigma$ , qui permettent de reproduire le plus correctement les résultats.

### Une première hypothèse : les fluctuations de la contrainte $\sigma$

Dans un premier temps, nous allons faire l'hypothèse que ce sont les fluctuations de contrainte mesurées qui sont à l'origine des fluctuations de la vitesse. Pour illustrer ce point, nous allons reprendre l'analyse des expériences réalisées à  $T = 30^\circ\text{C}$  et à cisaillement imposé, détaillées dans le paragraphe 5.1.2, page 173. La figure 5.34 présente la réponse temporelle de la contrainte pour le palier de cisaillement à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  ainsi que le profil de vitesse correspondant. Encore une fois, la contrainte présente de faibles fluctuations temporelles ( $\delta\sigma/\sigma \simeq 1\text{--}2\%$ ). Le profil de vitesse présente deux bandes de cisaillement séparées par une interface située en  $x \simeq 0.4 \text{ mm}$ . Précédemment, nous avons utilisé les équations (5.11)–(5.15) pour ajuster ce profil de vitesse à l'aide de l'unique paramètre libre  $\sigma^*$ , la contrainte locale à l'interface entre les bandes (cf. fig. 5.18, page 193). Pour réaliser cet ajustement, nous nous sommes appuyés sur les données de rhéologie moyennées dans le temps. Les courbes de la figure 5.34.b correspondent quant à elles, aux profils de vitesse théoriques calculés à partir de la série  $\sigma(t)$  mesurée. Aux fluctuations temporelles de la contrainte  $\sigma$ , sont associées des fluctuations de l'épaisseur de la bande fortement cisailée. En effet, l'épaisseur de cette dernière est donnée par la relation :

$$\delta = R_1 \left( \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} - 1 \right), \quad (5.19)$$

où  $\sigma_1 = 2R_1^2\sigma/(R_1^2 + R_2^2)$  est la contrainte au rotor. De faibles fluctuations de contrainte  $\Delta\sigma_1$  engendrent de grandes variations du déplacement de la bande  $\Delta\delta$  :

$$\frac{\Delta\delta}{e} = \frac{R_1}{2e} \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} \frac{\Delta\sigma_1}{\sigma_1} \simeq \frac{R_1}{2e} \frac{\Delta\sigma_1}{\sigma_1}. \quad (5.20)$$

Cette dernière relation montre que le rapport d'aspect de la cellule de Couette joue le rôle « d'amplificateur » des fluctuations de contrainte. En effet, dans une cellule de Couette, il existe un facteur  $R_1/(2e)$  entre les fluctuations de la contrainte et le déplacement relatif de la bande. Dans la limite d'un rapport d'aspect nul, la moindre fluctuation de contrainte peut faire « disparaître » la bande de l'entrefer. Dans notre cas, la variation de contrainte est de l'ordre de 1–2% et les caractéristiques géométriques sont  $e = 1$  et  $R_1 = 24 \text{ mm}$ . Le mouvement de la bande est alors  $\Delta\delta \simeq 0.12\text{--}0.24 \text{ mm}$ . C'est bien ce que montrent les profils théoriques de la figure 5.34.b. Ces fluctuations spatiales de la bande fortement

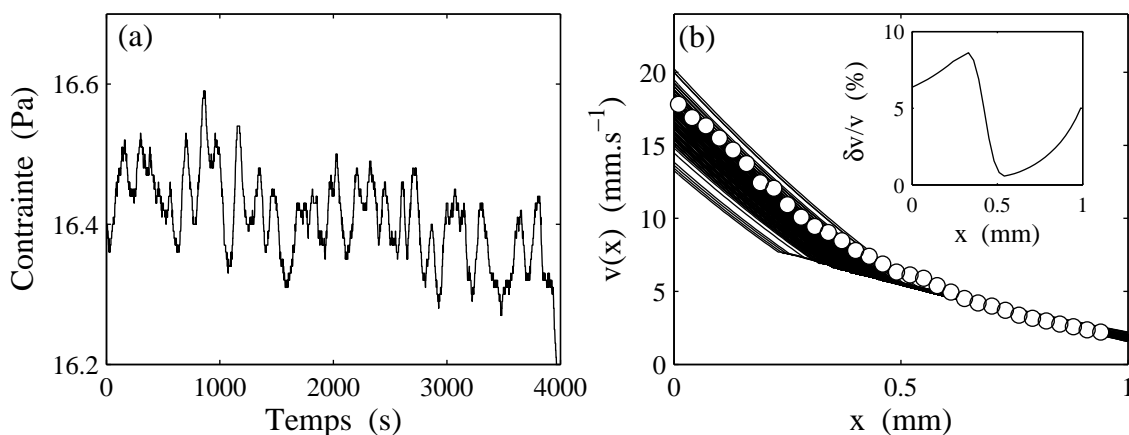


FIG. 5.34 – (a) Réponse temporelle de la contrainte pour le palier de cisaillement  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  de l'expérience détaillée dans la section 5.1.2, page 173. (b) Profil de vitesse expérimental ( $\circ$ ). Le faisceau de courbes correspond aux profils de vitesse théoriques calculés à l'aide des équations (5.11)–(5.15) à partir de la série  $\sigma(t)$ . L'insert présente l'amplitude des fluctuations de la vitesse locale calculée à partir des profils théoriques.

cisailée engendrent des fluctuations de la vitesse locale. L'insert de la figure 5.34.b montre alors que l'amplitude relative des fluctuations théoriques est grande dans la bande fortement cisailée ( $\simeq 5\text{--}10\%$ ) et quasiment nulle dans la bande faiblement cisailée ( $0\text{--}5\%$ ).

Cependant, cette approche ne peut reproduire un fait expérimental particulièrement robuste. En effet, le modèle montre que la vitesse du fluide au rotor fluctue fortement, alors que les expériences montrent clairement que ce n'est pas le cas. Par ailleurs, le modèle permet aussi de calculer la vitesse du rotor. Cette dernière est donnée par la relation :

$$v_0 = v(x = 0) + v_{s1}, \quad (5.21)$$

où  $v_{s1}$  est la vitesse de glissement au rotor. Le modèle implique donc que la vitesse du rotor  $v_0$  fluctue énormément. Il est clair que ce n'est pas le cas dans nos expériences, puisque le cisaillement indiqué par le rhéomètre (et donc la vitesse du rotor) est parfaitement constant ( $\delta\dot{\gamma}/\dot{\gamma} = 0.1\%$ ). L'erreur commise ici provient du fait que les équations du modèle sont monovaluées, *i.e.* à toute valeur de  $v_0$  correspond une unique valeur de contrainte  $\sigma$ . On ne peut pas donc avoir de fluctuations de la contrainte  $\sigma$  tout en maintenant constante la vitesse  $v_0$ . Nous allons voir que le scénario correct pour reproduire les expériences est celui où la contrainte  $\sigma^*$  fluctue.

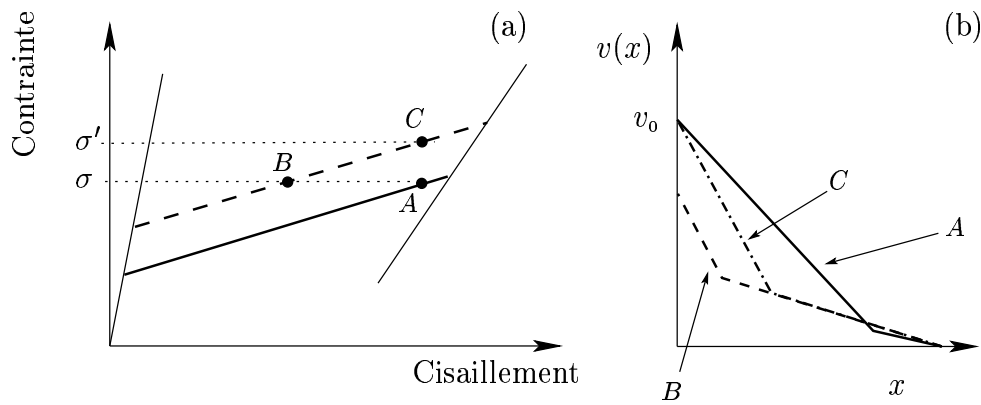


FIG. 5.35 – (a) Courbe d’écoulement schématique obtenue en écoulement de Couette. Le plateau initial est représenté par la ligne épaisse continue et le point  $A$  est l’état initial. La ligne épaisse en traits-tirés est le plateau après la fluctuation de contrainte  $\sigma^*$ . Le point  $B$  est alors l’état stationnaire à contrainte  $\sigma$  imposée. Le point  $C$  est l’état stationnaire à cisaillement imposé : la contrainte a augmenté et pris la valeur  $\sigma'$  pour maintenir  $v_0$  constante. (b) Profils de vitesse correspondants.  $A$  : ligne continue,  $B$  : ligne en traits-tirés et  $C$  ligne en pointillés et traits-tirés.

### Une seconde hypothèse : les fluctuations de la contrainte $\sigma^*$

Tout au long du paragraphe précédent, nous avons maintenu un paramètre constant : la contrainte  $\sigma^*$ . Rappelons que  $\sigma^*$  correspond à la valeur de contrainte sélectionnée à la transition et fixe ainsi le plateau de contrainte sur la courbe d’écoulement.  $\sigma^*$  correspond de plus à la contrainte locale à l’interface entre les bandes de cisaillement. Nous allons montrer ici que si  $\sigma^*$  fluctue alors cela engendre des fluctuations de la vitesse locale et de la contrainte globale, tout en maintenant constante la valeur de la vitesse au rotor  $v_0$ . Pour illustrer cette idée, prenons le cas très simplifié d’un fluide qui ne glisse pas aux parois et dont la courbe d’écoulement schématique est celle de la figure 5.35. Cette courbe d’écoulement obtenue en géométrie de Couette, présente deux branches séparées par un plateau incliné. Supposons que l’on parte de l’état initial  $A$  situé sur le plateau. Le profil de vitesse présente alors deux bandes de cisaillement. Si la contrainte  $\sigma^*$  fluctue et prend instantanément une valeur plus grande, le plateau de contrainte se déplace le long de la courbe d’écoulement (cf. ligne pointillée sur la figure 5.35.a). Lorsque la contrainte est fixée dans l’expérience, l’état stable est alors au point  $B$  et l’épaisseur de la bande fortement cisailée a diminué (cf. fig.5.35.b). En effet, cette dernière est donnée par l’équation :

$$\delta = R_1 \left( \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} - 1 \right). \quad (5.22)$$

Notons que le changement de la valeur de  $\sigma^*$  s'accompagne aussi d'un changement de la vitesse au rotor, lorsque la contrainte est fixée dans l'expérience.

Cependant, nos expériences ont été effectuées à cisaillement imposé. Lors de la fluctuation de  $\sigma^*$  et donc lors du déplacement du plateau sur la courbe d'écoulement, la boucle de rétroaction du rhéomètre modifie la contrainte appliquée de sorte que la valeur de la vitesse au rotor soit maintenue constante. L'état stable est alors au point  $C$  : le profil de vitesse correspondant a fortement changé mais la vitesse au rotor n'a pas été modifiée. Dans ce scénario, les fluctuations de contrainte  $\sigma^*$  engendrent des variations locales de la vitesse. Ces fluctuations s'accompagnent aussi de fluctuations de la contrainte permettant de maintenir la vitesse du rotor  $v_o$  constante.

Pour illustrer quantitativement ces idées, nous avons repris les équations précédentes. Pour modéliser ces fluctuations de contrainte  $\sigma^*$ , nous avons pris la valeur précédemment trouvée pour ajuster les profils de vitesse à  $T = 30^\circ\text{C}$ , *i.e.*  $\sigma^* = 16.5 \text{ Pa}$ , à laquelle nous avons ajouté des fluctuations temporelles contrôlées de  $\sigma^*$ . Afin de reproduire les données, nous avons *arbitrairement* choisi la forme présentée sur la figure 5.36.a et correspondant

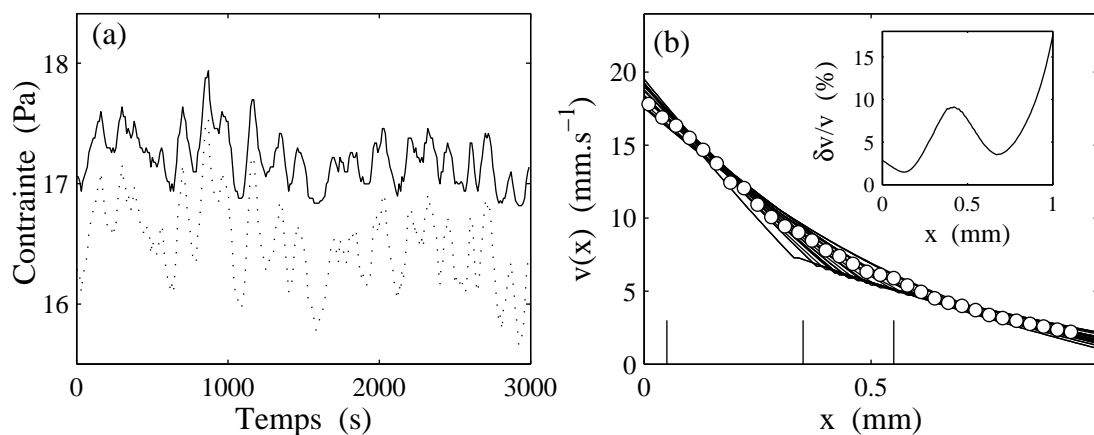


FIG. 5.36 – (a) Donnée de la fluctuation temporelle de la contrainte  $\sigma^*$  (ligne pointillée). Série  $\sigma_1(t)$  calculée à partir de ces fluctuations de  $\sigma^*$ . (b) Profil de vitesse expérimental ( $\circ$ ). Le faisceau de courbes correspond aux profils de vitesse théoriques calculés à l'aide des équations (5.11)–(5.15) à partir de la série  $\sigma^*(t)$  et en adaptant  $\sigma_1$  pour maintenir la vitesse du rotor constante. L'insert présente l'amplitude des fluctuations de la vitesse locale calculée à partir des profils théoriques. Les lignes verticales indiquent les positions  $x_1 = 0.05$ ,  $x_2 = 0.35$  et  $x_3 = 0.55$  mm où sont calculées les séries temporelles présentées sur la figure 5.38.

aux fluctuations mesurées de la contrainte  $\sigma(t)$  indiquée par le rhéomètre pour le palier

de cisaillement à  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$  (cf. fig. 5.34.a). On se donne ensuite un ensemble continu de contrainte  $\sigma$  indiquée par le rhéomètre. À l'instant  $t$  on calcule les profils de vitesse correspondant à ce continuum de valeurs  $\sigma$  et pour la valeur  $\sigma^*(t)$ . Rappelons que ce calcul est effectué grâce aux relations (5.11)–(5.15) et grâce aux données des ajustements des branches homogènes et des vitesses de glissement expérimentales. Parmi cet ensemble continu de profils, on cherche la valeur  $\sigma$  telle que la vitesse au rotor soit celle donnée par le rhéomètre.

La figure 5.36 présente la série  $\sigma(t)$  ainsi *calculée* et les profils de vitesse correspondants. Il est important de noter que la vitesse du rotor a été maintenue constante dans ce calcul en faisant varier à chaque pas de temps la contrainte  $\sigma$ . Par ailleurs, les fluctuations de la vitesse sont toujours très importantes et parfaitement localisées à l'interface séparant les deux bandes : la vitesse du fluide au rotor ne fluctue pas<sup>7</sup>. Le profil expérimental est quant à lui parfaitement reproduit par ces profils théoriques. Ces équations permettent de reproduire fidèlement la localisation observée dans les expériences précédentes à cisaillement imposé.

Il est important de souligner que seules les fluctuations de  $\sigma^*$  peuvent rendre compte des expériences présentées ici. En effet, si on suppose que les fluctuations de vitesse sont uniquement liées aux fluctuations de la contrainte  $\sigma$ , il est impossible de maintenir fixe la vitesse du rotor. Maintenant que nous avons une interprétation pour les fluctuations observées, nous pouvons aller plus loin dans l'analyse de la localisation de ces dernières.

### Déplacement de la bande et forme des fluctuations dans l'entrefer

Il est commode de représenter ces profils de vitesse théoriques à l'aide d'un diagramme spatio-temporel (cf. fig. 5.37.a où les profils sont représentés en niveau de gris). Cette représentation permet de mieux visualiser le mouvement de la bande fortement cisillée dans l'entrefer et permet aussi de mieux comprendre pourquoi les distributions de vitesse dépendent de  $x$ . En effet, dans la bande fortement cisillée, les fluctuations de vitesse locale sont approximativement celles de la contrainte  $\sigma(t)$ , alors qu'au voisinage du stator, dans la bande faiblement cisillée, la vitesse reste à peu près constante. Cependant, au voisinage de l'interface, la vitesse locale fluctue par « intermittence » : chaque « saut » de vitesse correspond au passage de la bande fortement cisillée. Pour illustrer quantitativement cette image, la figure 5.38 présente les distributions des fluctuations théoriques de la vitesse en différents points de l'entrefer :  $x_1 = 0.05$ ,  $x_2 = 0.35$  et  $x_3 = 0.55$  mm. On retrouve

---

<sup>7</sup> La faible variation de la vitesse au rotor est due au glissement. En effet,  $v_0$  est maintenue fixée dans le calcul, seule  $v_{s1}$  fluctue à travers sa dépendance en  $\sigma_1$ .



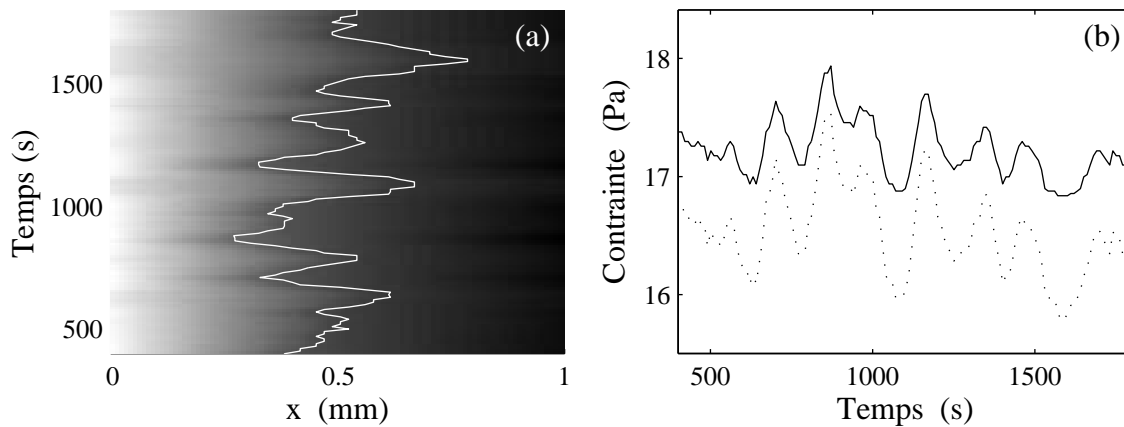


FIG. 5.37 – (a) Diagramme spatio-temporel calculé à l’aide des équations (5.11)–(5.15) et pour la série temporelle  $\sigma^*(t)$  présentée en pointillés sur la figure (b) au cisaillement appliqué  $\dot{\gamma} = 22.5 \text{ s}^{-1}$ . La ligne blanche est l’épaisseur  $\delta(t)$  de la bande fortement cisillée calculée à partir de la relation (5.22). Les profils de vitesse sont codés en niveau de gris. Le blanc correspond aux grandes vitesses et le noir aux faibles vitesses. (b) La courbe continue est la série  $\sigma_1(t)$  calculée.

qualitativement les résultats de la section précédente. En effet, dans la bande fortement cisillée *i.e.* pour  $x_1 = 0.05 \text{ mm}$ , les fluctuations de la vitesse suivent approximativement les fluctuations de contrainte  $\sigma(t)$ . La PDF est alors celle de la contrainte. Au voisinage de l’interface en  $x_3 = 0.55 \text{ mm}$ , les fluctuations sont fortement dissymétriques, la vitesse locale fluctue par « intermittence » entre une ligne de base constante et une valeur plus élevée de la vitesse.

### Fluctuations de $\sigma^*$ à contrainte imposée

Dans le cas où la contrainte est imposée dans l’expérience à  $T < T_c$ , les fluctuations de contrainte  $\sigma^*$  engendrent des fluctuations de la vitesse au rotor  $v_0$  et donc du cisaillement indiqué par le rhéomètre. La situation est alors celle de la figure 5.35, page 213. Une fluctuation de la valeur  $\sigma^*$  entraîne un déplacement du plateau sur la courbe d’écoulement. L’écoulement initialement au point *A* se retrouve alors au point *B* et l’épaisseur de la bande fortement cisillée s’est déplacée *ainsi* que les cisaillements locaux dans les deux bandes. La fluctuation relative de la bande est facilement calculable dans ce cas précis. À une fluctuation  $\Delta\sigma^*$  est associée une fluctuation relative de la bande donnée par :

$$\frac{\Delta\delta}{e} = -\frac{R_1}{2e} \sqrt{\frac{\sigma_1}{\sigma^*}} \frac{\Delta\sigma^*}{\sigma^*} \simeq -\frac{R_1}{2e} \frac{\Delta\sigma^*}{\sigma^*}. \quad (5.23)$$

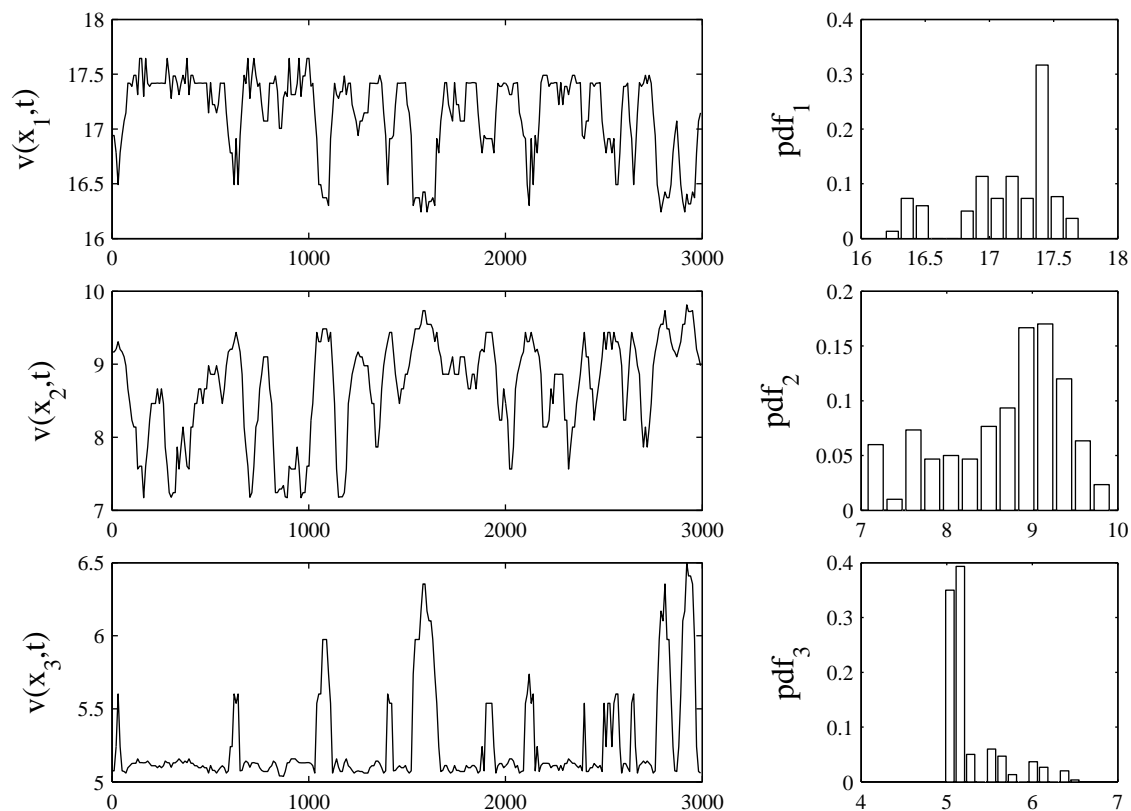


FIG. 5.38 – (a) Séries temporelles théoriques  $v(x_i, t)$  en différents points de l'entrefer :  $x_1 = 0.05$ ,  $x_2 = 0.35$  et  $x_3 = 0.55$  mm. Les distributions de ces fluctuations de vitesse sont présentées à droite de ces séries.

On retrouve ici le rôle « amplificateur » joué par le rapport d'aspect de la cellule  $R_1/e = 24$ . On comprend alors aisément pourquoi les fluctuations du cisaillement mesurées sont particulièrement importantes lorsque la contrainte  $\sigma$  est imposée (cf. fig. 5.20, page 195). Par ailleurs, dans l'hypothèse d'une fluctuation de  $\sigma^*$ , il est clair que les fluctuations de la vitesse sont localisées dans la bande fortement cisailée et ne s'annulent pas au rotor. Pour illustrer ce dernier point, nous allons reprendre brièvement l'analyse des données des expériences effectuées à contrainte imposée et à  $T = 26^\circ\text{C}$ , préalablement détaillées dans la section 5.1.6, page 194.

La figure 5.39 présente deux profils obtenus à partir d'une moyenne sur quelques profils individuels choisis parmi les 14 profils mesurés à la contrainte  $\sigma = 12.5$  Pa et à  $T = 26^\circ\text{C}$ . Le profil moyen quant à lui, est inhomogène et présente des fluctuations de vitesse importantes localisées entre  $x = 0$  et  $x \simeq 0.50$  mm. Les profils « extrêmes » montrent nettement un

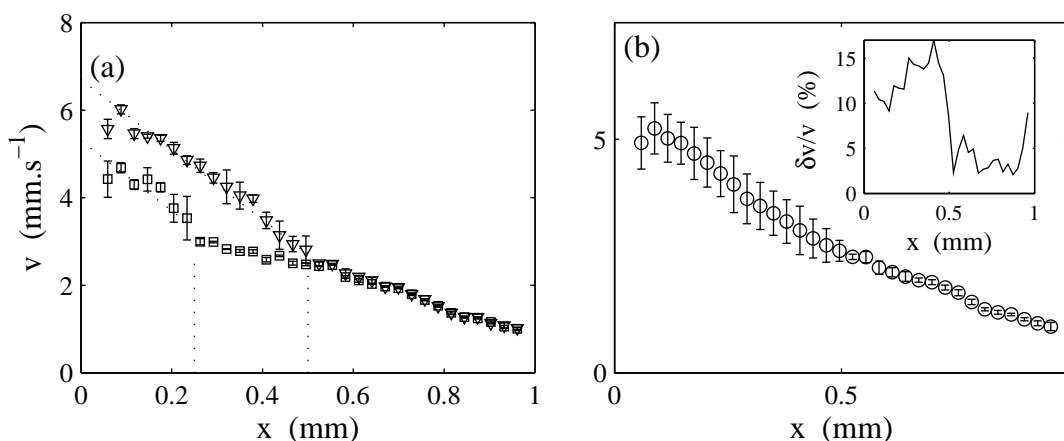


FIG. 5.39 – (a) Deux profils de vitesse obtenus à  $\sigma = 12.5$  Pa et  $T = 26^\circ\text{C}$ , à partir d’une moyenne sur 2 ( $\square$ ) et 2 ( $\nabla$ ) profils individuels. Les lignes verticales indiquent les positions  $x = 0.25$  et  $x = 0.50$  mm. Les lignes en pointillées sont des guides pour visualiser les bandes fortement cisillées. (b) Moyenne des 14 profils à la même contrainte et présentée précédemment sur la figure 5.22, page 197. L’insert présente les fluctuations de vitesse mesurées à partir des déviations standard des profils mesurés.

déplacement de la bande fortement cisillée dans l’entrefer. De plus, contrairement aux expériences précédentes effectuées à cisaillement imposé, la vitesse du fluide au rotor fluctue de façon importante comme le montrent les deux profils de la figure 5.39.a et l’insert de la figure 5.39.b. Lors des expériences à contrainte imposée, les fluctuations du cisaillement indiqué par le rhéomètre (cf. fig. 5.20, page 195) sont associées à un déplacement de la bande dans l’entrefer. Ces fluctuations ne peuvent être modélisées qu’à travers les fluctuations de la contrainte  $\sigma^*$  dans le modèle mécanique.

### 5.2.6 Limites du modèle mécanique : une signature du rhéochaos ?

Le modèle mécanique présenté précédemment permet de reproduire qualitativement plusieurs faits expérimentaux décrits dans cette section. Notamment, l’hypothèse selon laquelle la contrainte  $\sigma^*$  fluctue permet de comprendre les fluctuations de contrainte observées ainsi que celles de la vitesse locale. Il est évident que ce modèle mécanique ne permet pas de comprendre *pourquoi* la contrainte  $\sigma^*$  fluctue. Ces fluctuations sont par ailleurs extrêmement lentes et il est très peu probable que ces dernières soient dues à de simples vibrations mécaniques extérieures.

Le modèle précédent, de nature purement mécanique, ne comporte aucune équation

concernant la dynamique de la structure du fluide. Or, il est sans doute impossible de réduire la complexité de la texture ongon à une simple relation viscoélastique. Ce matériau possède en effet une structure propre pouvant se modifier sous l'écoulement. Une description complète du problème nécessiterait certainement de faire intervenir les équations dynamiques de la structure du fluide. De plus, le modèle mécanique suppose que le mouvement de la bande s'adapte automatiquement à une variation de contrainte. Ce n'est certainement pas le cas car la réalité microscopique est beaucoup plus complexe : le mouvement de la bande s'accompagne en effet d'un changement d'organisation des ognons. Il est probable que les équations dynamiques de la bande soient indispensables pour une description correcte de l'écoulement. Même si quelques modèles théoriques concernent ce point particulier [4, 157], il n'existe aucun modèle à notre connaissance, dans le cas de la transition de feuilletage.

Pour conclure, nous pensons que les fluctuations de vitesse locales observées dans les expériences précédentes ne sont rien d'autre qu'une signature du rhéochaos. On ne peut pas comprendre ces fluctuations et leur localisation en ne considérant qu'un modèle purement mécanique. En effet, seules les fluctuations de  $\sigma^*$  peuvent rendre compte des faits expérimentaux à travers le modèle mécanique.

### 5.3 Approche spatio-temporelle du rhéochaos

Pour finir ce chapitre, nous allons revenir sur la question qui nous avait motivés pour développer une méthode de vélocimétrie locale : le rhéochaos. À ce stade, il est utile de faire un bref résumé du travail effectué jusqu'à maintenant. Nous avons montré au chapitre 2 que le cisaillement pouvait présenter des comportements oscillants au voisinage de la transition de feuilletage pour des températures  $T \geq T_c = 27^\circ\text{C}$  et à contrainte imposée. Ces oscillations de cisaillement sont particulièrement surprenantes : il ne s'agit pas a priori d'une instabilité élastique ou d'un simple couplage mécanique car la structure du matériau oscille en phase avec le cisaillement sur des périodes extrêmement longues (environ 10 min). Nous avons alors montré que cette dynamique partageait de nombreuses similitudes avec des comportements chaotiques de basse dimensionnalité. Cependant, nous n'avons pas pu apporter de preuves définitives quant à la nature mathématique de ces comportements. Par ailleurs, nous avons clairement montré au chapitre 2 que les degrés de liberté spatiaux jouaient un rôle particulièrement important : l'écoulement est très certainement inhomogène au voisinage de la transition de feuilletage. Nous avons en effet montré que le rapport d'aspect de la cellule est un paramètre pertinent car il contrôle la

forme et l'amplitude des oscillations, ainsi que l'amplitude de la boucle d'hystérèse sur la courbe d'écoulement (cf. section 2.4.5, page 96).

Le montage décrit dans le chapitre 3 a été développé avec comme premier objectif, l'étude locale de cette instabilité temporelle. Dans les régions de paramètres où les réponses rhéologiques sont stationnaires au voisinage de transition de feuilletage (*i.e.*  $\dot{\gamma}$  imposé ou  $T < T_c$ ), nous avons montré à l'aide de ce montage une structuration spatiale de l'écoulement. Cette structuration spatiale est particulièrement complexe : non seulement les oignons « glissent » mais ils peuvent aussi présenter des bandes macroscopiques de différents cisaillements.

Cette structuration spatiale s'accompagne de fluctuations temporelles locales : l'épaisseur de la bande fortement cisillée a en effet sa propre dynamique dans l'entrefer. Cette dynamique peut simplement être interprétée grâce aux fluctuations de la contrainte  $\sigma^*$  à laquelle l'interface entre les bandes est stable. À cisaillement imposé, la réponse rhéologique globale est alors faiblement bruitée, seule la contrainte  $\sigma$  présente de faibles fluctuations temporelles liées aux fluctuations de  $\sigma^*$ . À contrainte imposée et pour  $T < T_c$ , le cisaillement indiqué par le rhéomètre est aussi faiblement bruité : la dynamique de l'épaisseur de la bande induit une dynamique de la vitesse du rotor. En revanche, la réponse rhéologique à contrainte imposée et  $T \geq T_c$  n'est plus simplement bruitée car le cisaillement peut présenter des oscillations de grande amplitude. Il existe donc une « structuration » temporelle de la dynamique à ces températures. Il est légitime de penser que ces oscillations proviennent de la dynamique de la bande dans l'entrefer.

Par la suite, nous allons utiliser le montage de vélocimétrie pour étudier ces oscillations globales de cisaillement et ainsi essayer de vérifier l'hypothèse du déplacement de la bande. Malheureusement, nous n'avons pas à ce jour suffisamment de preuves expérimentales pour dresser un scénario complet. Nous verrons cependant que l'hypothèse d'une complexité spatio-temporelle est pleinement justifiée.

### 5.3.1 Difficultés expérimentales

Avant de montrer quelques résultats, il est important de mentionner certaines difficultés expérimentales. En effet, nous avons souligné le fait que les oscillations de cisaillement sont particulièrement difficiles à contrôler et à reproduire. Pour le chapitre 5, un nouvel échantillon de phase lamellaire a dû être réalisé. Les concentrations d'octanol et de SDS choisies sont identiques à la formulation du chapitre 2. Cependant, les propriétés rhéologiques de cette phase lamellaire dépendent de manière importante des concentrations *exactes* des constituants. Nous ne connaissons donc pas avec une grande précision les zones

de contrainte et de température des différentes régions dynamiques correspondant au diagramme de la figure 2.10, page 61. L'étude qui permettrait de déterminer précisément ce diagramme n'a pas pu être effectuée par manque de temps.

Une seconde difficulté est liée au montage de vélocimétrie utilisé. En effet, ce montage ne donne pas une image instantanée de l'écoulement. Le temps pour obtenir un profil de vitesse complet est de l'ordre de 2 à 3 min. Il est donc difficile d'étudier un écoulement non-stationnaire à l'aide de cette technique, même dans le cas des dynamiques lentes du rhéochaos ( $\simeq 600$  s).

Pour l'ensemble de ces raisons, nous avons décidé d'étudier ces comportements dynamiques à l'aide de l'entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm. En effet, nous avons préalablement montré que la complexité temporelle était « simplifiée » dans cet entrefer réduit (cf. section 2.4.5, page 96). Les oscillations dans cette géométrie ont en effet une plus grande amplitude et présentent une forme relaxationnelle. Par ailleurs, nous pouvons espérer obtenir une « image » de l'écoulement dans cette géométrie réduite en mesurant de façon consécutive, la vitesse en quelques points seulement. Le protocole expérimental des expériences détaillées par la suite est le suivant :

- la température est fixée à  $T = 30^\circ\text{C}$  ;
- nous utilisons l'entrefer d'épaisseur  $e = 0.5$  mm ;
- un état initial parfaitement stationnaire et composé d'ognons désordonnés de taille fixée est obtenu en appliquant la contrainte  $\sigma$  pendant un temps suffisamment long ( $\delta t \simeq 2\text{--}3$  h), loin de la transition de feuilletage *i.e.*  $\sigma \simeq 10\text{--}12$  Pa ;
- nous appliquons ensuite différents paliers de contrainte pour étudier la transition de feuilletage.

Au voisinage de la transition, le cisaillement présente des oscillations de formes diverses. À l'aide du montage de diffusion dynamique de la lumière, nous mesurons alors la vitesse locale en trois points de l'entrefer. Chaque fonction de corrélation est moyennée sur un temps de l'ordre de 5 s. La mesure complète des trois vitesses locales s'obtient donc en 20 s environ. En effet, il faut non seulement mesurer les fonctions, mais aussi déplacer le rhéomètre le long du gradient de vitesse. Le temps de mesure est suffisamment petit par rapport à ceux des dynamiques du cisaillement ( $\simeq 600$  s) pour espérer pouvoir obtenir une description correcte du profil. Mesurer la vitesse du fluide en plus de trois points de l'entrefer ne permettrait pas d'avoir une résolution temporelle suffisante. Les trois positions où sont effectuées les mesures sont :  $x_1 = 0.01$ ,  $x_2 = 0.15$  et  $x_3 = 0.28$  mm.

### 5.3.2 Une dynamique des films de lubrification ?

La figure 5.40 présente des oscillations de cisaillement observées au voisinage de la transition de feuilletage pour  $T = 30^\circ\text{C}$ . La dynamique du cisaillement présente des fluctuations de période 100 s environ. L'amplitude de ces oscillations est faible et de l'ordre de  $2 \text{ s}^{-1}$ . De façon très surprenante, la dynamique de la vitesse locale est quasiment périodique, et

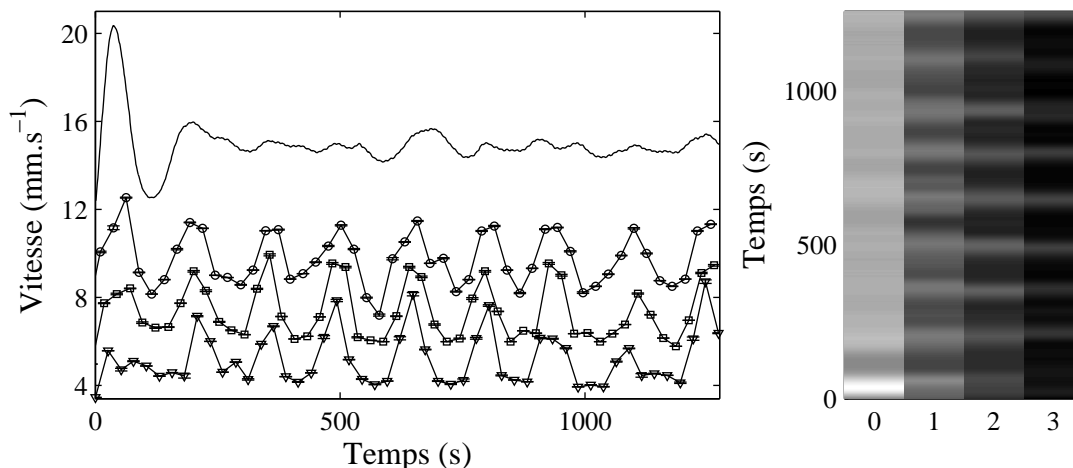


FIG. 5.40 – Vitesse du rotor (ligne continue) et vitesses locales mesurées en trois points de l'entrefer  $x_1$  ( $\circ$ ),  $x_2$  ( $\square$ ) et  $x_3$  ( $\nabla$ ). Diagramme spatio-temporel correspondant. L'indice 0 indique la position du rotor, les indices 1, 2 et 3 les trois positions  $x_i$ .

ce indépendamment du point de l'espace considéré : les vitesses locales mesurées oscillent en phase. De plus, la fréquence des oscillations de la vitesse locale est de l'ordre de 100 s et l'amplitude ne semble pas dépendre de la position considérée. La dynamique de la vitesse du rotor  $v_0$  ne ressemble en rien à cette dynamique locale. Le diagramme spatio-temporel correspondant à ces quatre séries temporelles est aussi présenté sur la figure 5.40. La vitesse est codée en niveau de gris, le blanc correspondant aux grandes vitesses et le noir aux faibles vitesses. L'indice 0 de ce diagramme correspond à la vitesse du rotor déduite de la mesure de  $\dot{\gamma}(t)$ . Les indices  $i$  indiquent les mesures de la vitesse en  $x_i$ . Ce diagramme montre clairement que la dynamique de la vitesse du rotor  $v_0$  ne suit pas les dynamiques des vitesses locales.

Pour mettre en avant ce résultat particulier, la figure 5.41 présente une partie de ces mêmes données mais normalisées. La moyenne de chaque série temporelle a été retirée et nous avons normalisé chaque nouvelle série par sa déviation standard. Cette figure montre très nettement que les oscillations de la vitesse locale sont quasiment périodiques et ne

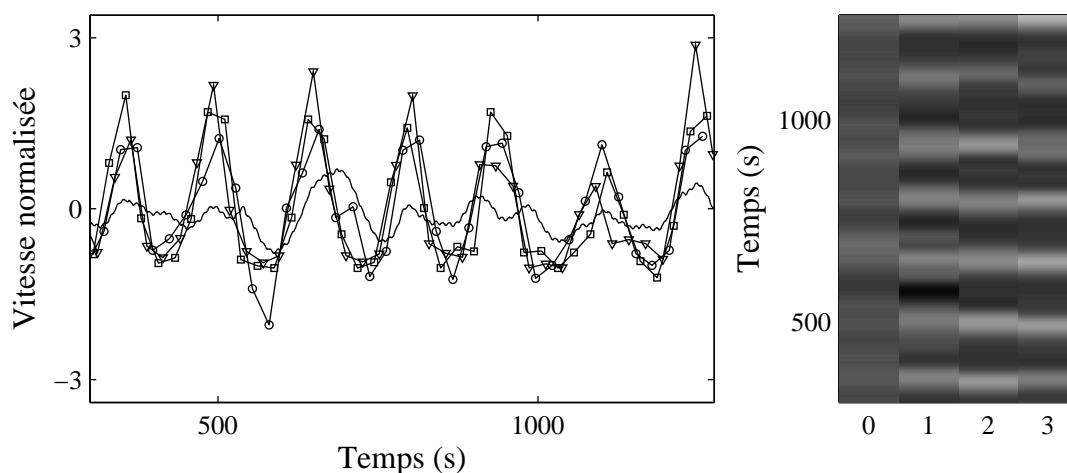


FIG. 5.41 – Vitesse du rotor normalisée (ligne continue) et vitesses locales normalisées :  $x_1$  ( $\circ$ ),  $x_2$  ( $\square$ ) et  $x_3$  ( $\nabla$ ). Diagramme spatio-temporel correspondant. L'indice 0 indique la position du rotor, les indices 1, 2 et 3 les trois positions  $x_i$ .

dépendent pas du point de mesure. Par ailleurs, on remarque aussi que les oscillations de la vitesse du rotor ne sont pas en phase avec celles des dynamiques locales. Dans cette expérience, il est certain que les films de lubrification doivent jouer un rôle important. Il semble en effet que le profil de vitesse oscille de façon homogène dans l'entrefer alors que ce n'est pas le cas de la vitesse du rotor. Il est donc nécessaire pour expliquer ces résultats, que les vitesses de glissement, notamment au rotor, aient leur propre dynamique. La dynamique temporelle observée dans le chapitre 2 pourrait donc être compliquée par une dynamique des films de lubrification présents aux parois.

### 5.3.3 Une dynamique spatio-temporelle des bandes ?

La figure 5.42 présente une série temporelle obtenue lors d'oscillations aperiodiques de faibles amplitudes. Ces oscillations sont très certainement celles de la région 2 (cf. fig. 2.13, page 64), où l'état de base approximativement stationnaire, présente des oscillations « intermittentes »<sup>8</sup>. Ces oscillations du cisaillement ont une amplitude de l'ordre de  $2 \text{ s}^{-1}$  et présentent une forme relaxationnelle marquée : le cisaillement augmente lentement et chute brutalement. La figure 5.42 révèle un point particulièrement important. En effet, la vitesse au point  $x_1 = 0.01 \text{ mm}$  suit approximativement celle du rotor : aux quatre « sauts » de  $v_0$

<sup>8</sup> Ces oscillations ont été interprétées à l'aide du phénomène de résonance stochastique à l'approche d'une bifurcation de Hopf, cf. section 2.4.2, page 88.



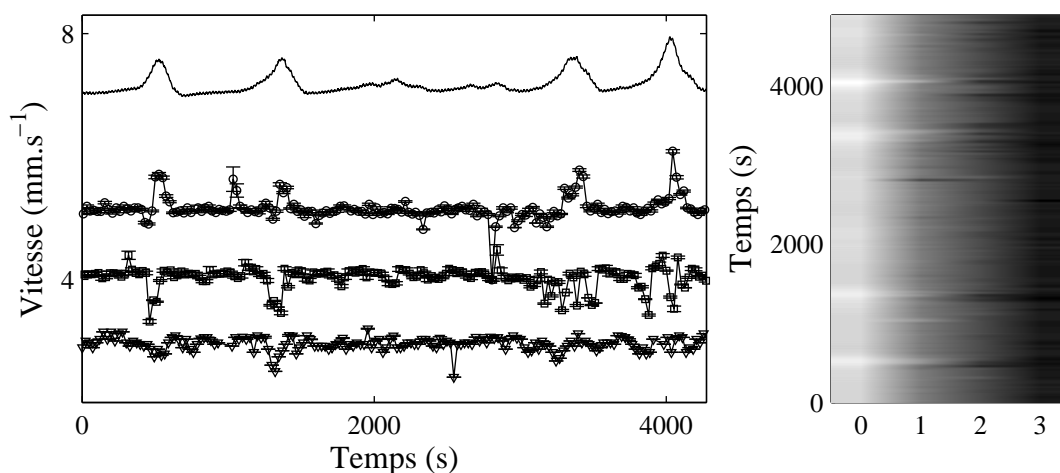


FIG. 5.42 – Vitesse du rotor (ligne continue) et vitesses locales mesurées en trois points de l’entrefer  $x_1$  ( $\circ$ ),  $x_2$  ( $\square$ ) et  $x_3$  ( $\nabla$ ). Diagramme spatio-temporel correspondant. L’indice 0 indique la position du rotor, les indices 1, 2 et 3 les trois positions  $x_i$ .

sont associées quatre « sauts » de la vitesse en  $x_1$ . Il n’en est pas de même pour la vitesse en  $x_2 = 0.15$  mm. À chaque saut « positif » de la vitesse  $v_0$  est associé un saut « négatif » de la vitesse en  $x_2$ . Il est difficile d’analyser la série temporelle mesurée en  $x_3$  : il semble que la vitesse en ce point suit approximativement celle en  $x_2$ , mais avec une amplitude moindre.

La figure 5.43 présente une partie de ces données après normalisation. Par souci de clarté, nous n’avons pas affiché la série temporelle mesurée en  $x_3$ , car l’amplitude des oscillations mesurées en ce point est négligeable. Grâce au diagramme spatio-temporel correspondant, on peut alors remarquer plus facilement la richesse de ces résultats. Le premier saut de la vitesse en  $x_1$  par exemple, est précédé d’une diminution de la vitesse (trait blanc précédé d’un trait noir en  $t \simeq 500$  s sur la série  $v(x_1, t)$ ).

La figure 5.44 présente une autre mesure effectuée sur des oscillations de faibles amplitudes. Ces oscillations s’apparentent encore une fois à des « sauts » de vitesse à partir d’une valeur quasiment constante. On retrouve qualitativement les résultats précédemment observés : à chaque saut de la vitesse du rotor  $v_0$ , est associé un saut de la vitesse au point  $x_1$  et au point  $x_2$ . En  $x_2$ , chacun de ces sauts positifs est précédé d’une diminution significative de la vitesse. Une nouvelle complexité est cependant présente, chaque oscillation de la vitesse en  $x_1$  semble en effet s’être « dédoublée » : la vitesse locale présente *deux* sauts de vitesse pour chaque oscillation de  $v_0$ . Soulignons que l’on peut alors distinguer une très légère augmentation secondaire de la vitesse du rotor  $v_0$  pour chacun de ces seconds sauts

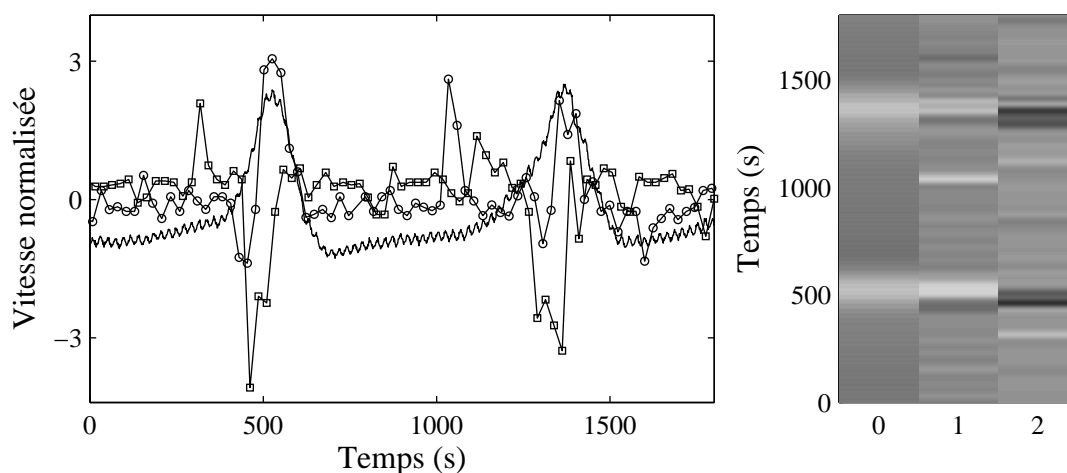


FIG. 5.43 – Vitesse du rotor normalisée (ligne continue) et vitesses locales normalisées :  $x_1$  ( $\circ$ ),  $x_2$  ( $\square$ ) et  $x_3$  ( $\nabla$ ). Diagramme spatio-temporel correspondant.

en  $x_1$ .

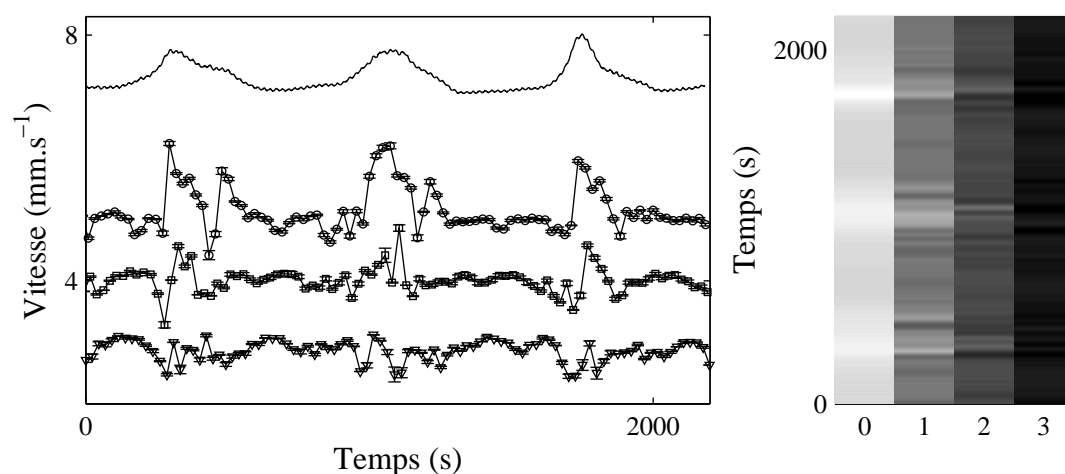


FIG. 5.44 – Vitesse du rotor (ligne continue) et vitesses locales :  $x_1$  ( $\circ$ ),  $x_2$  ( $\square$ ) et  $x_3$  ( $\nabla$ ).

Pour finir, la figure 5.45 présente une série temporelle obtenue lors d'oscillations quasiment périodiques du cisaillement. Ces oscillations correspondent très probablement à celles observées dans la région 3 du diagramme de la figure 2.10, page 61. Ces mesures sont particulièrement surprenantes : la vitesse du rotor est approximativement périodique alors qu'il en est pas de même des vitesses locales. Il est évidemment difficile de donner une

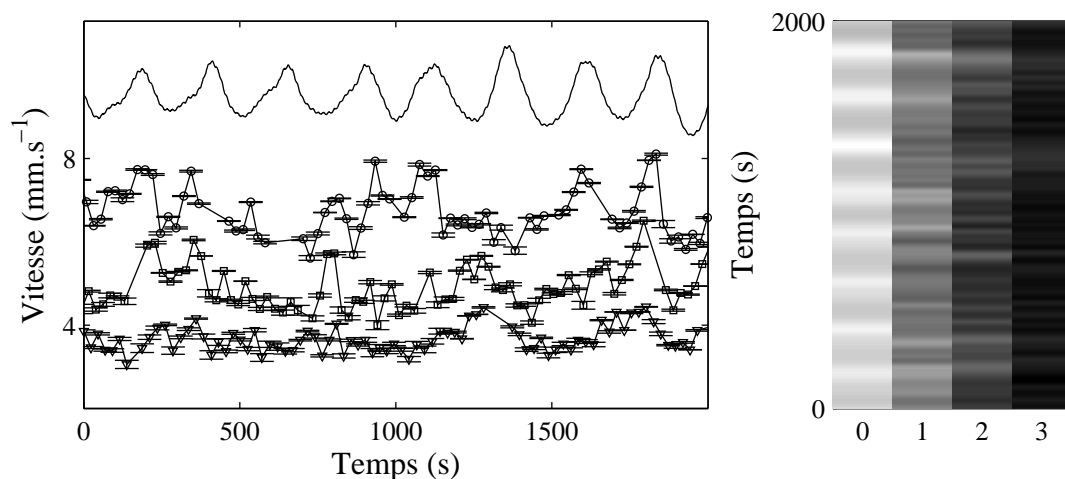


FIG. 5.45 – Vitesse du rotor (ligne continue) et vitesses locales :  $x_1$  ( $\circ$ ),  $x_2$  ( $\square$ ) et  $x_3$  ( $\nabla$ ).

image correcte de l'écoulement dans cette dernière expérience. Une seule chose est sûre : les phénomènes non-stationnaires résultent avant tout de la structuration spatio-temporelle de l'écoulement. Il est très probable que le profil de vitesse présente des bandes de cisaillement ayant une dynamique propre et que les films de lubrification possèdent une dynamique. La vitesse du rotor indiquée par le rhéomètre correspond en quelque sorte à une mesure « moyennée » de cette structuration spatio-temporelle.

Il est évidemment difficile d'aller plus loin dans l'analyse de ces données. Seule une avancée technique permettant d'obtenir une « image » instantanée de l'écoulement permettrait de comprendre quantitativement la complexité spatio-temporelle observée. On pourrait par exemple utiliser un analyseur de spectres à la place du corrélateur pour acquérir la vitesse en un point donné avec une bien meilleure résolution temporelle ( $\simeq 0.1$  s). On pourrait aussi déplacer plus rapidement le volume diffusant dans l'entrefer en déviant le faisceau diffusé à l'aide d'un composant acousto-optique.

Par ailleurs, par manque de temps, nous n'avons pas pu retrouver avec le nouvel échantillon de phase lamellaire étudiée, la zone de paramètres où le cisaillement présente des oscillations de grande amplitude ( $\simeq 25$  s $^{-1}$ , cf. fig. 2.38.a, page 99). Il est probable que la vitesse locale puisse présenter lors de ces grandes oscillations, une signature plus nette que celles des figures de cette section.

Malgré ces quelques points négatifs, nous pensons que l'objectif du chapitre 2 a été atteint. Les expériences réalisées dans ce chapitre 5 ont en effet montré clairement que la dynamique observée était due à une dynamique spatio-temporelle. Même si nous ne

pouvons pas affirmer que les *oscillations* de cisaillement mesurées à contrainte imposée correspondent à un déplacement oscillant de la bande fortement cisillée, nous pouvons néanmoins l'affirmer dans le cas de *fluctuations* de contrainte à cisaillement imposé et dans le cas de *fluctuations* de cisaillement à  $T < T_c$  et à contrainte imposée.



# Conclusions et perspectives

La texture oignon est un fluide complexe qui présente une grande richesse de comportements rhéologiques. Lorsque ce fluide est soumis à un écoulement de cisaillement simple, une transition induite par le cisaillement, appelée transition de « feuilletage », induit un « ordre » entre les oignons. Cette transition sépare en effet deux organisations différentes des oignons : un état « désordonné » dans lequel aucune corrélation spatiale n'est présente et un état « feuilleté » où les oignons possèdent un ordre cristallin hexagonal sur des plans orientés parallèlement à l'écoulement.

Lorsque le cisaillement est appliqué, la réponse rhéologique est faiblement bruitée au voisinage de la transition. Il en est de même lorsque la contrainte est appliquée à des températures  $T < 27^\circ\text{C}$ . Cependant, lorsque la contrainte est imposée à des températures  $T \geq T_c$ , on observe des comportements non-stationnaires au voisinage de la transition. Le cisaillement, ainsi que la structure des oignons, présente des oscillations de grande amplitude sur des périodes de l'ordre de 10 min. Cette instabilité temporelle ne peut se réduire à une simple instabilité hydrodynamique ou à une instabilité viscoélastique classique vus les nombres de Reynolds envisagés et les échelles de temps concernées ( $\simeq 10$  min).

Dans le chapitre 2, nous avons montré que les différentes dynamiques observées lors de cette instabilité présentent de nombreuses similitudes avec la complexité temporelle d'un système dynamique de basse dimensionnalité. En particulier, le travail réalisé montre que ces comportements temporels résultent très certainement d'une dynamique déterministe. Cependant, l'analyse mathématique des séries temporelles mesurées ne permet pas d'affirmer que les dynamiques correspondent à du chaos déterministe de basse dimensionnalité. Pour interpréter ce résultat, nous avons alors émis l'hypothèse que la dynamique du cisaillement peut être compliquée par la présence d'une « structuration spatiale » de l'écoulement au voisinage de la transition de feuilletage.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons développé un montage de vélocimétrie locale, basé sur la diffusion dynamique hétérodyne de la lumière. Cette méthode optique permet de mesurer les profils de vitesse de fluides complexes cisailés dans l'entrefer d'une cellule

de Couette avec une résolution spatiale de l'ordre de  $50 \mu\text{m}$ . Dans le chapitre 4, nous avons validé cette technique en l'appliquant à deux écoulements de fluides complexes particuliers : une émulsion concentrée et une solution de micelles géantes. Nous avons ainsi montré que notre montage permet de résoudre les hétérogénéités spatiales telles que le « glissement » aux parois et les discontinuités de cisaillement.

Lors du dernier chapitre, nous avons utilisé cette technique expérimentale pour étudier la transition de feuilleteage dans la gamme de paramètres où les réponses rhéologiques sont stationnaires (*i.e.*  $\dot{\gamma}$  imposé ou  $\sigma$  imposé à  $T < T_c$ ). Nous avons alors mis en évidence une structuration spatiale de l'écoulement : les oignons « glissent » aux parois de la cellule de Couette et des bandes macroscopiques de cisaillements différents coexistent au voisinage de la transition. Par ailleurs, nous avons aussi montré que ces bandes correspondent aux structures désordonnées et feuilletées d'oignons. À l'aide d'un modèle purement mécanique, nous avons pu reproduire fidèlement cette structuration spatiale en supposant uniquement un critère de selection de la contrainte locale à l'interface séparant ces bandes.

Par ailleurs, l'étude présentée dans ce chapitre a révélé que les bandes de cisaillement possèdent leur dynamique propre : la position de l'interface fluctue dans l'entrefer de la cellule de Couette. Pour modéliser les fluctuations observées, nous avons montré que seules des fluctuations de la contrainte  $\sigma^*$  pouvaient rendre compte des phénomènes de localisation de ces fluctuations. Pour aller plus loin dans la compréhension de ces fluctuations, nous avons aussi montré que l'approche purement mécanique ne pouvait suffire et que les équations modélisant la structure du matériau sont nécessaires.

Grâce au montage de vélocimétrie développé, nous avons pu étudier les oscillations observées au voisinage de la transition de feuilleteage pour  $T > T_c$  et à contrainte imposée. Nous avons alors montré que l'écoulement présente une grande complexité spatio-temporelle. En effet, les expériences réalisées suggèrent que les films de lubrification possèdent leur propre dynamique et que l'écoulement est très certainement composé de bandes macroscopiques ayant elles aussi une dynamique complexe. La seule mesure du cisaillement indiqué par le rhéomètre ne peut alors pas rendre compte de cette richesse spatio-temporelle et il est clair que la complexité analysée dans le chapitre 2 résulte avant tout de phénomènes spatio-temporels.

Récemment, nous avons pu bénéficier d'une technique nouvelle basée sur la corrélation de « speckle ultrasonore » à haute fréquence. Cette technique permet de mesurer des profils de vitesse avec une résolution spatiale de  $50 \mu\text{m}$  et une résolution temporelle de l'ordre de 1 s [97]. L'application de cette technique au cas de la texture oignon a confirmé l'existence d'une dynamique des bandes de cisaillement. Nous espérons grâce à ces futures expériences pouvoir caractériser quantitativement l'instabilité spatio-temporelle observée.

Le travail de thèse présenté dans les pages précédentes consiste en une approche « hydrodynamique » de la complexité observée. Nous nous sommes en effet intéressés à la caractérisation de l'instabilité à l'aide de l'approche phénoménologique de la théorie des systèmes dynamiques. Cependant, une question fondamentale reste sans réponse : pourquoi une telle richesse temporelle ? Un des enjeux des futures études sur ce sujet sera certainement de mettre en évidence les facteurs microscopiques menant à ces oscillations. Devant la diversité de ces phénomènes non-stationnaires dans les fluides complexes, il est important d'identifier ces mécanismes microscopiques pour faire avancer la compréhension générale de ces systèmes.





## Annexe A

### Photographies des différents montages



FIG. A.1 – Cellule de Couette utilisée au cours de cette thèse. Cette cellule est recouverte d'un chapeau thermostaté pour éviter l'évaporation des constituants. La lentille permet de focaliser le faisceau incident dans l'entrefer (cf. chapitre 3).

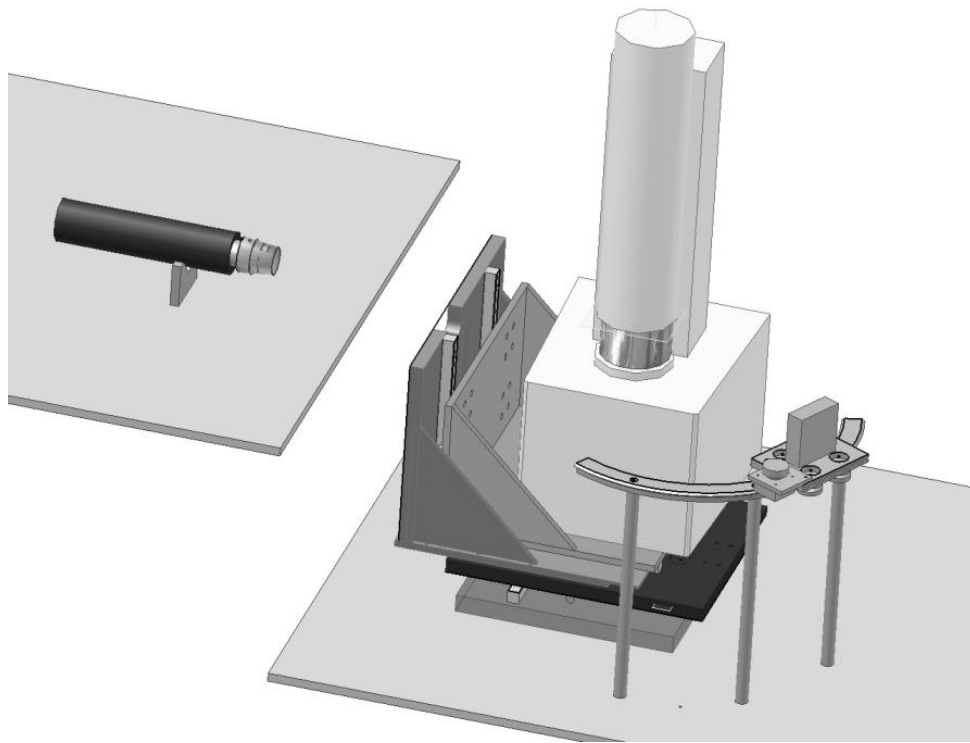


FIG. A.2 – Vue schématique de la table mécanique permettant de déplacer le rhéomètre dans les trois directions de l'espace. Le filtre spatial collectant la lumière diffusé est placé sur un rail semi-circulaire permettant de choisir l'angle de diffusion  $\theta_{\text{imp}}$  (cf. chapitre 3).

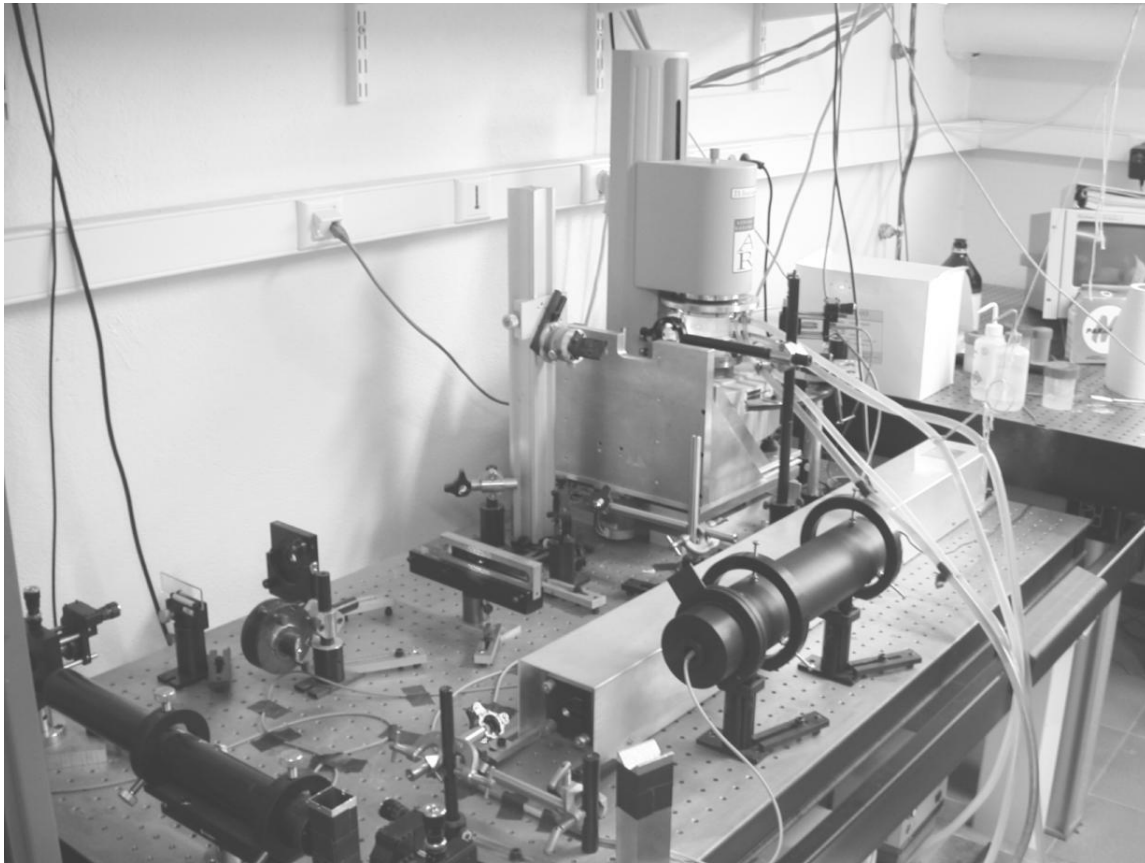


FIG. A.3 – Montage de diffusion dynamique de la lumière. Le rhéomètre est posé sur une table mécanique dont les déplacements sont contrôlés par ordinateur. L'ensemble de l'expérience est placée sur une table optique stabilisée par des coussins d'air.

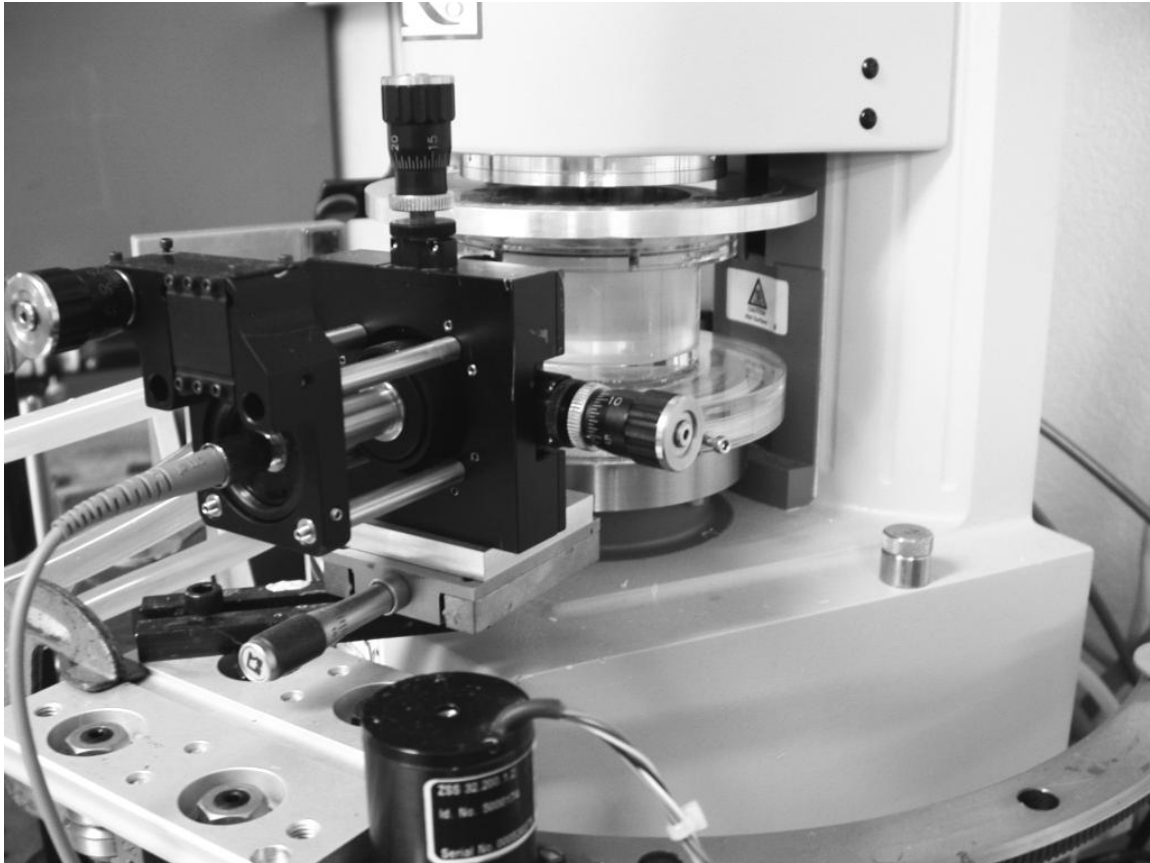


FIG. A.4 – Cellule de Couette et filtre spatial collectant la lumière diffusée par l'échantillon dans une fibre monomode.

# Annexe B

## Calcul des effets de réfraction en géométrie de Couette

Les cellules de Couette couramment utilisées en rhéologie sont constituées de différentes interfaces séparant le fluide cisailé de l'extérieur. Ces interfaces agissent comme des dioptres cylindriques et dévient les rayons lumineux. Prendre en compte ces effets de réfraction est particulièrement important pour toute technique de diffusion de la lumière sous écoulement de Couette. En effet, l'angle réel de diffusion  $\theta$  ne correspond pas à l'angle imposé  $\theta_{\text{imp}}$  et le volume diffusant ne se situe pas en  $A$  mais en  $A'$ , comme on peut le voir sur la figure 3.6 (page 118), où est présentée la cellule de Couette utilisée au cours de cette thèse. Dans cette annexe, nous présentons le calcul complet des effets de réfraction dans une géométrie de Couette composée de  $N - 1$  interfaces.

La géométrie est celle de la figure B.1. Les notations sont les suivantes :

- l'interface  $i$  est un cylindre de rayon  $R_i$  séparant les milieux d'indice optique  $n_{i-1}$  et  $n_i$  ;
- le rayon incident sur l'interface  $i$  fait un angle  $\alpha_i$  avec la normale à cette surface ;
- le rayon émergent de l'interface  $i$  fait un angle  $\alpha'_i$  avec la normale à cette surface.

Le premier paramètre du calcul est la position  $x_t$  correspondant à l'intersection entre la prolongation du faisceau incident et l'axe ( $Ox$ ). Ce paramètre est à une constante près, la position de la table mécanique sur laquelle est posé le rhéomètre. Le second paramètre est l'angle imposé par l'expérimentateur  $\theta_{\text{imp}}$ . De ces deux données on peut déduire l'angle réel de diffusion  $\theta$  et la position du volume diffusant  $x$  grâce aux relations suivantes. La première relation est purement géométrique :

$$\frac{\sin(\alpha_N)}{R_1 + x_t} = \frac{\sin(\theta_{\text{imp}})}{R_N}. \quad (\text{B.1})$$

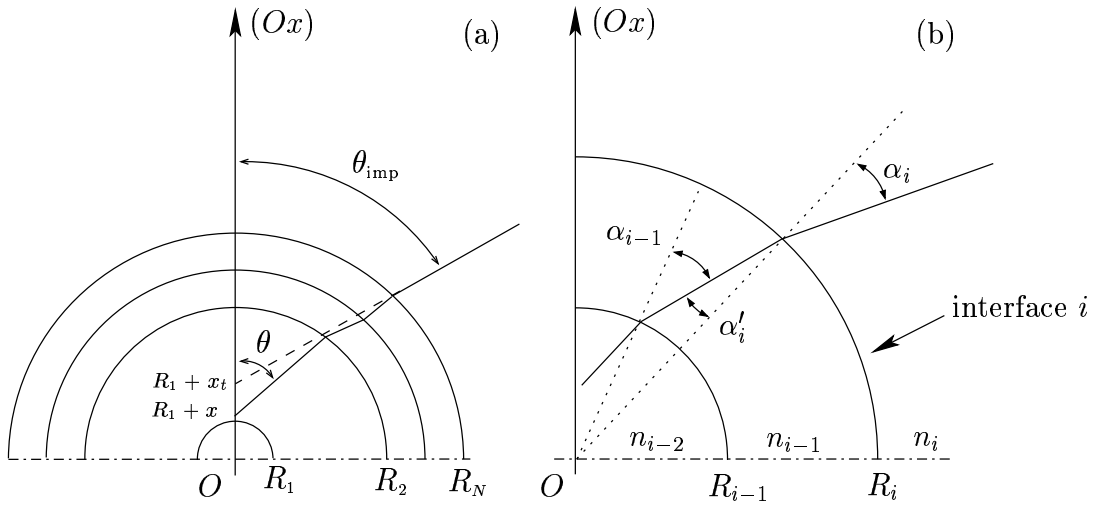


FIG. B.1 – (a) Géométrie et notations.  $\theta_{\text{imp}}$  est l'angle imposé par l'expérimentateur,  $x_t$  est l'intersection entre le faisceau incident prolongé et l'axe  $(Ox)$ .  $R_i$  sont les différents rayons des dioptrics.  $\theta$  est l'angle réel de diffusion et  $x$  la position du volume diffusant. (b) Conventions choisies pour l'interface  $i$ .

Cette relation permet de calculer l'angle  $\alpha_N$ . Il faut ensuite écrire les relations de Snell-Descartes pour chaque interface  $i$  :

$$n_i \sin(\alpha_i) = n_{i-1} \sin(\alpha'_i). \quad (\text{B.2})$$

La relation entre l'angle incident sur l'interface  $i-1$  ( $\alpha_{i-1}$ ) et l'angle émergent de l'interface  $i$  ( $\alpha'_i$ ) se déduit aisément :

$$\frac{\sin(\alpha'_i)}{R_{i-1}} = \frac{\sin(\alpha_{i-1})}{R_i}. \quad (\text{B.3})$$

En se donnant  $x_t$  et  $\theta_{\text{imp}}$ , ces relations permettent de calculer les différents angles  $\alpha_i$  et  $\alpha'_i$ . À chaque interface, le faisceau lumineux est dévié de la quantité  $(\alpha'_i - \alpha_i)$ . Pour l'ensemble des rayons, l'angle réel de diffusion est alors donné par :

$$\theta = \theta_{\text{imp}} + \sum_{i=2}^N (\alpha'_i - \alpha_i). \quad (\text{B.4})$$

La relation géométrique faisant intervenir la dernière interface :

$$\frac{\sin(\alpha'_2)}{R_1 + x} = \frac{\sin(\theta)}{R_2}, \quad (\text{B.5})$$

permet alors de déterminer la position du volume diffusant  $x$ .

Ces relations ont été appliquées au cas expérimental du chapitre 3. Les paramètres de la cellule et les indices optiques sont indiqués dans le tableau B.1 (cf. chapitre 3, page 118).

Air	$n_1 = 1.00$	$R_5 = 36$ mm
Plexiglas	$n_2 = 1.47$	$R_4 = 30.5$ mm
Eau	$n_3 = 1.33$	$R_3 = 27.5$ mm
Plexiglas	$n_4 = 1.47$	$R_2 = 25$ mm

TAB. B.1 – Rayons des interfaces et indices de réfraction des matériaux constituant la cellule de Couette utilisée.

Le fluide étudié à un indice  $n = 1.40$  et le rayon du rotor est  $R_1 = 22$  mm. En faisant varier la position de la table  $x_t$  à un angle imposé  $\theta_{\text{imp}} = 35^\circ$ , le calcul précédent donne le position  $x$  du volume diffusant ainsi que l'angle réel de diffusion. Lorsque  $x \geq 0$  et  $x \leq (R_2 - R_1)$ , le volume diffusant est dans l'entrefer de la cellule de Couette. Les résultats  $x$  vs.  $x_t$  sont présentés sur la figure B.2.a. À une très bonne approximation, on peut considérer que la relation entre  $x_t$  et  $x$  est affine. On a de plus  $\delta x / \delta x_t = f_x$  avec  $f_x \simeq 1.13$ . La cellule de Couette utilisée agit donc comme une « loupe » car à un déplacement de la table  $\delta x_t$  est associé un déplacement du volume diffusant  $\delta x \geq \delta x_t$ . La figure B.2.b présente quant à elle,  $\theta$  vs.  $x$ . L'angle de diffusion réel  $\theta$  dépend légèrement de la position dans l'entrefer, la dispersion est de l'ordre de 3%. On a par ailleurs  $\theta = f_\theta \theta_{\text{imp}}$  avec  $f_\theta \simeq 0.79$ , où  $\theta$  est l'angle moyen de diffusion dans l'entrefer.

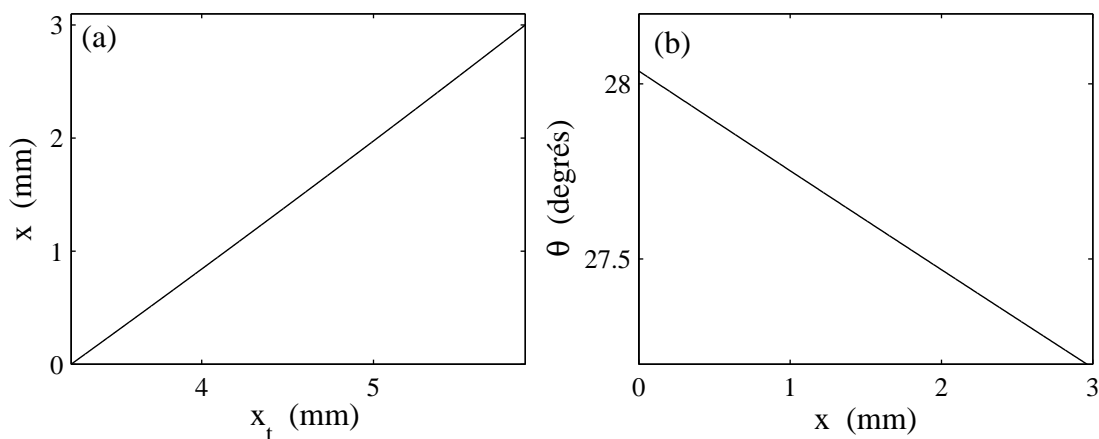


FIG. B.2 – (a) Relations  $x$  vs.  $x_t$  et (b)  $\theta$  vs.  $x$ , calculées à l'aide des relations précédentes.





# Annexe C

## Justification du passage « global–local » pour un écoulement homogène

Pour éviter toute confusion, il convient de montrer sur quelques exemples simples que l'on peut raisonnablement confondre les courbes déduites de la rhéologie globale :  $\langle \sigma \rangle = f(\langle \dot{\gamma} \rangle)$  et les comportements locaux  $\sigma = f(\dot{\gamma})$ . En effet, les quantités réellement mesurées par un rhéomètre dans un écoulement de Couette sont le couple  $\Gamma$  et la vitesse de rotation  $\Omega$ . Il serait donc plus judicieux de présenter les résultats rhéologiques en fonction de ces deux paramètres uniquement. Cependant, il est usuel en rhéologie de présenter les données en fonction de la contrainte et du cisaillement. Plus précisément, le rhéomètre utilisé indique :

$$\begin{cases} \langle \sigma \rangle = \frac{R_1^2 + R_2^2}{4\pi H R_1^2 R_2^2} \Gamma, \\ \langle \dot{\gamma} \rangle = \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \Omega. \end{cases} \quad (\text{C.1})$$

*Le fluide newtonien*  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$

Prenons le cas d'un fluide newtonien, *i.e.* dont le comportement local est donné par :  $\sigma = \eta \dot{\gamma}$ . Le profil de vitesse correspondant est donné par :

$$v(x) = \frac{R_1 + x}{\eta} \frac{\sigma_1}{2} \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + x} \right)^2 - 1 \right], \quad (\text{C.2})$$

dans le cas où le fluide ne glisse pas au parois. On peut déduire de ce profil la vitesse de rotation  $\Omega$  de la cellule :

$$\Omega = \frac{\sigma_1}{2\eta} \left[ 1 - \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \right]. \quad (\text{C.3})$$

Grâce aux relations (C.1) et en sachant que  $\sigma_1 = \Gamma/(2\pi HR_1^2)$ , on déduit que la contrainte et le cisaillement *indiqués* par le rhéomètre sont reliés par :

$$\langle \sigma \rangle = \eta \langle \dot{\gamma} \rangle. \quad (\text{C.4})$$

Les relations (C.1) ont été choisies de sorte que pour un fluide newtonien, on ait l'équivalence stricte :

$$\sigma = \eta \dot{\gamma} \iff \langle \sigma \rangle = \eta \langle \dot{\gamma} \rangle. \quad (\text{C.5})$$

Nous allons voir qu'il n'en est pas de même pour d'autres comportements rhéologiques.

*Le fluide de Bingham*  $\sigma = \sigma_0 + \eta \dot{\gamma}$

Dans le cas d'un fluide de Bingham, le profil de vitesse s'écrit (avec la condition de non-glissement) :

$$v(x) = \frac{R_1 + x}{\eta} \left\{ \frac{\sigma_1}{2} \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \left[ \left( \frac{R_2}{R_1 + x} \right)^2 - 1 \right] + \sigma_0 \ln \left( \frac{R_1 + x}{R_2} \right) \right\}. \quad (\text{C.6})$$

La vitesse de rotation  $\Omega$  de la cellule est donnée par :

$$\Omega = \frac{1}{\eta} \left\{ \frac{\sigma_1}{2} \left( \frac{R_1}{R_2} \right)^2 \left[ \left( \frac{R_2}{R_1} \right)^2 - 1 \right] + \sigma_0 \ln \left( \frac{R_1}{R_2} \right) \right\}. \quad (\text{C.7})$$

La contrainte et le cisaillement *indiqués* par le rhéomètre sont donc donnés par :

$$\langle \sigma \rangle = \left[ \ln \left( \frac{R_2}{R_1} \right) \frac{R_1^2 + R_2^2}{R_2^2 - R_1^2} \right] \sigma_0 + \eta \langle \dot{\gamma} \rangle. \quad (\text{C.8})$$

Pour cet exemple simple,  $\sigma = f(\dot{\gamma}) \not\Rightarrow \langle \sigma \rangle = f(\langle \dot{\gamma} \rangle)$ . On peut cependant développer le facteur de correction en fonction du rapport d'aspect  $e/R_1$ , on trouve alors que :

$$\langle \sigma \rangle = \sigma_0 \left[ 1 + \frac{1}{3} \left( \frac{e}{R_1} \right)^2 + \mathcal{O} \left( \frac{e}{R_1} \right)^3 \right] + A \langle \dot{\gamma} \rangle. \quad (\text{C.9})$$

On a donc  $\langle \sigma \rangle = f(\langle \dot{\gamma} \rangle) \iff \sigma = f(\dot{\gamma})$ , pour le fluide de Bingham à l'ordre 2 en  $e/R_1$ . Le facteur de correction est environ 1.0006 dans la géométrie utilisée ( $e = 1$  mm et  $R_1 = 24$  mm). Pour ce cas précis, il est donc pleinement justifié de confondre les lois rhéologiques globales et les comportements rhéologiques locaux.

Le fluide rhéofluidifiant  $\sigma = A\dot{\gamma}^n$

Dans le cas d'un fluide rhéofluidifiant  $\sigma = A\dot{\gamma}^n$ , un calcul similaire donne :

$$v(x) = r \frac{n}{2} \left[ \frac{\Gamma}{2\pi H R_2^2 A} \right]^{1/n} \left[ \left( \frac{R_2}{r} \right)^{2/n} - 1 \right]. \quad (\text{C.10})$$

La contrainte  $\langle \sigma \rangle$  est relié à  $\langle \dot{\gamma} \rangle$  selon :

$$\langle \sigma \rangle = \frac{1}{2} \left( \frac{2}{n} \right)^n \left( \frac{R_2^2 - R_1^2}{R_2^2 + R_1^2} \right)^n \frac{R_2^2 + R_1^2}{\left( R_2^{2/n} - R_1^{2/n} \right)^n} A \langle \dot{\gamma} \rangle^n. \quad (\text{C.11})$$

Un développement de cette expression mène à :

$$\langle \sigma \rangle = \left[ 1 + \frac{(n-1)(1-2n)}{6n} \left( \frac{e}{R_1} \right)^2 + \mathcal{O} \left( \frac{e}{R_1} \right)^3 \right] A \langle \dot{\gamma} \rangle^n. \quad (\text{C.12})$$

On peut donc encore une fois considérer que  $\langle \sigma \rangle = f(\langle \dot{\gamma} \rangle) \iff \sigma = f(\dot{\gamma})$  avec une très bonne précision. En effet, même dans le cas où le fluide est très rhéofluidifiant,  $n = 0.1$  par exemple, la valeur de ce facteur est 0.998 dans la géométrie utilisée.



# Bibliographie

- [1] B. J. ACKERSON et N. A. CLARK. « Dynamic light scattering at low rates of shear ». *J. Physique*, 42 : 929, 1981.
- [2] B. J. ACKERSON et P. N. PUSEY. « Shear-Induced Order in Suspensions of Hard Spheres ». *Phys. Rev. Lett.*, 61 : 1033, 1988.
- [3] A. AJDARI. « Mechanical aging and non-linear rheology of concentrated colloidal suspensions : experimental facts and simple models. ». Note de cours des Houches, Juillet 2002.
- [4] A. AJDARI. « Rheological behavior of a solution of particles aggregating on the containing walls ». *Phys. Rev. E*, 58 : 6294, 1998.
- [5] G. ANANTHAKRISHNA, C. FRESSENGEAS, M. GROSBAS, J. VERGNOL, C. ENGELKE, J. PLESSING, H. NEUHÄUSER, E. BOUCHAUD, J. PLANÈS, et L. P. KUBIN. « On the existence of Chaos in Jerky flow ». *Scripta Metallurgica et Materialia*, 32 : 1731, 1995.
- [6] G. ANANTHAKRISHNA, S. J. NORONHA, C. FRESSENGEAS, et L. P. KUBIN. « Crossover in the dynamics of Portevin-Le Chatelier effect from chaos to SOC ». *Materials Science and Engineering A*, 309 : 316, 2001.
- [7] G. ANANTHAKRISHNA et M. C. VALSAKUMAR. « Repeated yield drop phenomenon : a temporal dissipative structure ». *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 15 : 171, 1982.
- [8] F. ARGOUL. « *Transitions vers le chaos : de l'expérience à la théorie* ». Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 1986.
- [9] F. ARGOUL, A. ARNÉODO, P. RICHETTI, et J.-C. ROUX. « From quasiperiodicity to chaos in the Belousov-Zhabotinskii reaction. I. Experiment ». *J. Chem. Phys.*, 86 : 3325, 1987.
- [10] A. ARNÉODO et O. THUAL. « Formes normales, théorie et expériences ». Dans P. BERGÉ, éditeur, *Le Chaos, Théorie et expériences*. Eyrolles, Paris, 1988.

- [11] N. ASHRAFI et R. E. KHAYAT. « Shear-thinning-induced chaos in Taylor-Couette flow ». *Phys. Rev. E*, 61 : 1455, 2000.
- [12] P. ATTEN et B. MALRAISON. « Caractérisation du chaos déterministe rencontré dans les expériences ». Dans P. BERGÉ, éditeur, *Le Chaos, Théorie et expériences*. Eyrolles, Paris, 1988.
- [13] R. BANDYOPADHYAY, G. BASAPPA, et A. K. SOOD. « Observation of Chaotic Dynamics in Dilute Sheared Aqueous Solutions of CTAT ». *Phys. Rev. Lett.*, 84 : 2022, 2000.
- [14] R. BANDYOPADHYAY et A. K. SOOD. « Chaotic dynamics in shear-thickening surfactant solutions ». *Europhys. Lett.*, 56 : 447, 2001.
- [15] C. BARENTIN, M. LENOBLE, et B. POULIGNY. Discussions privées.
- [16] H. A. BARNES. « A review of the slip (wall depletion) of polymer solutions, emulsions and particle suspensions in viscometers : its cause, character, and cure ». *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 56 : 221, 1995.
- [17] H. A. BARNES. « The yield stress – a review or 'παντα ρει' – everything flows? ». *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 81 : 133, 1999.
- [18] L. BÉCU, S. MANNEVILLE, et A. COLIN. Discussions privées.
- [19] P. BERGÉ, Y. POMEAU, et C. VIDAL. *L'ordre dans le chaos*. Hermann, Éditeur des sciences et des arts, 1984.
- [20] J. BERGENHOLTZ et N. J. WAGNER. « Formation of AOT/Brine Multilamellar Vesicles ». *Langmuir*, 12 : 3122, 1996.
- [21] B. J. BERNE et R. PECORA. *Dynamic light scattering*. Wiley, New York, 1995.
- [22] J.-F. BERRET, R. GAMEZ-CORRALES, S. LEROUGE, et J.-P. DECRUPPE. « Shear-thickening transition in surfactant solutions : New experimental features from rheology and flow birefringence ». *Eur. Phys. J. E*, 2 : 343, 2000.
- [23] J.-F. BERRET et G. PORTE. « Metastable versus unstable transients at the onset of a shear-induced phase transition ». *Phys. Rev. E*, 60 : 4268, 1999.
- [24] J.-F. BERRET, G. PORTE, et J.-P. DECRUPPE. « Inhomogeneous shear flows of wormlike micelles : A master dynamic phase diagram ». *Phys. Rev. E*, 55 : 1668, 1997.
- [25] J.-F. BERRET, D. C. ROUX, et G. PORTE. « Isotropic-to-nematic transition in wormlike micelles under shear ». *J. Phys. II*, 4 : 1261, 1994.

- [26] J.-F. BERRET, D. C. ROUX, G. PORTE, et P. LINDLER. « Shear-induced isotropic-to-nematic phase transition in equilibrium polymers ». *Europhys. Lett.*, 25 : 521, 1994.
- [27] L. BERTHIER, J.-L. BARRAT, et J. KURCHAN. « A two-time-scale, two-temperature scenario for nonlinear rheology ». *Phys. Rev. E*, 61 : 5464, 2000.
- [28] E. BERTRAND, J. BIBETTE, et V. SCHMITT. « From shear thickening to shear-induced jamming ». *Phys. Rev. E*, 66 : 060401, 2002.
- [29] P. BOLTENHAGEN, Y. T. HU, E. F. MATTHYS, et D. J. PINE. « Observation of Bulk Phase Separation and Coexistence in a Sheared Micellar Solution ». *Phys. Rev. Lett.*, 79 : 2359, 1997.
- [30] M. M. BRITTON et P. T. CALLAGHAN. « Two-Phase Shear Band Structures at Uniform Stress ». *Phys. Rev. Lett.*, 78 : 4930, 1997.
- [31] M. M. BRITTON et P. T. CALLAGHAN. « Shear banding instability in wormlike micellar solutions ». *Eur. Phys. J. B*, 7 : 237, 1999.
- [32] E. CAPPELAERE, J.-F. BERRET, J.-P. DECRUPPE, R. CRESSELY, et P. LINDNER. « Rheology, birefringence, and small-angle neutron scattering in a charged micellar system : Evidence of a shear-induced phase transition ». *Phys. Rev. E*, 56 : 1869, 1997.
- [33] M. E. CATES. « Reptation of Living Polymers : Dynamics of Entangled Polymers in the Presence of Reversible Chain-Scission Reactions ». *Macromolecules*, 20 : 2289, 1987.
- [34] M. E. CATES et S. J. CANDAU. « Statics and dynamics of worm-like surfactant micelles ». *J. Phys. : Condens. Matter*, 2 : 6869, 1990.
- [35] M. E. CATES, D. A. HEAD, et A. AJDARI. « Rheological chaos in a scalar shear-thickening model ». *Phys. Rev. E*, 66 : 025202, 2002.
- [36] M. E. CATES, T. C. B. MCLEISH, et G. MARRUCCI. « The rheology of entangled polymers at very high shear rates ». *Europhys. Lett.*, 21 : 451, 1993.
- [37] M. E. CATES et S. T. MILNER. « Role of shear in the isotropic-to-lamellar transition ». *Phys. Rev. Lett.*, 62 : 1856, 1989.
- [38] M. E. CATES, J. P. WITTMER, J.-P. BOUCHAUD, et P. CLAUDIN. « Jamming, Force Chains, and Fragile Matter ». *Phys. Rev. Lett.*, 81 : 1841, 1998.
- [39] L. COURBIN, P. PANIZZA, et J.-B. SALMON. « Observation of Droplet Size Oscillations in a Two-Phase Fluid under Shear Flow ». En préparation.



- [40] L. COURBIN, R. PONS, J. ROUCH, et P. PANIZZA. « How do closed-compact multi-lamellar droplets form under shear flow? A possible mechanism ». *Europhys. Lett.*, 61 : 275, 2003.
- [41] P. COUSSOT, J. S. RAYNAUD, F. BERTRAND, P. MOUCHERONT, J. P. GUILBAUD, H. T. HUYNH, S. JARNY, et D. LESUEUR. « Coexistence of Liquid and Solid Phases in Flowing Soft-Glassy Materials ». *Phys. Rev. Lett.*, 88 : 218301, 2002.
- [42] J. D. CRAWFORD. « Introduction to bifurcation theory ». *Rev. Mod. Phys.*, 63 : 991, 1991.
- [43] G. CRISTOBAL. « *Étude de quelques changements structuraux dans les fluides complexes à l'équilibre et hors équilibre* ». Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 2000.
- [44] G. CRISTOBAL, J. ROUCH, A. COLIN, et P. PANIZZA. « Shear-induced structural transitions in Newtonian non-Newtonian two-phase flow ». *Phys. Rev. E*, 62 : 3871, 2000.
- [45] O. CRUMEYROLLE, I. MUTABAZI, et M. GRISEL. « Experimental study of inertioelastic Couette-Taylor instability modes in dilute and semidilute polymer solutions ». *Phys. Fluids*, 14 : 1681, 2002.
- [46] F. Da CRUZ, F. CHEVOIR, D. BONN, et P. COUSSOT. « Viscosity bifurcation in granular materials, foams, and emulsions ». *Phys. Rev. E*, 66 : 051305, 2002.
- [47] P.-G. de GENNES. *Scaling Concepts in Polymer Physics*. Cornell University Press, Ithaca, 1979.
- [48] G. DEBRÉGEAS, H. TABUTEAU, et J.-M di MEGLIO. « Deformation and Flow of a Two-Dimensional Foam under Continuous Shear ». *Phys. Rev. Lett.*, 87 : 178305, 2001.
- [49] C. DEREC, A. AJDARI, et F. LEQUEUX. « Rheology and aging : A simple approach ». *Eur. Phys. J. E*, 4 : 355, 2001.
- [50] V. S. DESHPANDE, A. NEEDLEMAN, et E. Van der GIESSEN. « Dislocation dynamics is chaotic ». *Scripta Materialia*, 45 : 1047, 2001.
- [51] O. DIAT. « *Effet du cisaillement sur des phases lyotropes : phase lamellaire et phase éponge* ». Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 1992.
- [52] O. DIAT et D. ROUX. « Preparation of monodisperse multilayer vesicles of controlled size and high encapsulation ratio ». *J. Phys. II (France)*, 3 : 9, 1993.
- [53] O. DIAT, D. ROUX, et F. NALLET. « Effect of shear on a lyotropic lamellar phase ». *J. Phys. II (France)*, 3 : 1427, 1993.

- [54] O. DIAT, D. ROUX, et F. NALLET. « Layering effect in a sheared lyotropic lamellar phase ». *Phys. Rev. E*, 51 : 3296, 1995.
- [55] C. DRUMMOND, J. ELEZGARAY, et P. RICHETTI. « Behavior of adhesive boundary lubricated surfaces under shear : A new dynamic transition ». *Europhys. Lett.*, 58 : 503, 2002.
- [56] C. DRUMMOND et J. ISRAELACHVILI. « Dynamic phase transitions in confined lubricant fluids under shear ». *Phys. Rev. E*, 63 : 041506, 2001.
- [57] E. EISER, F. MOLINO, G. PORTE, et O. DIAT. « Non homogeneous textures and banded flows in a soft cubic phase under shear ». *Phys. Rev. E*, 61 : 6759, 2000.
- [58] S. M. FIELDING et P. D. OLMSTED. « Flow phase diagrams for concentration-coupled shear banding ». *Eur. Phys. J. E*, 11 : 65, 2003.
- [59] E. FISCHER et P. T. CALLAGHAN. « Shear banding and the isotropic-to-nematic transition in wormlike micelles ». *Phys. Rev. E*, 64 : 011501, 2001.
- [60] P. FISCHER. « Time dependent flow in equimolar micellar solutions : transient behavior of the shear stress and first normal stress induced structures coupled with flow instabilities ». *Rheol. Acta*, 39 : 234, 2000.
- [61] S. V. FRANKLIN, F. MERTENS, et M. MARDER. « Portevin-Le Chatelier effect ». *Phys. Rev. E*, 62 : 8195, 2000.
- [62] G. G. FULLER, J. M. RALLISON, R. L. SCHMIDT, et L. G. LEAL. « The measurements of velocity gradients in laminar flows by homodyne light-scattering spectroscopy ». *J. Fluid Mech.*, 100 : 555, 1980.
- [63] R. GILMORE. « Topological analysis of chaotic dynamical systems ». *Rev. Mod. Phys.*, 70 : 1455, 1998.
- [64] J. P. GOLLUB et M. H. FREILICH. « Optical heterodyne study of the Taylor instability in a rotating fluid ». *Phys. Rev. Lett.*, 33 : 1465, 1974.
- [65] J. P. GOLLUB et H. L. SWINNEY. « Onset of Turbulence in a Rotating Fluid ». *Phys. Rev. Lett.*, 35 : 927, 1975.
- [66] J. L. GOVEAS et P. D. OLMSTED. « A minimal model for vorticity and gradient banding in complex fluids ». *Eur. Phys. J. E*, 6 : 79, 2001.
- [67] C. GRAND, J. ARRAULT, et M. E. CATES. « Slow transient and metastability in wormlike micelles ». *J. Phys. II France*, 7 : 1071, 1997.
- [68] P. GRASSBERGER et I. PROCACCIA. « Characterization of Strange Attractors ». *Phys. Rev. Lett.*, 50 : 346, 1983.

- [69] A. GROISMAN et V. STEINBERG. « Mechanism of elastic instability in Couette flow of polymer solutions : Experiment ». *Phys. Fluids*, 10 : 2451, 1998.
- [70] A. GROISMAN et V. STEINBERG. « Elastic turbulence in a polymer solution flow ». *Nature*, 405 : 53, 2000.
- [71] M. GROSSO, R. KEUNINGS, S. CRESCITELLI, et P. L. MAFFETTONE. « Prediction of Chaotic Dynamics in Sheared Liquid Crystalline Polymers ». *Phys. Rev. Lett.*, 86 : 3184, 2001.
- [72] J. GUCKENHEIMER et P. HOLMES. *Nonlinear Oscillations, Dynamical Systems, and Bifurcations of Vector Fields*. Springer, Berlin, 1984.
- [73] E. GUYON, J.-P. HULIN, et L. PETIT. *Hydrodynamique physique*. InterÉditions/Éditions du CNRS, 1994.
- [74] D. A. HEAD, A. AJDARI, et M. E. CATES. « Jamming, hysteresis, and oscillation in scalar models for shear thickening ». *Phys. Rev. E*, 64 : 061509, 2001.
- [75] D. A. HEAD, A. AJDARI, et M. E. CATES. « Rheological instability in a simple shear-thickening model ». *Europhys. Lett.*, 57 : 120, 2002.
- [76] P. HÉBRAUD, F. LEQUEUX, J. P. MUNCH, et D. J. PINE. « Yielding and Rearrangements in Disordered Emulsions ». *Phys. Rev. Lett.*, 78 : 4657, 1997.
- [77] W. HELFRICH. « Steric interaction of fluid membranes in multilayer systems. ». *Z. Naturforsch.*, 33a : 305, 1978.
- [78] P. HERVÉ, D. ROUX, A.-M. BELLOCQ, F. NALLET, et T. GULIK-KRZYWICKI. « Dilute and concentrated phases of vesicles at thermal equilibrium ». *J. Phys. II France*, 3 : 1255, 1993.
- [79] R. L. HOFFMAN. « Discontinuous and dilatant viscosity behavior in concentrated suspensions. I. Observation of a flow instability ». *Trans. Soc. Rheol.*, 16 : 155, 1972.
- [80] R. L. HOFFMAN. « Discontinuous and dilatant viscosity behavior in concentrated suspensions. II. Theory and experimental tests ». *J. Colloid Interface Sci.*, 46 : 491, 1974.
- [81] Y. T. HU, P. BOLTENHAGEN, E. MATTHYS, et D. J. PINE. « Shear-Thickening In Low-Concentration Solutions Of Worm-Like Micelles II : Slip, Fracture, And Stability Of The Shear-Induced Phase ». *J. Rheol.*, 42 : 1209, 1998.
- [82] Y. T. HU, P. BOLTENHAGEN, et D. J. PINE. « Shear-Thickening In Low-Concentration Solutions Of Worm-Like Micelles I : Direct Visualization Of Transient Behavior And Phase Transitions ». *J. Rheol.*, 42 : 1185, 1998.

- [83] A.-S. KREPPER-WUNENBURGER. « *Étude des instabilités de texture induites par un écoulement de cisaillement dans les phases lamellaires lyotropes* ». Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 2000.
- [84] L. P. KUBIN, G. ANANTHAKRISHNA, et C. FRESSENGEAS. « Comment on "Portevin-Le Chatelier effect" ». *Phys. Rev. E*, 65 : 053501, 2002.
- [85] R. G. LARSON. *The Structure and Rheology of Complex Fluids*. Oxford University Press, 1999.
- [86] R. G. LARSON, E. S. G. SHAQFEH, et S. J. MULLER. « A purely elastic instability in Taylor-Couette flow ». *J. Fluid Mech.*, 218 : 573, 1990.
- [87] A. LEMAÎTRE. « Rearrangements and dilatancy for sheared dense materials ». *Phys. Rev. Lett.*, 89 : 195503, 2002.
- [88] A. LEMAÎTRE. « A Dynamical Approach to Glassy Materials ». E-Print cond-mat/0206417, 2003.
- [89] J. LENG. « *Structure et dynamique de la texture ongon des phases lamellaires lyotropes* ». Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 1999.
- [90] J. LENG, F. NALLET, et D. ROUX. « Swelling kinetics of a compressed lamellar phase ». *Eur. Phys. J. E.*, 4 : 77, 2001.
- [91] E. N. LORENZ. « Deterministic nonperiodic flow ». *J. of Atmos. Sci.*, 20 : 130–141, 1963.
- [92] C.-Y. D. LU, P. D. OLMSTED, et R. C. BALL. « Effects of Nonlocal Stress on the Determination of Shear Banding Flow ». *Phys. Rev. Lett.*, 84 : 642, 2000.
- [93] R. W. MAIR et P. T. CALLAGHAN. « Observation of shear banding in wormlike micelles by NRM velocity imaging ». *Europhys. Lett.*, 36 : 719, 1996.
- [94] K. J. MALOY, W. GOLDBURG, et H. K. PAK. « Spatial coherence of homodyne light scattering from particles in a convective velocity field ». *Phys. Rev. A*, 46 : 3288, 1992.
- [95] P. MANNEVILLE. « Systèmes à grand nombre de degrés de liberté et turbulence ». Dans P. BERGÉ, éditeur, *Le Chaos, Théorie et expériences*. Eyrolles, Paris, 1988.
- [96] P. MANNEVILLE. *Structures dissipatives, chaos et turbulences*. Aléa Saclay CEA, 1991.
- [97] S. MANNEVILLE, L. BÉCU, et A. COLIN. « High-frequency ultrasonic speckle velocimetry in sheared complex fluids ». Soumis à *Eur. Phys. J. B*, 2003.

- [98] T. G. MASON et J. BIBETTE. « Emulsification in Viscoelastic Media ». *Phys. Rev. Lett.*, 77 : 3481, 1996.
- [99] T. G. MASON, J. BIBETTE, et D. A. WEITZ. « Yielding and flow of monodisperse emulsions ». *J. Colloid Interface Sci.*, 179 : 439, 1996.
- [100] T. G. MASON, M.-D. LACASSE, G. S. GREY, D. LEVINE, J. BIBETTE, et D. A. WEITZ. « Osmotic pressure and viscoelastic shear moduli of concentrated emulsions ». *Phys. Rev. E*, 56 : 3150, 1997.
- [101] F. MERTENS, S. V. FRANKLIN, et M. MARDER. « Dynamics of Plastic Deformation Fronts in an Aluminum Alloy ». *Phys. Rev. Lett.*, 78 : 4502, 1997.
- [102] J. MEWIS, M. MORTIER, J. VERMANT, et P. MOLDENAERS. « Experimental Evidence for the Existence of a Wagging Regime in Polymeric Liquid Crystals ». *Macromolecules*, 30 : 1323, 1997.
- [103] C. MEYER. « *Rhéologie et caractérisation de phases lamellaires, smectiques A, cholestériques et TGB de cristaux liquides, extension à l'étude des transitions de phases* ». Thèse de doctorat, Université Paris VI, 2001.
- [104] C. MEYER, S. ASNACIOS, C. BOURGAUX, et M. KLEMAN. « Universal properties of lamellar systems under weak shear ». *Eur. Phys. J. E*, 6 : 245, 2001.
- [105] C. MONTHUS et J.-P. BOUCHAUD. « Models of traps and glass phenomenology ». *J. Phys. A*, 29 : 3847, 1996.
- [106] S. J. MULLER, R. G. LARSON, et E. S. G. SHAQFEH. « A purely elastic transition in Taylor-Couette flow ». *Rheol. Acta*, 28 : 499, 1989.
- [107] F. NALLET, D. ROUX, et J. PROST. « Dynamic Light Scattering Study of Dilute Lamellar Phases ». *Phys. Rev. Lett.*, 62 : 276, 1988.
- [108] P. NOZIERES et D. QUEMADA. « A possible instability mechanism for plug formation in a sheared suspension flow ». *Europhys. Lett.*, 2, 1986.
- [109] P. D. OLMSTED. « Two-state shear diagrams for complex fluids in shear flow ». *Europhys. Lett.*, 48 : 339, 1999.
- [110] P. D. OLMSTED et P. M. GOLDBART. « Theory of the nonequilibrium phase transition for nematic liquid crystals under shear flow ». *Phys. Rev. A*, 41 : 4578, 1990.
- [111] P. D. OLMSTED et P. M. GOLDBART. « Isotropic-nematic transition in shear flow : State selection, coexistence, phase transitions, and critical behavior ». *Phys. Rev. A*, 46 : 4966, 1992.

- [112] P. D. OLMSTED et C.-Y. D. LU. « Coexistence and phase separation in sheared complex fluids ». *Phys. Rev. E*, 56 : 55, 1997.
- [113] P. PAKDEL et G. H. MCKINLEY. « Elastic Instability and Curved Streamlines ». *Phys. Rev. Lett.*, 77 : 2459, 1996.
- [114] P. PANIZZA, P. ARCHAMBAULT, et D. ROUX. « Effects of Shear on the Smectic A Phase of Thermotropic Liquid Crystals ». *J. Phys. II*, 5 : 303, 1995.
- [115] P. PANIZZA, A. COLIN, C. COULON, et D. ROUX. « A dynamic study of onion phases under shear flow : size changes ». *Eur. Phys. J. B*, 4 : 65–74, 1998.
- [116] P. PANIZZA, D. ROUX, V. VUILLAUME, C.Y.D. LU, et M.E. CATES. « Viscoelasticity of the onion phase ». *Langmuir*, 12 : 248, 1996.
- [117] G. PICARD, A. AJDARI, L. BOCQUET, et F. LEQUEUX. « Simple model for heterogeneous flows of yield stress fluids ». *Phys. Rev. E*, 66 : 051501, 2002.
- [118] F. PIGNON, A. MAGNIN, et J.-M. PIAU. « Thixotropic colloidal suspensions and flow curves with minimum : Identification of flow regimes and rheometric consequences ». *J. Rheol.*, 40 : 573, 1996.
- [119] L. PORCAR, W. A. HAMILTON, et P. D. BUTLER. « Scaling of Shear-Induced Transformations in Membrane Phases ». *Phys. Rev. Lett.*, 89 : 168301, 2002.
- [120] G. PORTE, J. APPELL, P. BASSERAU, J. MARIGNAN, M. SKOURI, I. BILLARD, et M. DELSANTI. « Lamellar versus isotropic structures in dilute phases of fluid membranes ». *Physica A*, 176 : 168, 1991.
- [121] E. PRATT et M. DENNIN. « Nonlinear stress and fluctuation dynamics of sheared disordered wet foam ». *Phys. Rev. E*, 67, 2003.
- [122] H. M. PRINCEN et A. D. KISS. « Rheology of foams and highly concentrated emulsions. IV. An experimental study of the shear viscosity and yield stress of concentrated emulsions ». *J. Colloid Interface Sci.*, 128 : 176, 1989.
- [123] O. RADULESCU et P. D. OLMSTED. « Matched asymptotic solutions for the steady banded flow of the diffusive Johnson Segalman model in various geometries ». *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 91 : 143, 2000.
- [124] O. RADULESCU, P. D. OLMSTED, J.-P. DECRUPPE, S. LEROUGE, J.-F. BERRET, et G. PORTE. « Time scales in shear banding of wormlike micelles ». *Europhys. Lett.*, 62 : 230, 2003.
- [125] L. RAMOS et L. CIPELLETTI. « Ultraslow Dynamics and Stress Relaxation in the Aging of a Soft Glassy System ». *Phys. Rev. Lett.*, 87 : 245503, 2001.

- [126] L. RAMOS, F. MOLINO, et G. PORTE. « Shear-melting in lyotropic hexagonal phases ». *Langmuir*, 16 : 5846, 2000.
- [127] H. REHAGE et H. HOFFMANN. « Viscoelastic surfactant solutions : model systems for rheological research ». *Mol. Phys.*, 74 : 933, 1991.
- [128] P. RICHETTI, J.-C. ROUX, F. ARGOUL, et A. ARNÉODO. « From quasiperiodicity to chaos in the Belousov-Zhabotinskii reaction. II. Modeling and theory ». *J. Chem. Phys.*, 86 : 3339, 1987.
- [129] G. RIENÄCKER, M. KRÖGER, et S. HESS. « Chaotic orientational behavior of a nematic liquid crystal subjected to a steady shear flow ». *Phys. Rev. E*, 66 : 040702, 2002.
- [130] O. E. RÖSSLER. « An equation for continuous chaos ». *Phys. Lett. A*, 57 : 397, 1976.
- [131] D. ROUX, A. COLIN, J. LENG, et A.-S. WUNENBERGER. « Equilibrium and flow properties of surfactants in solution ». Dans M. E. CATES et M. R. EVANS, éditeurs, *Soft and Fragile Matter : Non Equilibrium Dynamics Metastability and Flow*. Institute of Physics Publishing (Bristol), 2000.
- [132] D. ROUX, C. COULON, et M. E. CATES. « Sponge phases in surfactant solutions ». *J. Phys. Chem.*, 96 : 4174, 1992.
- [133] D. ROUX, F. NALLET, et O. DIAT. « Rheology of lyotropic lamellar phases ». *Europhys. Lett.*, 24 : 53, 1993.
- [134] J.-B. SALMON, L. BÉCU, S. MANNEVILLE, et A. COLIN. « Towards local rheology of emulsions under Couette flow using Dynamic Light Scattering ». *Eur. Phys. J. E*, 10 : 209, 2003.
- [135] J.-B. SALMON, A. COLIN, S. MANNEVILLE, et F. MOLINO. « Velocity Profiles in Shear-Banding Wormlike Micelles ». *Phys. Rev. Lett.*, 90 : 228303, 2003.
- [136] J.-B. SALMON, A. COLIN, et D. ROUX. « Dynamical behavior of a complex fluid near an out-of-equilibrium transition : Approaching simple rheological chaos ». *Phys. Rev. E*, 66 : 031505, 2002.
- [137] J.-B. SALMON, S. MANNEVILLE, A. COLIN, et B. POULIGNY. « An optical fiber based interferometer to measure velocity profiles in sheared complex fluids ». *Eur. Phys. J. AP*, 22 : 143, 2003.
- [138] S. SANYAL, D. YAVICH, et L. G. LEAL. « Dynamics of Entangled Polymeric Fluids in Two-roll Mill studied via Dynamic Light Scattering and Two-color flow Birefringence. I. Steady flow ». E-print cond-mat/0006275, 2000.

- [139] V. SCHMITT, F. LEQUEUX, A. POUSSE, et D. ROUX. « Flow Behavior and Shear Induced Transition near an Isotropic/Nematic Transition in Equilibrium Polymers ». *Langmuir*, 10 : 955, 1994.
- [140] V. SCHMITT, C. M. MARQUES, et F. LEQUEUX. « Shear-induced phase separation of complex fluids : The role of flow-concentration coupling ». *Phys. Rev. E*, 52 : 4009, 1995.
- [141] E. S. G. SHAQFEH. « Purely elastic instabilities in viscometric flows ». *Annu. Rev. Fluid. Mech.*, 28 : 129, 1996.
- [142] P. SIERRO. « Effet du cisaillement sur la phase lamellaire du système quaternaire Octanol/SDS/Eau/NaCl ». Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 1995.
- [143] P. SIERRO et D. ROUX. « Structure of a Lyotropic Lamellar Phase under Shear ». *Phys. Rev. Lett.*, 78 : 1496, 1997.
- [144] P. SOLLICH, F. LEQUEUX, P. HÉBRAUD, et M. E. CATES. « Rheology of Soft Glassy Materials ». *Phys. Rev. Lett.*, 78 : 2020, 1997.
- [145] J. F. A. SOLTERO, F. BAUTISTA, J. E. PUIG, et O. MANERO. « Rheology of Cetyltrimethylammonium p-Toluenesulfonate-Water System. 3. Nonlinear Viscoelasticity ». *Langmuir*, 15 : 1604, 1999.
- [146] N. A. SPENLEY, M. E. CATES, et T. C. B. MCLEISH. « Nonlinear Rheology of Wormlike Micelles ». *Phys. Rev. Lett.*, 71 : 939, 1993.
- [147] F. TAKENS. « Dynamical Systems and Turbulence ». Dans D. RAND et L.-S. YOUNG, éditeurs, *Lecture Notes in Mathematics No. 898*. Springer, Berlin, 1981.
- [148] F. VARNIK, L. BOCQUET, J.-L. BARRAT, et L. BERTHIER. « Shear Localization in a Model Glass ». *Phys. Rev. Lett.*, 90 : 095702, 2003.
- [149] V. VIASNOFF et F. LEQUEUX. « Rejuvenation and Overaging in a Colloidal Glass under Shear ». *Phys. Rev. Lett.*, 89 : 065701, 2002.
- [150] C. VIDAL. « Le chaos dans la réaction de Belousov-Zhabotinsky ». Dans P. BERGÉ, éditeur, *Le Chaos, Théorie et expériences*. Eyrolles, Paris, 1988.
- [151] J. J. WANG, D. YAVICH, et L. G. LEAL. « Time-resolved velocity gradients and optical anisotropy in linear flow by photon correlation spectroscopy ». *Phys. Fluids*, 6 : 3519, 1994.
- [152] S. E. WELCH, M. R. STETZER, G. HU, E. B. SIROTA, et S. H. J. IDZIAK. « Inter-membrane spacing and velocity profiling of a lamellar lyotropic complex fluid under flow using x-ray diffraction ». *Phys. Rev. E*, 65 : 061511, 2002.



- [153] E. K. WHEELER, P. FISCHER, et G. G. FULLER. « Time-periodic flow induced structures and instabilities in a viscoelastic surfactant solution ». *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, 75 : 193, 1998.
- [154] A.-S. WUNENBURGER, A. COLIN, T. COLIN, et D. ROUX. « Undulation instability under shear : A model to explain the different orientations of a lamellar phase under shear ? ». *Eur. Phys. J. E*, 2 : 277, 2000.
- [155] A.-S. WUNENBURGER, A. COLIN, J. LENG, A. ARNÉODO, et D. ROUX. « Oscillating Viscosity in a Lyotropic Lamellar Phase under Shear flow ». *Phys. Rev. Lett.*, 86 : 1374, 2001.
- [156] Y. YEH et H. Z. CUMMINS. « Localized fluid flows measurements with a He-Ne laser spectrometer ». *Appl. Phys. Lett.*, 4, 1964.
- [157] X.-F. YUAN. « Dynamics of a mechanical interface in shear-banded flow ». *Europhys. Lett.*, 46 : 542, 1999.
- [158] A.G. ZILMAN et R. GRANEK. « Undulation instability of lamellar phases under shear : A mechanism for onion formation ? ». *Eur. Phys. J. B*, 11 : 593, 1999.