



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

THESE

presentee

A L'UNIVERSITE DE METZ

pour obtenir le grade de

DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Jean - Paul DECRUPPE



Maitre de conference a la faculte des Sciences de Metz

**Contribution a l'etude de la birefringence d' ecoulement
a la transition
ecoulement de Couette - tourbillons de Taylor**

soutenue le 1 Juillet 1988 devant la Commission d' examen :

President : M. H. BENOIT
Examineurs : MM. M. MOAN
O. SCRIVENER
M. LEBOUCHE
J. G. GASSER
G. KUGEL
R. HOCQUART

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	19880285
Cote	S/M ₃ 88/14
Loc	Magasin

Le travail qui constitue ce mémoire a été effectué au Laboratoire de Physique des Polymères dirigé par Monsieur le Professeur R. Hocquart qui m'a suivi et guidé tout au long de ces études. Ses compétences théoriques m'ont été d'un grand secours dans le développement de la théorie que nous exposerons par la suite.

J'exprime ma vive gratitude à Monsieur le Professeur Benoit qui m'a fait l'honneur d'accepter la présidence du jury ainsi qu'à Monsieur le Professeur M. Moan et Monsieur Scrivener, directeur de recherches à l'Institut de Mécanique des Fluides de Strasbourg qui ont accepté la tâche de rapporteur de ce travail.

Que Messieurs les Professeurs G. Kugel, J. G. Gasser et M. Lebouché trouvent également l'expression de ma reconnaissance pour avoir accepté d'examiner ce travail et de participer au jury.

Je remercie particulièrement mes collègues du laboratoire qui ont su répondre avec beaucoup de patience à mes questions : Monsieur Robert Cressely qui, dès mon arrivée au sein de l'équipe s'est chargé de m'initier à ces techniques expérimentales nouvelles pour moi et avec qui des discussions fructueuses ont eu lieu ; Monsieur Thomas Wydro qui s'est chargé d'élaborer les programmes de calculs numériques et qui a supporté mon impatience avec beaucoup de calme ; enfin Monsieur Blaise Nsom avec qui j'ai pu échanger des idées intéressantes sur les théories de l'écoulement de Taylor.

Je remercie également, notre technicien, Monsieur Claude Georges qui tout au long de ce travail a apporté avec ingéniosité et patience une solution à tous les problèmes techniques que nous avons rencontrés.

La frappe de ce mémoire a été réalisée par Mlle. Serra qui a su s'adapter aux moyens modernes d'édition avec une aisance remarquable.

à ma femme Christine
à mes parents
à mes fils Paul et Daniel
à toute ma famille

LISTE DES FIGURES.

CHAPITRE I.

pages

Fig. 1.1.a. : Section des tourbillons de Taylor	26
Fig. 1.1.b. : Vue de face de la cellule de Couette	26
Fig. 1.2.a. : Transition 4-6 cellules d'après Mullin	28
Fig. 1.2.b. : Transition 2-4 cellules d'après Benjamin	28
Fig. 1.3. : Technique d'échange d'ions	36
Fig. 1.4. : Anémométrie laser	38
Fig. 1.5. : Mesure de couple	40
Fig. 1.6. : Composantes de la perturbation	42
Fig. 1.7. : Courbes de stabilité de l'écoulement	42

CHAPITRE II.

Fig. 2.1. : Schéma de principe de l'ellipsomètre	51
Fig. 2.2. : Modulateur de lumière	55
Fig. 2.3. : Cellule de mesure	57
Fig. 2.4. : Variation de l'angle d'extinction et et excentricité de la cellule	59
Fig. 2.5. : Angle d'extinction du milieu	61
Fig. 2.6. : Principe de la méthode de Sernarmont	61

	pages
Fig. 2.7. : Repérage des lignes neutres du milieu	64
Fig. 2.8. : Mesure de la différence de phase	64
Fig. 2.9. : Evolution de l'angle d'extinction en fonction du gradient de cisaillement	67
Fig. 2.10. : Evolution de la biréfringence en fonction du gradient de cisaillement	67
Fig. 2.11. : Composition des biréfringents parasites	70
Fig. 2.12. : Méthode de Signer	73
Fig. 2.13. : Orientation de la vibration elliptique transmise par un biréfringent	77
Fig. 2.14. : Orientation de la vibration elliptique transmise par un milieu biréfringent et dichroïque	77
 CHAPITRE III.	
Fig. 3.1. : Structure de la bentonite	85
Fig. 3.2. : Structure du Xanthane natif et structure chimique	86
Fig. 3.3. : Structure du virus de la mosaïque du tabac	88
Fig. 3.4.a : Stabilité de la solution de bentonite au cours du temps	91
Fig. 3.4.b : Stabilité de la solution de Xanthane au cours du temps	91
Fig. 3.4.c : Stabilité de la solution de V.M.T. au cours du temps	91
Fig. 3.5.a : Variation de l'angle d'extinction χ aux faibles gradients. Solution de bentonite.	95
Fig. 3.5.b : Intensité de la biréfringence Δn aux faibles gradients .Solution de bentonite.	95
Fig. 3.6.a : Variation de l'angle d'extinction χ aux faibles gradients. Solution de Xanthane.	97
Fig. 3.6.b : Intensité de la biréfringence Δn aux faibles gradients .Solution de Xanthane.	97
Fig. 3.7.a : Variation de l'angle d'extinction χ aux faibles gradients. Solution de V.M.T.	99
Fig. 3.7.b : Intensité de la biréfringence Δn aux faibles gradients .Solution de V.M.T.	99

	pages
Fig. 3.8. : Comparaison entre χ théorique et expérimental Solution de bentonite.	100
Fig. 3.9. : Comparaison entre χ théorique et expérimental Solution de Xanthane.	100
Fig. 3.10. : Comparaison entre χ théorique et expérimental Solution de V.M.T.	101
Fig. 3.11. : Variation de l'angle d'extinction pour les deux sens de rotation du cylindre intérieur.	104
Fig. 3.12.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction du gradient ,au centre de l'entrefer.Cas de la bentonite.	108
Fig. 3.12.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction du gradient ,au centre de l'en- trefer.Cas de la bentonite.	108
Fig. 3.13.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction du gradient ,au centre de l'entrefer.Cas du Xanthane.	109
Fig. 3.13.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction du gradient ,au centre de l'en- trefer.Cas du xanthane.	109
Fig. 3.14.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction du gradient ,au centre de l'entrefer.Cas du V.M.T.	110
Fig. 3.14.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction du gradient ,au centre de l'en- trefer.Cas du V.M.T.	110
Fig. 3.15.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'entrefer pour différen- tes valeurs du gradient.Bentonite.	116
Fig. 3.15.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient.Bentonite.	117
Fig. 3.16.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'entrefer pour différen- tes valeurs du gradient.Xanthane.	118
Fig. 3.16.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient.Xanthane.	119
Fig. 3.17.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'entrefer pour différen- tes valeurs du gradient. V.M.T.	120

Fig. 3.17.b:	Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient. V.M.T.	121
--------------	--	-----

CHAPITRE IV

Fig. 4.1.	: Composante tangentielle de la perturbation	144
Fig. 4.2.	: Composante radiale et axiale de la perturbation	145
Fig. 4.3.	: Courbe de stabilité marginale. $\sigma = 0$	146
Fig. 4.4.	: Composante tangentielle pour différentes valeurs de $T > T_c$	147
Fig. 4.5.	: Composante radiale pour différentes valeurs de $T > T_c$	148
Fig. 4.6.	: Composante axiale pour différentes valeurs de $T > T_c$	149
Fig. 4.7.	: Repère fixe O'XYZ et lié à la particule O'uvw	152
Fig. 4.8.	: Repères liés à la cellule de Couette	152
Fig. 4.9.	: Milieu diélectrique équivalent au milieu réel	165
Fig. 4.10.a:	Solution de bentonite .Centre de l'espace annulaire Variation de l'angle d'extinction en fonction du gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle. ($a < a_c$ en traits pleins , $a > a_c$ en pointillés)	183
Fig.4.10.b :	Solution de bentonite .Centre de l'espace annulaire Variation du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction du gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle. ($a < a_c$ en traits pleins , $a > a_c$ en pointillés)	184
Fig.4.11.a :	Solution de bentonite Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .03	185
Fig.4.11.b :	Solution de bentonite Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .04	186

Fig.4.11.c :	Solution de bentonite Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05	pages 187
Fig.4.11.d :	Solution de bentonite Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .07	188
Fig.4.12.a :	Solution de bentonite Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace an- nulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .04	189
Fig.4.12.b :	Solution de bentonite Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace an- nulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05	190
Fig. 4.13.a:	Solution de V.M.T. Centre de l'espace annulaire Variation de l'angle d'extinction en fonction du gradient pour différentes valeurs du fac- teur d'échelle. ($a > a_c$ en traits pleins , $a < a_c$ en pointillés)	191
Fig.4.13.b :	Solution de V.M.T. Centre de l'espace annulaire Variation du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction du gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle. ($a > a_c$ en traits pleins , $a < a_c$ en pointillés)	192
Fig.4.14.a :	Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$ Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .03	193
Fig.4.14.b :	Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$ Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05	194
Fig.4.15.a :	Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$ Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace an- nulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .03	195
Fig.4.15.b :	Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$ Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace an- nulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05	196

- Fig.4.16 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$ 197
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différents facteurs d'échelle .
 : 0.07 ; — : 0.05 ; ---- : 0.04 ; - - - : 0.02
- Fig.4.17 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$ 198
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différentes valeurs du coefficient de diffusion D_r
 : $D_r = 14$; ---- : $D_r = 12$; — : $D_r = 10$
- Fig.4.18 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$ 199
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différents facteurs d'échelle .
 Coefficient de diffusion = 10
 : 0.09 ; ---- : 0.07 ; — : 0.05
- Fig.4.19 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$ 200
 Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différents facteurs d'échelle .
 : 0.07 ; — : 0.05 ; ---- : 0.04 ; - - - : 0.02

Table des matières

	page
<u>INTRODUCTION</u>	13
<u>CHAPITRE I : EFFET MAXWELL ET TOURBILLONS DE TAYLOR</u>	
1.1. <u>Propriétés optiques des solutions de particules anisodiamétriques en écoulement</u>	17
1.1.1. Etudes expérimentales	17
1.1.2. Théories du régime laminaire	18
a. Liquides purs	
b. Particules rigides	
c. Particules flexibles	
d. Mélanges binaires	
1.2. <u>Régimes d'écoulement en cellule de Couette</u>	23
1.2.1. Origine physique de la première transition	24
1.2.2. Observations expérimentales	25
a. première transition	
b. seconde transition : onde azimutale	
c. passage à la turbulence développée	

	page
1.2.3. Techniques de visualisation et mesures des caractéristiques des transitions	33
a. méthode visuelle	
b. mesures quantitatives	
1.2.4. Théories classiques de la stabilité des écoulements	40
a. théories linéaires	
b. théories non linéaires	
 CHAPITRE II : TECHNIQUE EXPERIMENTALE	
2.1. Description de l'appareillage de mesure	50
2.1.1. L'ellipsomètre	50
2.1.2. Le modulateur de lumière	53
2.1.3. La cellule de mesure	56
2.2. Biréfringence des solutions de particules solides	60
2.2.1. Détermination de l'angle d'extinction	62
2.2.2. Mesure de la différence de phase φ	66
2.3. Erreur dans les mesures expérimentales	69
2.3.1. Détermination de la position des lignes neutres	70
2.3.2. Mesure de la différence de phase	71
2.4. Influence du dichroïsme linéaire et circulaire	74
2.4.1. Milieu biréfringent et dichroïque	75
2.4.2. Milieu biréfringent linéaire doué de pouvoir rotatoire	78

CHAPITRE III : COURBES ET RESULTATS EXPERIMENTAUX

3.1. Les solutions utilisées dans les expériences	84
3.1.1. Caractérisation des particules	85
3.1.2. Préparation	88
3.2. Stabilité des solutions	90
3.3. Coefficient de diffusion de rotation	93
3.3.1 Solution de bentonite	94
3.3.2 Solution de xanthane	96
3.3.3 Solution de virus de la mosaïque du tabac	98
3.3.4 Conclusion	102
3.4. Courbes expérimentales de l'angle d'extinction et de l'intensité de la biréfringence Δn	103
3.4.1 Evolution de l'angle d'extinction et de l'intensité de la biréfringence au centre de la cellule en fonction du gradient G	105
a. Variation de l'angle d'extinction	
b. Variation de l'intensité de la biréfringence Δn	
c. Conclusion	
3.4.2 Evolution de l'angle d'extinction et de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient G	111
a. Variation de l'angle d'extinction	
b. Variation de l'intensité de la biréfringence Δn	
c. Conclusion	

CHAPITRE IV : INTERPRETATION THEORIQUE

4.1. Calcul du champ des vitesses dans l'entrefer d'une cellule de Couette au voisinage de la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor	124
---	-----

4.1.1. Equations du mouvement	124
4.1.2. Intégration des équations	130
4.1.3. Champ des vitesses à la transition	137
4.1.4. Vitesses au delà de T_c	140
<u>4.2. Orientation statistique des particules</u>	150
4.2.1. Fonction de distribution des orientations	150
4.2.2. Vitesses angulaires de rotation d'une particule	151
4.2.3. Résolution de l'équation de diffusion	154
<u>4.3. Calcul de $tg2X$ et Δn en un point de l'entrefer</u>	163
4.3.1. Tenseur des permittivités	163
4.3.2. Angle d'extinction et biréfringence	168
<u>4.4. Valeur moyenne de $tgt2X$ et Δn</u>	172
4.4.1. Composition de biréfringents faibles	172
4.4.2. Angle d'extinction de la solution	173
4.4.3. Intensité de la biréfringence	175
<u>4.5. Confrontation avec les résultats expérimentaux</u>	177
4.5.1. Solution de bentonite : courbes théoriques	178
4.5.2. Solutions de V.M.T. : courbes théoriques	180

<u>CONCLUSION</u>	201
-------------------	-----

Annexes :

- A : Matrice de Mueller
- B : Vitesses d'une particule infiniment longue
- C : Intégrales elliptiques $A_n(0)$
- D : Biréfringence de mélanges binaires
- E : Matrice de passage

INTRODUCTION

L'anisotropie optique qu'acquière de nombreuses solutions ainsi que certains liquides purs lorsqu'ils sont soumis à l'action d'un champ orientant est susceptible d'apporter de précieuses informations sur la structure de ce champ ainsi que sur les caractéristiques physiques des particules en solution.

L'étude des propriétés optiques découlant de cette anisotropie ne requiert l'utilisation que d'un rayon de lumière polarisée linéairement que le milieu traversé, va marquer de ses propres caractéristiques en modifiant l'état de polarisation de la lumière incidente.

La méthode est d'autant plus intéressante que l'outil est simple et ne perturbe en rien le milieu étudié.

La nature du champ orientant peut être très variée : électrique, magnétique, thermique, acoustique et hydrodynamique; nous avons utilisé l'influence de ce dernier pour provoquer l'anisotropie de diverses solutions de particules solides. Du point de vue optique, le liquide en écoulement est alors identique à un cristal biaxe dont l'ellipsoïde des indices admet, en écoulement de Couette classique, le plan d'écoulement comme plan de symétrie : deux des trois indices principaux correspondent donc à deux vibrations appartenant à ce plan.

L'écoulement est réalisé dans une cellule classique de type Couette dans laquelle seul le cylindre intérieur est mobile. Dans ce type de géométrie, nous savons que le champ hydrodynamique subit, lorsque la vitesse angulaire du cylindre croît au-delà d'une certaine limite, plusieurs transitions conduisant en premier lieu à des écoulements périodiques de complexité croissante, puis, en dernier lieu à la turbulence prononcée.

La première transition séparant le régime laminaire circulaire du régime des tourbillons de Taylor a fait l'objet d'un grand nombre de travaux ; elle est caractérisée par une vitesse angulaire critique à laquelle correspond un nombre caractéristique : le nombre de Taylor critique T_c de la transition.

L'objectif de ce travail a été d'étudier le comportement des propriétés physiques induites par l'écoulement à la première transition d'établir les lois théoriques gouvernant ces propriétés au-delà de la transition et enfin, d'examiner dans quelle mesure les caractéristiques optiques intrinsèques des particules en solution pouvaient être déduites de ces nouvelles études.

Le présent ouvrage comprend quatre chapitres dont le premier contient un rapport bibliographique et les trois suivants l'ensemble des travaux expérimentaux et théoriques.

Le chapitre premier est donc consacré aux rappels des théories classiques de la biréfringence d'écoulement en régime laminaire. Il comprend également une description détaillée des différents écoulements réalisables dans une cellule de Couette ainsi qu'une présentation des diverses théories de la stabilité de ces écoulements.

Le chapitre second décrit l'ellipsomètre que nous avons construit en vue de l'étude de la biréfringence d'écoulement au voisinage de la transition ainsi que le dispositif d'analyse électronique des signaux transmis par le milieu.

Une étude détaillée des diverses erreurs introduites par l'imperfection des composants optiques est également entreprise.

Enfin, il arrive fréquemment que, sous l'action du champ hydrodynamique, le milieu doué de biréfringence linéaire présente en plus du dichroïsme linéaire et/ou du pouvoir rotatoire: l'effet de l'une ou l'autre de ces propriétés combinée à la biréfringence est analysé en vue d'en déterminer l'influence sur les mesures effectuées.

Les résultats expérimentaux obtenus pour des solutions aqueuses de trois particules de forme différente sont présentés au chapitre trois. L'étude poursuivie en régime laminaire conduit au coefficient de diffusion de rotation de chaque type de particule ainsi qu'à la détermination de la concentration correspondant au régime diluée.

Les propriétés dynamo-optiques de ces mêmes solutions sont ensuite étudiées expérimentalement en fonction du gradient de cisaillement et, pour différents gradients, en fonction de la position dans l'espace annulaire de la cellule au voisinage de la transition régime laminaire - tourbillons de Taylor.

Enfin le dernier chapitre est consacré au développement de la théorie de la biréfringence d'écoulement dans le domaine de cisaillement correspondant au premier écoulement de Taylor.

L'étude est composée d'une partie hydrodynamique conduisant au calcul de la structure du champ hydrodynamique et à l'établissement de la fonction de distribution de l'orientation de l'axe de révolution du modèle représentant la particule réelle et d'une partie optique donnant l'évolution des deux grandeurs mesurées : l'angle d'extinction χ et l'intensité de la biréfringence A_n . Nous terminerons ce travail par une confrontation entre les résultats théoriques et les mesures expérimentales suivie d'une discussion des perspectives ouvertes par ces études

CHAPITRE 1.

EFFET MAXWELL ET TOURBILLONS DE TAYLOR .

Découverte dans les années 1870 par Maxwell [1] et Mach [2] en étudiant l'écoulement du baume du Canada, la biréfringence d'écoulement a suscité un nombre considérable de travaux tant théoriques qu'expérimentaux . C'est une technique particulièrement intéressante et élégante pour déterminer les caractéristiques géométriques, optiques et de déformabilité des particules mises en solution ou en suspension .

Il est communément admis aujourd'hui que les effets observés proviennent de l'action du champ hydrodynamique sur l'orientation et sur la forme des particules .

On parlera ainsi de biréfringence intrinsèque et de biréfringence de forme .

Dans le cas de l'écoulement d'un fluide visqueux dans une cellule à deux cylindres mobiles concentriques, plusieurs écoulements périodiques succéderont au régime laminaire primaire, à mesure que le nombre de Reynolds croît . Ce sont Lord Rayleigh [3] et G.I. Taylor [4] qui ont jeté les bases théoriques et expérimentales de l'étude de la stabilité de ces écoulements .

1.1. Propriétés optiques de solutions en écoulement .

1.1.1. Etudes expérimentales . -----

L'observation du phénomène ne se limite pas aux seules solutions très visqueuses de baume du Canada étudiées par Maxwell .

On l'observe en effet dans des milieux aussi différents que certains liquides purs ou dans des mélanges binaires .

Les premières études quantitatives portèrent en effet sur le comportement de liquides purs en écoulement de cisaillement dans une cellule à deux cylindres concentriques : ce sont les travaux de Voländer et Walter [5] , [6] sur l'alcool octylique, de Sadron [7] sur l'acide oleïque et divers alcools, de Snellmann et Widström [8] sur l'acide thymonucléique (A.D.N), de Winkler et Kast sur le benzène [9] et enfin de Wayland et Champion sur le cinnamate d'éthyle [10] , [11] .

Parallèlement se déroulèrent les premières expériences sur les polymères de synthèse tels que la nitrocellulose avec Signer [12], le polybutadiène et polyvinylstyrène de Tsvekov et Petrova [13] dans différents solvants tels que le tétrachlorure de carbone et le benzène . A cette époque, les premiers travaux sur les gels de hauts polymères débutèrent également [14] .

On s'aperçut aussi que certaines solutions de particules rigides anisodiamétriques en écoulement présentaient au passage de la lumière une biréfringence relativement élevée : ce sont des solutions de myosine [15], de virus de la mosaïque du tabac [16] , [17] de particules d'argiles (bentonite, hectorite, montmorillonite) [18] , de pentoxide de vanadium [19] .

Enfin, signalons pour terminer cette liste non exhaustive, la biréfringence de certains mélanges binaires au voisinage de la température critique de démixion .

L'effet prévu par la théorie d'Onuki et Kawasaki [20] a été vérifié expérimentalement pour le mélange (n-Hexane)-nitrobenzène [21] .

1.1.2. Théories en régime laminaire .

Le comportement des deux grandeurs déduites des expériences menées dans une cellule de type Couette, à savoir l'angle d'extinction χ et l'intensité de la biréfringence Δn ont suscité l'élaboration de nombreuses théories .

Elles montrent que les caractéristiques propres tels que le coefficient de diffusion de rotation D_r , la différence des polarisabilités principales d'une particule, peuvent être déduites de ces mesures .

Examinons de manière succincte ces différentes théories .

Après les premiers travaux de Kundt [22] qui prévoyaient, en ne tenant compte que de la déformation du milieu, une valeur unique et constante de χ égale à 45° , naquit une théorie plus élaborée due à Zocher [23] qui combine l'action orientante du champ hydrodynamique et l'agitation désordonnée due au mouvement brownien des particules.

a. Liquides purs .

Deux thèses concernant le comportement des liquides purs en gradient de cisaillement ont été émises .

La première est la thèse de Raman-Krishnam [24] qui suppose que le liquide est composé de molécules hautement anisotropes orientées par les forces de traction et de compression . A cet effet se superpose l'agitation thermique des molécules et il en résulte une orientation statistique moyenne, cause de la biréfringence .

Cette théorie prévoit essentiellement que l'angle d'extinction est constant et vaut 45° et que l'intensité de la biréfringence Δn est une fonction linéaire du coefficient de viscosité dynamique ν et du gradient de cisaillement G .

La seconde théorie, due à Peterlin et Stuart [25] stipule qu'au sein d'un liquide, l'orientation des molécules ne peut pas être totalement aléatoire. Il existe un ordre à courte distance "Nahordnung" autour d'une molécule et cet ordre s'étend sur une distance de quelques distances intermoléculaires .

Au sein de ce groupe, les molécules possèdent une orientation moyenne préférentielle dont la direction varie lentement dans le temps .

L'ensemble de ces molécules est enfermé dans une surface ellipsoïdale fictive dont la direction du grand axe est celle de l'orientation préférentielle des molécules .

Le champ hydrodynamique aura pour effet d'orienter l'ensemble de ces volumes fictifs dans la même direction .

Cette théorie conduit à une valeur constante de χ et à une évolution linéaire de la biréfringence en fonction du gradient de cisaillement. Signalons pour clore ce paragraphe, l'interprétation due à Champion [26], de la biréfringence de liquides tels que le tétrachlorure de carbone . Les molécules, à symétrie tétraédrique, soumises au cisaillement, présentent de la biréfringence par suite de la distorsion de la fonction de distribution radiale .

b. Particules rigides . -----

Une revue complète des différentes théories relatives aux propriétés dynamo-optiques des solutions de particules rigides, est donnée par Jerrard [27] .

Les premières théories de Boeder [28], Haller [29] et Kuhn [30], différentes les unes des autres par les restrictions apportées à la forme des particules ou par les expressions différentes des composantes de la vitesse d'une particule, n'ont plus qu'une importance historique .

Une première amélioration fut apportée par Sadron [31] qui utilise les résultats de Jeffery [32] pour décrire le mouvement des particules ellipsoïdales et qui introduisit un champ électrique interne anisotrope pour calculer la polarisation du milieu .

Actuellement, la théorie la plus complète et la plus rigoureuse, est celle de Peterlin et Stuart [33] . Elle prévoit correctement l'évolution de l'angle d'extinction χ et de la biréfringence Δn aux faibles gradients de cisaillement pour des solutions diluées de particules rigides . De nombreuses expériences ont confirmé ses prédictions .

c. Particules flexibles . -----

Parallèlement à leurs études sur le comportement des particules solides, Haller [29] et Kuhn [30] ont jeté les bases des théories de la biréfringence des solutions de particules flexibles .

Dans le modèle de Haller, les particules sphériques et isotropes sont déformées en ellipsoïde par les contraintes externes . Il introduisit également le concept de viscosité interne des particules qui cause des contraintes internes supplémentaires dans la particule déformée afin d'équilibrer l'action extérieure .

Moyennant ces hypothèses, la théorie prévoit une décroissance de l'angle d'extinction χ vers une limite non nulle , mais ne montre pas de saturation de la biréfringence lorsque le gradient croît .

Kuhn étendit son modèle élaboré pour les particules rigides au cas de particules déformables et allongées et ses conclusions concernant χ et Δn sont qualitativement identiques à celles de Haller .

Une étude détaillée des nombreuses théories élaborées pour ce type de particules est donnée par Jerrard [27] .

d. Mélanges binaires .

Ces mélanges subissent une transition du second degré caractérisée par le paramètre d'ordre $C-C_c$: écart entre la concentration C , de l'un des composés, et la concentration critique C_c .

Au voisinage de la température critique T_c , les fluctuations de concentration augmentent, mais le paramètre d'ordre reste à peu près constant sur une distance égale à la longueur de corrélation ξ qui diverge pour $T = T_c$.

Au repos, la fonction de corrélation du paramètre d'ordre est isotrope; il n'en est plus de même, en écoulement où elle est déformée par les contraintes et le milieu devient ainsi anisotrope .

La théorie d'Onuki-Kawasaki [20] prévoit essentiellement une orientation des axes du milieu à 45° de la direction de l'écoulement et pour les faibles taux de cisaillement une forte divergence de l'intensité de la biréfringence au voisinage de T_c .

$$\Delta n = A \eta St^{-\nu} G(x)$$

A est un paramètre dépendant de la constante de Boltzmann et de la température critique, S le gradient de cisaillement et $G(x)$ la fonction de corrélation .

t est la température réduite $(T - T_c)/T_c$.

Nous reporterons en annexe ,les résultats obtenus pour le mélange Nitrobenzène-n Hexane .

Le très grand nombre d'expériences de biréfringence réalisées sur tous les types de fluide : du gaz aux polymères fondus,des liquides purs aux solutions polydisperses confirment la puissance de cette technique non perturbatrice .

Cependant,la complexité des équations régissant l'écoulement ainsi que le comportement des particules,a fait que les théories élaborées sont applicables dans un domaine restreint de gradient (domaine d'écoulement laminaire) .

Nous avons tenté d'établir une relation entre les propriétés dynamo-optiques du milieu et le champ hydrodynamique au voisinage de la première transition connue comme transition régime laminaire-tourbillons de Taylor .

Le paragraphe suivant s'attache à décrire les nombreux écoulements réalisables dans une cellule de type Couette .

1.2. Régimes d'écoulement en cellule de Couette .

Dans le but de vérifier l'hypothèse de la viscosité des fluides en écoulement, Couette [34] conçut une cellule composée de deux cylindres coaxiaux qui deviendra l'outil d'innombrables travaux expérimentaux, tant sur la stabilité des écoulements que l'on peut y réaliser, que sur les propriétés physiques induites par ces écoulements dans des liquides purs ou des solutions de particules . Dans une telle cellule, l'écoulement laminaire d'un liquide visqueux ne peut exister quel que soit la valeur de la vitesse angulaire du ou des cylindres en mouvement; il se produit plusieurs transitions conduisant en premier lieu à d'autres régimes stables mais plus complexes puis à la turbulence prononcée .

D. Coles [35] a proposé une classification des transitions en deux types suivant que le cylindre intérieur tourne plus ou moins vite que l'extérieur .

- transition catastrophique, lorsque la vitesse angulaire du cylindre extérieur est supérieure à celle du cylindre intérieur .

L'écoulement devient très complexe et des îlots de liquide en écoulement laminaire apparaissent dans l'écoulement turbulent .

Les frontières entre les différents domaines sont mouvantes et aléatoires pour certaines conditions expérimentales, tandis que dans d'autres, elles peuvent former un motif quasi-régulier appelé turbulence spirale .

- transition par évolution spectrale, caractéristique des écoulements pour lesquels le rotor intérieur est animé d'une vitesse supérieure à celle du cylindre extérieur .

Dans ce type de transition, le seul nombre de Reynolds ne suffit plus à déterminer de façon univoque l'écoulement périodique .

On pourra dénombrer jusqu'à 70 transitions différentes dans le domaine de vitesses comprises entre la première valeur critique de la vitesse angulaire et environ dix fois cette valeur .

Nous nous bornerons à donner une description détaillée du second type de transition car les mesures expérimentales effectuées l'ont été dans ce cadre .

1.2.1. Origine physique de la première transition .

Selon Coles D.[35] le mécanisme initiateur des tourbillons de Taylor est une sorte de précession gyroscopique qui naît dans le fluide par suite de la non-uniformité de la vitesse tangentielle dans la direction axiale

Il s'ensuit ,que localement le liquide tourne autour d'une direction légèrement inclinée sur l'axe du cylindre.

Les variations de vitesse ont également pour conséquence de rendre le gradient de pression radiale ainsi que l'accélération centripète non-uniforme contribuant ainsi à la création d'un couple qui a pour effet d'entraîner l'axe de précession dans la direction tangentielle Le mouvement de précession entraîne l'apparition de composantes radiales de la vitesse dans le plan méridien de l'écoulement .Ces dernières sont couplées à l'accélération de Coriolis qui maintient la non-uniformité du champ hydrodynamique.

1.2.2. Observations expérimentales .

a. Première transition . Tourbillons de Taylor.

Les premières descriptions expérimentales du régime d'écoulement qui succède au régime laminaire sont dues à Taylor [4] .

Depuis, d'innombrables expériences ont montré la multiplicité des écoulements qui peuvent naître dans une cellule du type Couette .

Considérons une cellule dont le cylindre extérieur est fixe, les extrémités perpendiculaires à l'axe de rotation pouvant être fixés ou mobiles .

Dans le domaine laminaire, l'écoulement peut être caractérisé soit par le nombre de Reynolds, $R = \Omega_1 R_1 d / \nu$, soit par le nombre de Taylor $T = - 4A\Omega_1 d^4 / \nu^2$, Ω_1 représentant la vitesse angulaire du cylindre mobile .

Augmentons graduellement, de manière quasi statique, la vitesse Ω_1 ; pour une première valeur critique T_{c1} du nombre de Taylor, on constate que les premières cellules tourbillonnaires naissent aux extrémités de l'espace annulaire puis remplissent tout cet espace au fur et à mesure que Ω_1 croît .

L'aspect qualitatif du phénomène est schématisé sur les figures (1.1.a) et (1.1.b) qui présentent une coupe ainsi qu'une vue de face de la cellule .

L'écoulement obtenu de cette manière est qualifié de primaire et est défini de manière unique dans un domaine donné du rapport de forme Γ [36 - 37] . Il comporte toujours un nombre pair de cellules contrarotatives lorsque les extrémités de la cellule sont symétriques. (Rapport de forme : longueur de la colonne de liquide / largeur de l'espace annulaire).

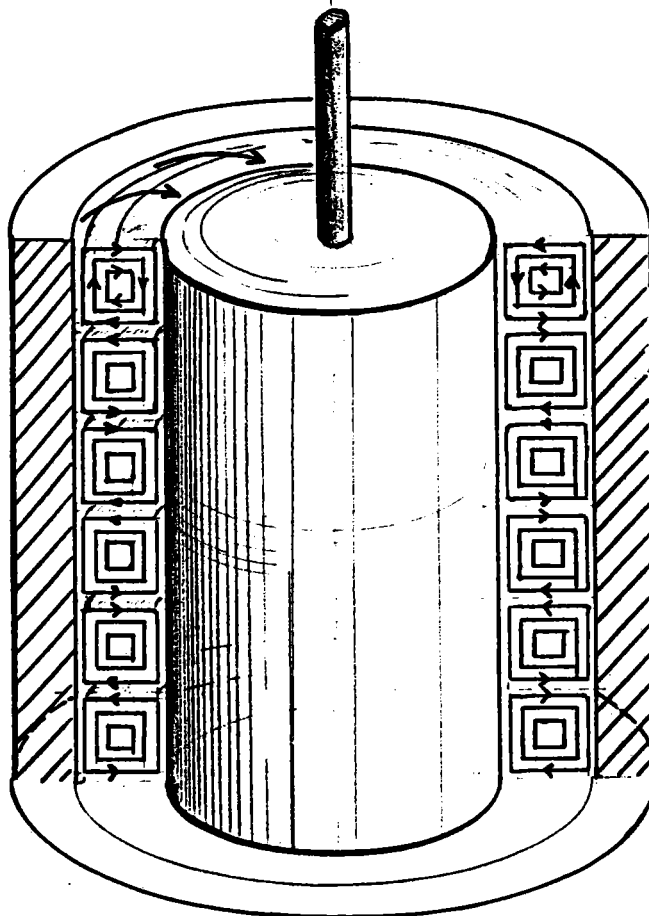


Fig 1.1a

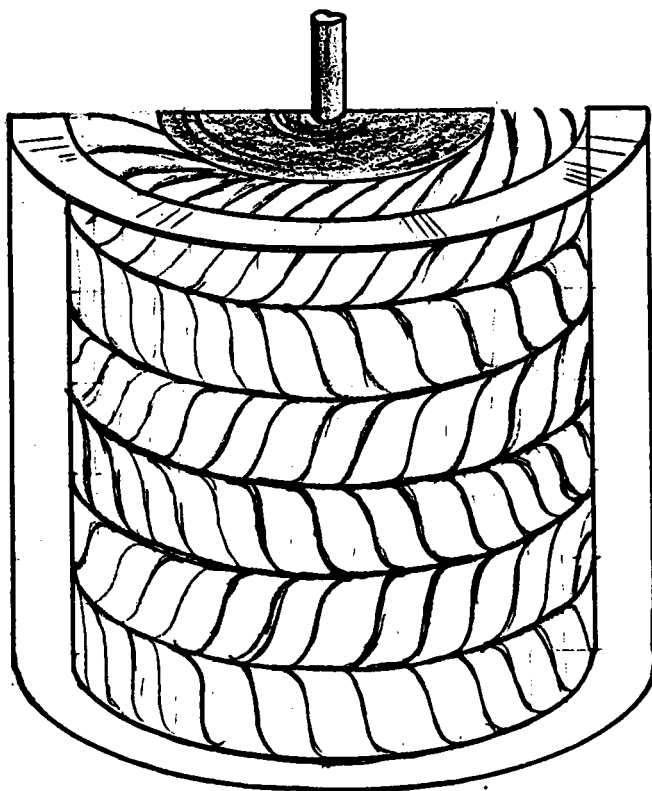


Fig 1.1b

Dans le même domaine du rapport de forme, divers types d'écoulements qualifiés de secondaires et obtenus par un démarrage brusque du mouvement de rotation à une vitesse supérieure à la première vitesse critique, peuvent exister .

Néanmoins, lorsque Ω_1 diminue, tout en restant supérieur à la vitesse critique, ils deviennent instables et l'écoulement bascule à nouveau dans le mode primaire stable correspondant au domaine du rapport de forme utilisé .

L'écoulement primaire d'un domaine de Γ peut apparaître en tant qu'écoulement secondaire pour un autre domaine et inversement .

Le processus de sélection entre les différents modes possibles est bien représenté qualitativement par le graphe des valeurs du nombre de Reynolds critique dans le plan (Γ, R) et dont les figures (1.2.a) et (1.2.b), extraites des travaux de T. MULLIN [36] et BENJAMIN [38] constituent deux exemples . Chaque point des courbes représente le basculement d'un écoulement à $N+2$ cellules vers un état à N cellules et inversement .

Ainsi sur la figure (1.2.a), les points à droite de la ligne CD, obtenus par démarrage brusque, représentent les écoulements secondaires à 6 cellules qui perdent leur stabilité le long de CD pour donner l'écoulement primaire à 4 cellules .

Inversement le long de CB, donc pour un autre domaine du rapport de forme, l'écoulement secondaire à 4 cellules bascule dans l'état primaire à 6 cellules .

Une région particulière du plan (Γ, R) est celle limitée à droite par la portion de courbe CB .

Partant d'un écoulement primaire à 4 cellules (point E), le régime secondaire à 6 rouleaux est atteint lorsque, en augmentant R , on atteint la branche CB de la courbe (point F) .

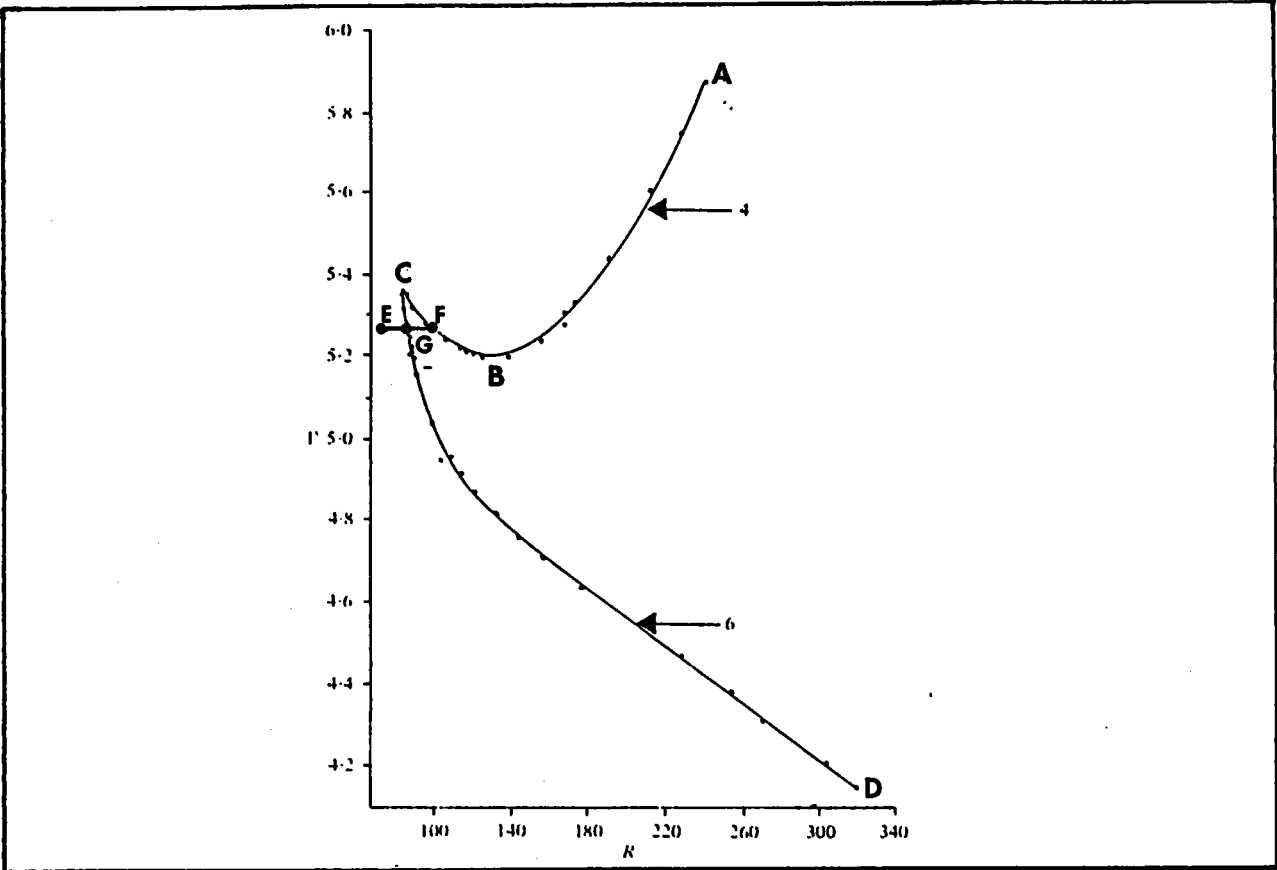


Fig 1.2a Transition 4-6 cellules d'après Mullin

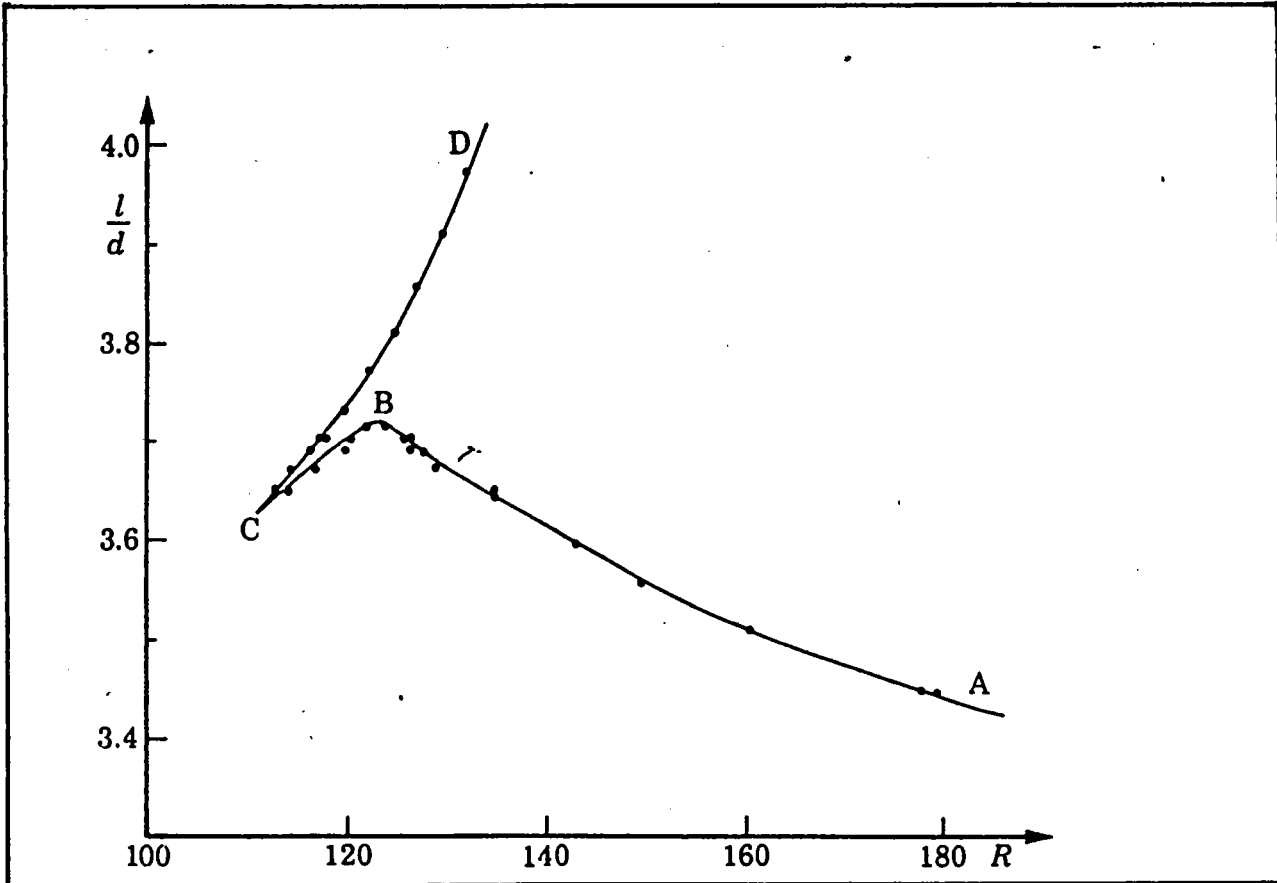


Fig 1.2b Transition 2-4 cellules d'après Benjamin

En réduisant à nouveau graduellement la vitesse, la rupture d'équilibre vers l'écoulement primaire à quatre rouleaux, se produit au point G de la branche CD, et pour un nombre de Reynolds nettement différent de celui correspondant à la transition initiale 4-6 rouleaux . Les ruptures d'équilibre d'un type d'écoulement vers un autre et inversement se font donc avec une certaine hystérésis dont l'importance est de moins en moins prononcée à mesure que Γ croît .

Une différence fondamentale apparaissant dans les deux exemples précédents est l'orientation du point de rebroussement C des courbes . Les théories actuelles ne permettent pas de prévoir cette orientation, et les divers résultats expérimentaux obtenus pour différentes transitions (6-8 cellules , 8-10 cellules) laissent à penser que la compréhension de ce phénomène sera difficile .

On peut cependant remarquer que les effets dus aux deux extrémités de l'espace annulaire doivent jouer un rôle important dans le processus d'échange entre divers types d'écoulements, puisque pour un domaine de Γ sensiblement identique, MULLIN et BENJAMIN obtiennent des résultats différents en ce qui concerne l'orientation de la courbure de la branche BC .

Ces types d'écoulements, primaires et secondaires, sont qualifiés de normaux en ce sens que le liquide s'écoule toujours vers l'intérieur dans les tourbillons situés aux extrémités de l'espace annulaire . Des modes qualifiés d'anormaux peuvent être obtenus dans des cellules de Couette relativement petites et pour des nombres de Reynolds suffisamment grands .

Ce sont par exemple, les écoulements à nombre impair de cellules, obtenus par BENJAMIN et MULLIN [38], [39] . La vitesse radiale n'a pas le même sens aux deux extrémités de la cellule contrairement aux modes normaux primaires ou secondaires .

Plus surprenant est le mode secondaire à nombre pair de cellules mais dont l'écoulement se fait vers l'extérieur dans les cellules situées aux deux extrémités de l'espace annulaire .

En plus du simple dénombrement des cellules primaires ou secondaires, l'écoulement primaire peut être caractérisé par sa longueur d'onde axiale dont la valeur critique sera notée λ_c .
(λ : rapport de l'épaisseur de deux cellules consécutives à la longueur de l'espace annulaire) .

La théorie linéaire (comme il sera développé au chapitre IV) prévoit un continuum de longueur d'onde pour T variant autour de T_c et qui montrera que des écoulements de Taylor stables peuvent exister dans le domaine instable prévu par l'approximation linéaire .

Il subsiste cependant une question : quelle sera la longueur d'onde de l'écoulement obtenue par les différents modes pour un rapport d'aspect Γ donné ?

Des études expérimentales [41] et théoriques [42] ont montré qu'au voisinage supérieur immédiat de T_c et lorsque la vitesse de rotation du cylindre mobile croît de façon quasi-statique, la longueur d'onde des régimes supercritiques reste constante et égale à λ_c .

Cependant, il n'en est pas de même pour les écoulements obtenus par démarrage brusque du mouvement et pour lesquels BURKHALTER et KOSCHMIEDER [43] ont montré qu'il existait pratiquement un continuum de longueurs d'onde effectives permises pour un rapport de forme donné. De toutes ces considérations, il ressort qu'un écoulement axisymétrique unique par sa longueur d'onde dont la valeur critique λ_c est en accord avec les résultats déduits des équations linéarisées de Navier-Stokes, est obtenu par accroissement lent et progressif de la vitesse angulaire du cylindre mobile .

Il conviendra donc, aux cours des mesures expérimentales, de respecter cette condition de variation quasi-statique de Ω_1 .

b. Seconde transition - onde azimutale .

Lorsque l'on continue d'accroître la vitesse angulaire du cylindre intérieur, une seconde modification importante de l'écoulement apparaît à partir d'une seconde valeur critique : Ω_{c2} .

L'écoulement devient doublement périodique et dépendant du temps : une onde azimutale se superpose à l'écoulement tourbillonnaire primaire .

La découverte de ce régime doublement périodique est due à D. COLES [35] qui a dénombré pas moins de 25 états différents pour une vitesse et un rapport d'aspect donnés .

Par état, nous entendons un écoulement défini par un nombre n de cellules contrarotatives et m d'onde azimutale . Comme n l'était précédemment, les valeurs de n et m dépendent, dans ce domaine, non seulement de la vitesse angulaire du rotor mais également de l'histoire antérieure de l'écoulement .

Les mutations, ou passage d'un état vers un autre, affectent l'une ou l'autre des valeurs de m et n ou le couple (m, n) .

La multiplicité des conditions expérimentales et du choix des valeurs de n et m rend difficilement comparables les différentes conclusions émanant de nombreuses expériences .

Citons les expériences de stabilité des écoulements effectuées par A. LORENZEN et al. [44] dans une cellule à extrémités fixes et en présence d'un écoulement caractérisé par $m=3$, celles de B. COLE [45] dans une cellule dont l'extrémité supérieure est ouverte et enfin les travaux de SNYDER [1.46] utilisant une cellule de Couette originale à base inférieure tournante et surface supérieure du liquide libre afin de maintenir constante la longueur d'onde axiale du

mouvement en ajoutant ou retranchant du liquide .

Une conclusion, générale et énoncée par tous les auteurs, se dégage de ces travaux .

Le rapport d'aspect Γ joue un rôle primordial sur la seconde valeur critique du nombre de Reynolds .

Les ondes azimutales apparaissent pour des valeurs de Ω_1 d'autant plus grandes que L , longueur de l'espace annulaire, est petite : résultats confirmés par observations visuelles et mesures de couple. On notera enfin qu'un bon accord entre les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux concernant la seconde vitesse angulaire critique est obtenu pour des valeurs de $\Gamma > 40$: effets d'extrémités peu importants .

c. Passage à la turbulence .

La vitesse angulaire Ω_1 augmentant encore, le nombre d'harmoniques dans le mouvement azimutal croît, rendant ainsi l'écoulement de plus en plus complexe ; cependant la structure régulière de l'écoulement primaire est perceptible jusqu'à des vitesses angulaires très élevées pour des cellules à entrefer large .

Dans une cellule de $\Gamma = 12$, et pour laquelle la largeur de l'espace annulaire égale à 5 mm, nous avons observé une structure régulière jusqu'à des nombres de Reynolds égaux à 33 fois le Reynolds correspondant à l'apparition des tourbillons de Taylor .

G.P. SMITH et A.A. TOWNSEND [47] ont étudié l'écoulement jusqu'à des nombres de Taylor égaux à 10^5 le Taylor critique correspondant à la première transition et noté une structure axiale régulière de l'écoulement ayant une longueur d'onde proche à celle de l'écoulement axisymétrique .

La multiplicité des conditions expérimentales conduisant à un très grand nombre d'écoulements différents semble rendre l'interprétation théorique inextricable .

Il apparaîtra, cependant, que les caractéristiques du mode primaire déterminées expérimentalement sont en bon accord avec les prédictions théoriques .

1.2.3. Techniques de visualisation et méthodes de mesure . -----

Deux grandes classes de méthodes ont permis la réalisation des nombreuses études expérimentales figurant dans la littérature : la méthode visuelle plutôt qualitative, et la mesure d'une propriété modifiée par l'apparition des divers écoulements .

a. Méthode visuelle . -----

Il s'agit de la méthode la plus simple à mettre en oeuvre et la plus largement utilisée par les auteurs .

Des pigments d'Aluminium ou des plaquettes de Kalliroscope sont mis en suspension dans le liquide soumis au cisaillement . Elles s'orientent en moyenne préférentiellement dans une direction dépendant du point considéré dans le cas des écoulements axisymétriques ou doublement périodiques .

Il en résulte que la lumière incidente est réfléchie dans des directions privilégiées qui présentent la même symétrie que l'écoulement et rendant ainsi l'observation visuelle du phénomène très aisée .

Différents auteurs dont D. COLES [35] ont également utilisé un autre type d'éclairage : la source lumineuse est placée à l'intérieur du cylindre mobile et l'oeil, une plaque photographique ou un photomultiplicateur, regardent la lumière transmise par le milieu . Notons enfin que les concentrations en particules utilisées pour la visualisation n'ont aucune influence sur la viscosité des solutions.

b. Mesures quantitatives .

Nous examinerons successivement les techniques d'échange d'ions, de polarographie, d'anémométrie laser et de mesure de couple . Nous verrons également par la suite (chap. III) que nos mesures de biréfringence d'écoulement sont à rapprocher des mesures de couple dans le sens qu'elles permettent également de détecter la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor .

- Technique d'échange d'ions .

Elle est basée sur les modifications apportées par l'écoulement à la densité de courant électrique dans le liquide soumis à un champ électrique E .

Lorsqu'une électrode métallique (α') (constituée d'or) est plongée dans un liquide contenant des ions (qui sont les impuretés), il se forme autour de celle-ci une double couche électrique composée des ions adsorbés eux-mêmes et de leur image électrique dans le métal . Du fait de la diffusion des ions, l'épaisseur de la couche adsorbée s'étend sur une distance δ_0 .

Supposons que les deux cylindres, séparés par un liquide faiblement conducteur soumis au champ E , constituent deux électrodes métalliques .

Donnelly [48] attribue la variation de la densité de courant dans le fluide à une modification de l'épaisseur δ_0 de la double couche localisée sur chacune des électrodes .

Cette variation est due à la migration par convection radiale des ions de l'une des électrodes vers l'autre .

En adoptant comme solution pour l'écoulement, les résultats de la théorie linéaire qui prévoit que, au delà de T_c les composantes radiales, tangentiellles et axiales de la perturbation s'écrivent :

$$v_r = A_e u_1(r) \cos kz$$

$$v_\theta = A_e v_1(r) \cos kz$$

$$v_z = A_e w_1(r) \sin kz$$

on établit l'expression de la densité de courant dans le fluide

$$i = -(A_e Q \delta_0 / d) \cos kz - K_0 E$$

où A_e est l'amplitude d'équilibre, Q la charge adsorbée , δ_0 l'épaisseur de la double couche , d la largeur de l'espace annulaire , K_0 une constante et E le champ électrique appliqué.

De cette expression, on remarque que i est constant dans le régime laminaire .

Pour T supérieur, mais voisin de T_c , i est une fonction sinusoïdale de z de nombre d'onde k égal à celui de la perturbation axisymétrique ; de plus, l'élongation maximale est directement proportionnelle à l'amplitude d'équilibre A_e de la perturbation .

Cette méthode, tout à fait intéressante, est mise en pratique de la manière suivante : le rotor et le cylindre extérieur (stator) de la cellule de Couette constituent les deux électrodes soumises à une différence de potentiel V .

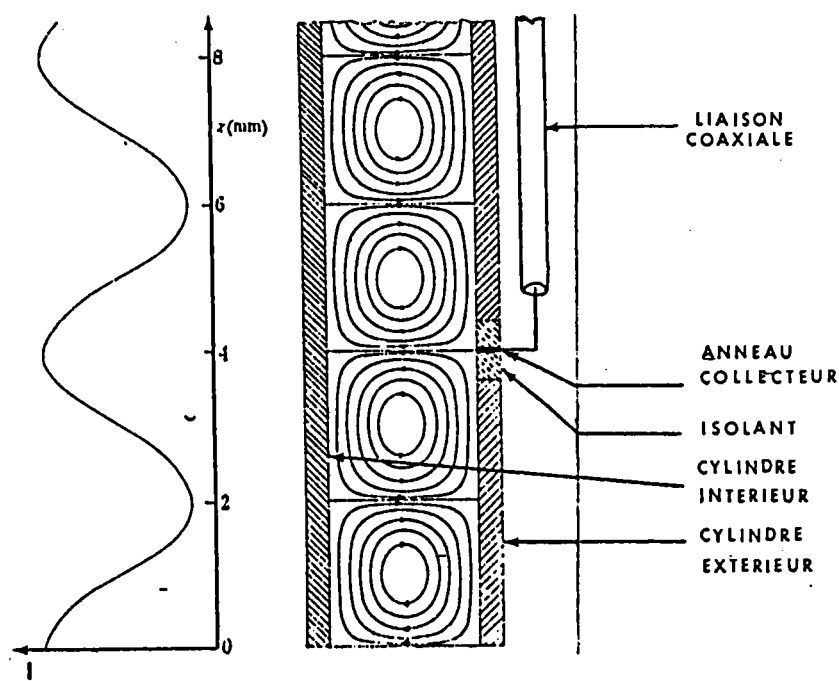


Fig 133 Technique d'échange d'ions

Le stator comporte également un anneau métallique isolé du reste du cylindre et qui fait office de collecteur d'ions . Couplé à un dispositif électronique adéquat, il permet la mesure de la densité de courant i . Le cylindre extérieur est également doué d'un mouvement de translation dans la direction de l'axe z afin de mesurer i en différents points répartis le long de cet axe .

- Méthode polarographique .

C'est encore une méthode basée sur la migration d'ions en solution . Le liquide en écoulement est un système oxydo-réducteur .

On y plonge une électrode métallique portée à un potentiel E, différent du potentiel d'équilibre du couple oxydo-réducteur [49] , [102].

Il y naît un courant électrique qui circule tant que les concentrations, en oxydant C_{ox} et réducteur C_r , sont différentes de celles qui satisfont à la relation :

$$E = E_0 + \frac{RT}{nF} \lg \frac{C_{ox}}{C_r}$$

où R est la constante des gaz parfaits , F le Faraday , n la valence des ions en solutions, T la température absolue.

La valeur moyenne du courant limite est donnée par :

$$I = cste \left[\frac{D_2 S}{L} \right]^{1/3}$$

Il y apparaît que I est proportionnel à la puissance 1/3 du gradient moyen de vitesse S .

En déplaçant la sonde polarographique dans la direction axiale, on peut repérer les limites d'une cellule de Taylor et déterminer ainsi le nombre d'onde de l'écoulement .

- Anémométrie laser .

La sonde de mesure est immatérielle puisqu'elle est constituée de deux faisceaux laser qui interfèrent dans un petit volume du liquide en écoulement . La mesure ne perturbe donc en rien l'écoulement et fournit pratiquement des mesures ponctuelles de vitesse .

Des particules de très petites dimensions et sans inertie traversent le champ d'interférences constitué de franges alternativement brillantes et sombres .

Elles diffusent ainsi un flux lumineux modulé à une fréquence proportionnelle à leur vitesse .

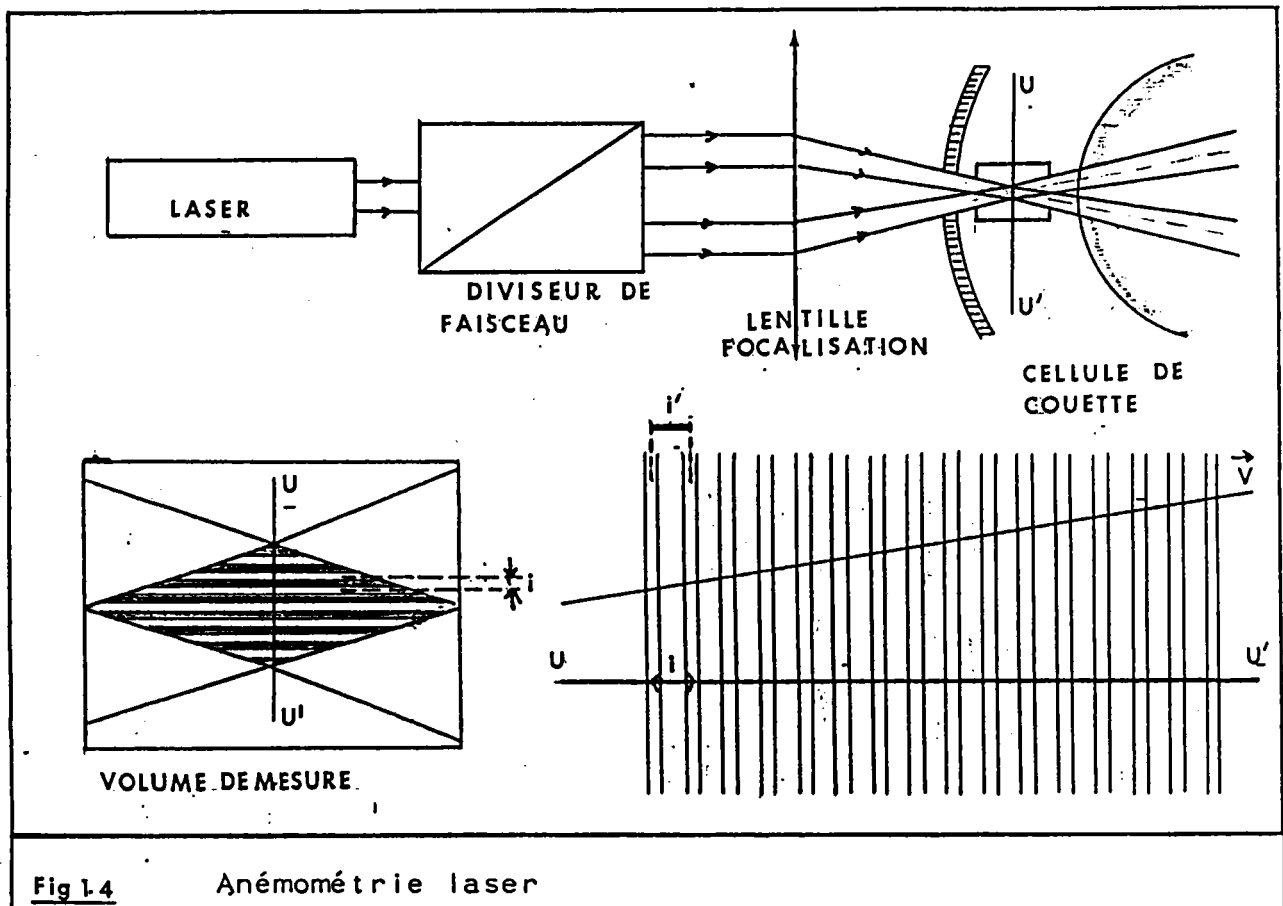


Fig 1.4 Anémométrie laser

Appelons V la vitesse d'une particule dans le volume de mesure et T le temps mis pour parcourir la distance i' entre deux franges consécutives

$$|V| = \frac{i'}{T} = \frac{i}{T \cos \alpha}$$

i : interfrange du système

α est l'angle entre la direction du vecteur $\vec{V}$ et celle de l'axe uu'

La projection v_0 de $\vec{V}$ sur l'axe uu' a pour module

$$|\vec{v}_0| = \frac{|\vec{V}|}{\cos \alpha} = \frac{i}{T} = iV$$

La lumière diffusée est modulée à la fréquence γ et un analyseur adéquat permet de mesurer γ donc la composante v_0 de la vitesse .

Dans le cas d'écoulement bi ou tridimensionnel, la méthode peut être appliquée à la détermination des trois composantes de la vitesse .

- Mesures de couple .

Une mesure globale du couple auquel est soumis le cylindre extérieur permet de déterminer les vitesses angulaires critiques d'apparition du premier régime de Taylor et du second écoulement à tourbillons ondulants .

Le moment des forces agissant sur le cylindre extérieur est une fonction de la viscosité dynamique du liquide qui dépend elle-même de la structure du champ hydrodynamique .

Un dispositif à torsion solidaire du cylindre extérieur permet de mesurer le couple auquel est soumis ce dernier .

Dans un repère (couple, Ω_1) le lieu des points expérimentaux est une ligne brisée dont les ruptures de pente correspondent à l'apparition des différents régimes .

Cette technique utilisée par J.A. COLE [45] est à rapprocher de celle de la biréfringence d'écoulement dont les variations en fonction de Ω_1 présentent un comportement similaire à la première transition .

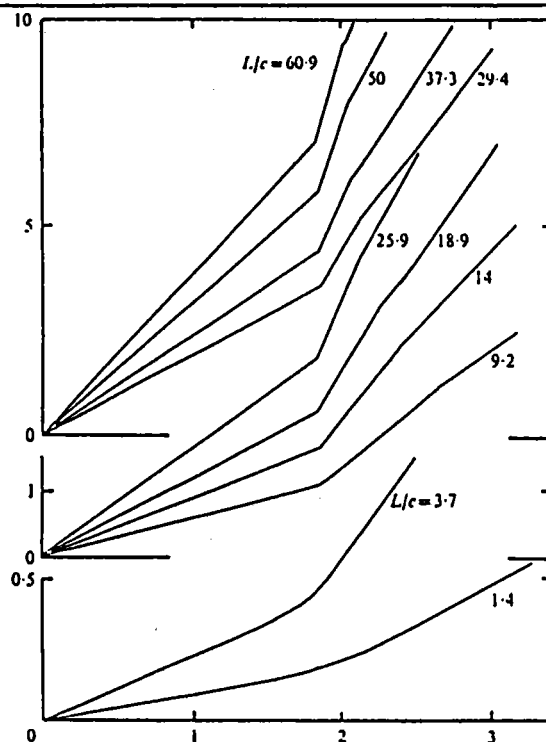


Fig 1,5 Mesure de couple

1.2.4. Théories classiques de la stabilité des écoulements .

Ces théories essaient de prévoir la réaction de l'écoulement à une petite perturbation de la vitesse d'écoulement ou de la pression au sein du fluide . Elles s'attachent à résoudre l'équation de Navier-Stokes et l'équation de continuité en s'imposant les conditions aux limites de l'écoulement ainsi que la forme des solutions .

Le premier critère de stabilité concernant l'écoulement d'un fluide parfait a été énoncé par Lord Rayleigh en 1916 [3] . Il revêt une forme particulièrement simple mais sa portée est limitée aux fluides non visqueux .

L'écoulement est caractérisé par une vitesse angulaire Ω de la forme

$$\Omega(r) = A + B / r^2$$

Pour qu'il soit stable, il suffit que les cylindres extérieurs et intérieurs tournent dans le même sens et que Ω_2 , vitesse angulaire du cylindre extérieur, satisfasse à :

$$\Omega_2 > \left[\frac{R_2}{R_1} \right]^2 \Omega_1$$

En ce qui concerne les fluides réels, visqueux, Serrin [50] a montré que lorsque

$$\frac{161}{\nu} = \frac{R_1^2 R_2^2}{\nu} \frac{(\Omega_2 - \Omega_1)}{(b^2 - a^2)} < \frac{\pi^2}{(\ln R_2 / R_1)^2}$$

où R_1 , Ω_1 et R_2 , Ω_2 sont respectivement le rayon et la vitesse angulaire du cylindre intérieur et extérieur, alors l'écoulement est stable vis-à-vis des perturbations axisymétriques .

a. Théories linéaires .

La résolution des équations s'effectue en supposant qu'à l'écoulement laminaire moyen caractérisé par la seule composante tangentielle V_θ de la vitesse, se superpose une petite perturbation (u_r, u_θ, u_z) à symétrie axiale pour la première transition, axiale et azimutale à l'apparition des tourbillons ondulants .[figure 1.6]

L'équation de Navier-Stokes est linéarisée en négligeant les produits et les puissances supérieures à 1 des trois composantes de la perturbation .

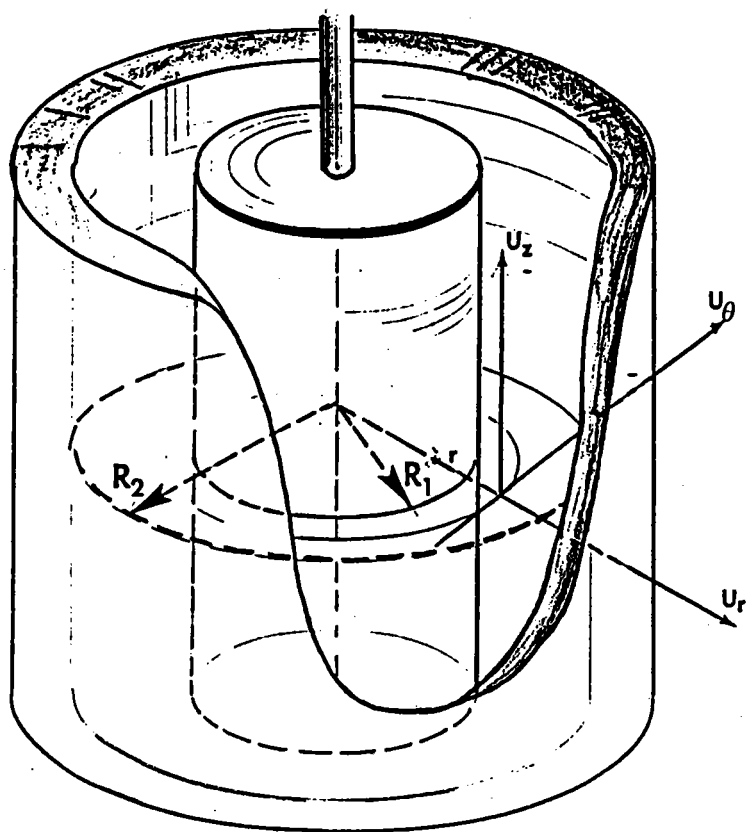


Fig 1.6 Composantes de la perturbation

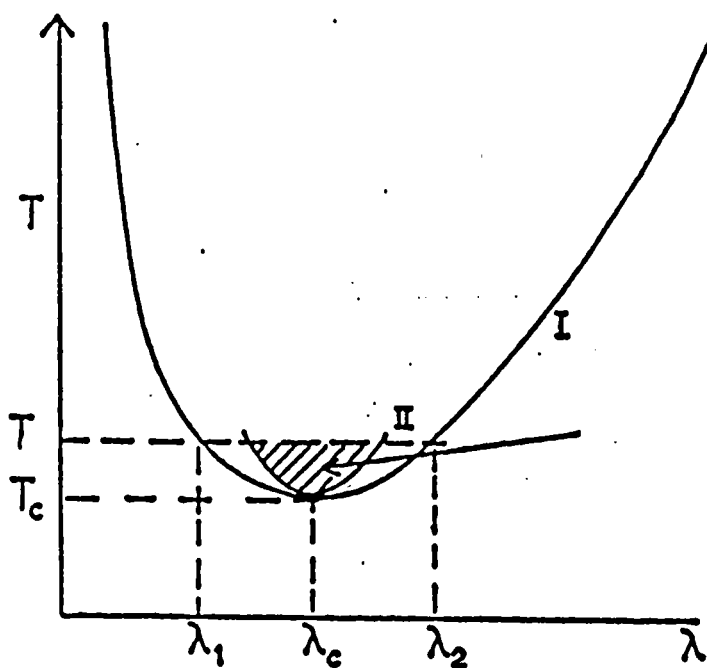


Fig 1.7 Courbes de stabilité de l'écoulement

Les composantes de la perturbation revêtent les formes suivantes:

1ère transition

2nde transition

Ecoulement à symétrie axiale

Ecoulement à symétrie axiale

$$u_r = u(r) \cos kz \cdot \exp(\sigma t)$$

$$u_r = u'(r) \exp[j(\omega t + m\theta + kz)]$$

$$u_\theta = v(r) \cos kz \cdot \exp(\sigma t)$$

$$u_\theta = v'(r) \exp[j(\omega t + m\theta + kz)]$$

$$u_z = w(r) \sin kz \cdot \exp(\sigma t)$$

$$u_z = w'(r) \exp[j(\omega t + m\theta + kz)]$$

L'équation de Navier-Stokes est linéarisée en négligeant les produits et les puissances supérieures à 1, des trois composantes de la perturbation .

L'application, des conditions aux limites à l'équation de Navier-Stokes et à l'équation de continuité conduit à un problème aux valeurs propres de la forme

$$F(a, T, \sigma) = 0 \quad \text{pour la 1ère transition} \quad (1)$$

$$F(a, T, m, \omega) = 0 \quad \text{pour la 2nde transition} \quad (2)$$

$a = kd$ avec k , nombre d'onde axial

T : nombre de Taylor

σ : coefficient d'amplification ou d'amortissement

m : nombre d'onde azimuthal

ω : pulsation

L'équation (1) partage le plan (T, a) en deux régions correspondant aux domaines de stabilité et d'instabilité des écoulements . La frontière entre les deux domaines est le lieu des points de stabilité marginale pour lesquels le facteur de croissance de la perturbation est nul . [figure 1.7]

L'application des conditions aux limites conduit à un déterminant 6×6 dont la résolution lui permet d'énoncer un critère de stabilité marginale en parfait accord avec celui de Taylor

$$P \frac{(1 - \mu)}{(1 + \mu)} = 0.0569$$

Son étude théorique est généralisée au cas où $\sigma = 0$ (réel ou complexe) et il montre que pour σ réel mais petit, l'écoulement devient instable ou stable suivant que la vitesse critique est accrue ou diminuée .

Dans le cas de σ complexe des solutions correspondant à des vibrations atténuées sont possibles lorsque l'écoulement est stable. Une approche différente du problème de la stabilité de l'écoulement de Taylor est celle de Di Prima [53] qui substitue au problème différentiel une méthode variationnelle .

Les composantes u et v de la perturbation sont développées sur la base des fonctions orthogonales ($\cos[(2n-1)\pi x]$) .

L'application des conditions aux limites conduit à un système de deux équations que l'on résoud par la méthode des multiplicateurs de Lagrange . La précision des valeurs du Taylor critique T_c dépend du nombre de termes utilisés dans les développements de u et v .

Les théories précédentes ne concernaient que la stabilité de l'écoulement à symétrie axiale . Des méthodes mi-analytiques et mi-numériques, développées dans le cadre de l'approximation linéaire, ont tenté de prévoir la stabilité et le nombre de Taylor critique T_{c2} du second écoulement .(seconde transition)

Dans une étude simplifiée, P.H. Roberts [54] ramène le problème de la détermination de T_{c2} et du nombre d'onde axiale, à la recherche de la condition de nullité d'un déterminant 3×3 dont les éléments (u_1, v_1) sont les composantes de trois solutions indépendantes de l'équation de Navier-Stokes .

En ce qui concerne l'équation (2), pour chaque valeur de m , se rajoute un paramètre supplémentaire qui est la pulsation ω de l'onde .

Ce fut Taylor qui, le premier, apporta une solution théorique au problème de la stabilité de l'écoulement confiné entre deux cylindres .

Il utilise un développement de la perturbation à l'aide des fonctions de Bessel-Fourier pour établir des critères de stabilité des écoulements .

Ainsi, lorsque les deux cylindres tournent dans le même sens avec des vitesses voisines et dans le cas de l'entrefer petit, l'écoulement cesse d'être stable lorsque Ω_1 dépasse la valeur critique, solution de :

$$P \frac{(1 - \mu)}{(1 + \mu)} = \frac{\pi^4 \nu^2 (R_1 + R_2) (1 - \mu)}{2\Omega_1^2 d^3 R_1 (1 - R_2^2 \mu / R_1) (1 - \mu) R_1^2 (1 + \mu)} = 0.057$$

avec $\mu = \Omega_2 / \Omega_1$

Une méthode identique a été utilisée par Chandrasekar [51], mais en employant un développement de $v(r)$ sur la base des fonctions circulaires . Ses conclusions confirment les prédictions de Taylor .

Les équations du mouvement peuvent être réduites à une équation différentielle du sixième ordre dont les coefficients dépendent de la géométrie du problème .

Cette méthode fut été utilisée par Meksyn [52] qui employa un développement asymptotique de la composante tangentielle de la perturbation

$$v(r) = \exp[\xi(r)]$$

$\xi(r)$ dépend également d'un paramètre supposé grand .

Moyennant ces hypothèses, il en déduit une forme simple des six solutions de l'équation différentielle .

Les (u_1, v_1) sont déterminés par intégration numérique . La méthode est appliquée à la première et à la seconde transition ; le fait remarquable prévu est que la vitesse angulaire azimutale est voisine de 0,5 et varie peu avec (R_1/R_2) et le nombre d'onde azimutale m . A peu près simultanément Krueger et al. [55] utilisent pour résoudre le système d'équations différentielles la méthode d'intégration numérique de Runge - Kutta .

Elle est appliquée à un grand nombre de géométries différentes et est étendue au cas de l'entrefer large .

Le point capital en est que, contrairement à ce qui est généralement supposé, T_{c1} ne correspond pas forcément à l'apparition d'une perturbation axisymétrique . Ainsi, pour un rapport $\mu < - 0,78$ et pour d/R_1 suffisamment petit, l'écoulement axisymétrique n'existe pas .

Ce résultat a été confirmé expérimentalement par Snyder et Co. [56] .

D'une manière générale, les résultats montrent que les limites entre l'écoulement axisymétrique et non axisymétrique ($T_{c1}/T_{c2} = 1$) sont très proches dans le cas de l'entrefer petit .

b. Théories non linéaires .

Les théories linéaires prévoient essentiellement une croissance exponentielle de la perturbation en fonction du temps .

Cependant, toutes les expériences montrent que l'amplification de la perturbation n'est pas continue mais atteint plutôt une amplitude d'équilibre finie .

Ce fait est masqué par la linéarisation des équations et Taylor [4] lui-même suggère que l'effet des termes non linéaires est d'empêcher une croissance infinie des tourbillons .

D'une manière générale, on suppose que la perturbation est décomposable en série de Fourier par rapport à la coordonnée z .

Les coefficients du développement s'expriment eux-mêmes sous forme d'un produit d'une fonction de la seule variable z par un coefficient d'amplitude $A(t)$ satisfaisant à :

$$\frac{1}{A} \frac{dA(t)}{dt} = \sum_{m=0}^{\infty} a_m A_m$$

Divers degrés d'approximation dans l'expression de A ont été adoptés .

L'idée de base de J.T. Stuart [57], qui fut l'initiateur des études non linéaires, est que l'interaction non-linéaire dominante a lieu entre l'écoulement moyen V et la première harmonique de la perturbation, similaire en forme à celle de la théorie linéaire mais multipliée par un facteur d'amplitude A .

Il montre qu'à l'équilibre :

$$A_c = \frac{cste}{Re} \left(1 - \frac{T_c}{T}\right)^{1/2} \quad cste = 5.425.10^4$$

Sa théorie prévoit le comportement de l'amplitude d'équilibre A_c , mais suppose que la longueur d'onde axiale ne varie pas .

De nombreuses études ultérieures vont s'attacher à améliorer la valeur de la constante .

D'une manière analogue Davey [58] suppose que la première harmonique du développement des composantes $u(r,t)$ et $v(r,t)$ de la perturbation s'écrit :

$$u_1(r,t) = A(t)u_1(r)$$

$$v_1(r,t) = A(t)v_1(r)$$

$u_1(r), v_1(r)$ sont les solutions du système linéaire, et l'amplitude $A(t)$ satisfait à l'équation

$$\frac{dA}{dt} = \sigma A + a_1 A^3$$

Les résultats sont applicables à différentes géométries de la cellule et, dans le cas de l'entrefer petit et lorsque le cylindre extérieur est fixé, on montre que

$$A_e = (0.3257)^{1/2} (1 - T_c/T)^{1/2}$$

L'étude théorique de la stabilité de l'écoulement de Taylor au delà du T_{c1} est ardue et de ce fait a reçu moins d'attention.

Cependant Eagles [59], en introduisant les termes du cinquième ordre dans le développement de l'amplitude A , calcule les nombres de Taylor critiques correspondant à l'apparition des différents modes azimutaux ($m = 1, 2, 3 \dots$). Les résultats sont en accord avec la théorie développée par Davey et Al. [60] qui considère l'interaction d'une perturbation doublement périodique en θ et z avec l'écoulement de Taylor.

Pour rendre compte des résultats expérimentaux qui montrent que la frontière entre deux cellules de Taylor est parfois ondulante et non pas plane, Davey introduit un déphasage en z entre la perturbation et l'écoulement de Taylor.

Les calculs, conduits dans l'approximation de l'entrefer petit, montrent alors que le second nombre de Taylor T_{c2} est supérieur à T_{c1} d'environ 8 pour cent.

Ce fait expérimental n'est pas confirmé par tous les auteurs.

A l'apparition des ondes azimutales, la théorie prévoit également une nette préférence de l'écoulement pour le mode correspondant à $m = 1$.

Les calculs théoriques de Kogelman et Di Prima [61] ont montré que dans le domaine instable, situé au-dessus de la courbe de stabilité marginale, existe un sous-domaine (fig.1.7) correspondant à des écoulements stables lorsque la longueur d'onde axiale satisfait aux critères

$$\lambda - \lambda_c < \frac{1}{\sqrt{3}} (\lambda_1 - \lambda_c) \text{ avec } \lambda_1 = \lambda_1 \text{ ou } \lambda_2$$

L'indétermination quant à la valeur exacte de la longueur d'onde subsiste malgré tout .

Parmi les conceptions plus modernes de la théorie de la stabilité, mentionnons encore les applications de la théorie de bifurcations des solutions en géométrie finie (Benjamin [62]) ou dans des systèmes infinis (Iooss [63], Kirchgäsner [64], Guiraud [65]).

Elles proposent une équation d'évolution de l'amplitude de la perturbation, et prédisent les divers écoulements que l'on peut atteindre sous diverses conditions.

En résumé, la théorie linéaire est suffisante et satisfaisante pour étudier la stabilité du régime laminaire vis-à-vis de la perturbation axisymétrique . Elle conduit à une courbe de stabilité marginale dont le minimum permet de déterminer la vitesse angulaire maximale que peut supporter l'écoulement laminaire ainsi que la longueur d'onde du nouveau régime qui s'établit à la transition .

En ce qui concerne le calcul de la structure de l'écoulement de Taylor (longueur d'onde axiale, croissance des tourbillons), la prise en compte des termes non linéaires des équations est nécessaire . Il en sera de même pour l'étude de la stabilité de l'écoulement de Taylor vis-à-vis des perturbations non axisymétriques (perturbations ondulantes) . Malgré la complexité des systèmes, les prédictions théoriques concernant T_{c2} sont bien souvent en accord avec l'expérience .

CHAPITRE 2 .

TECHNIQUE EXPERIMENTALE

2.1. Description de l'appareillage de mesure .

Nous avons construit un ellipsomètre classique performant permettant d'appliquer la méthode de Sénarmont à la détermination de l'angle d'extinction χ et de la biréfringence Δn de nos suspensions.

2.1.1.L'ellipsomètre . -----

La figure (2.1) présente le montage de principe de l'ellipsomètre:

- Source de lumière S .

Un laser helium néon non polarisé et à faible divergence constitue la source de lumière . Un prisme à réflexion totale renvoie le faisceau dans la direction verticale .

- Polariseurs P et A .

Le polariseur P et l'analyseur A sont constitués par un mince film dichroïque homogène protégé par deux disques de verre biréfringents.

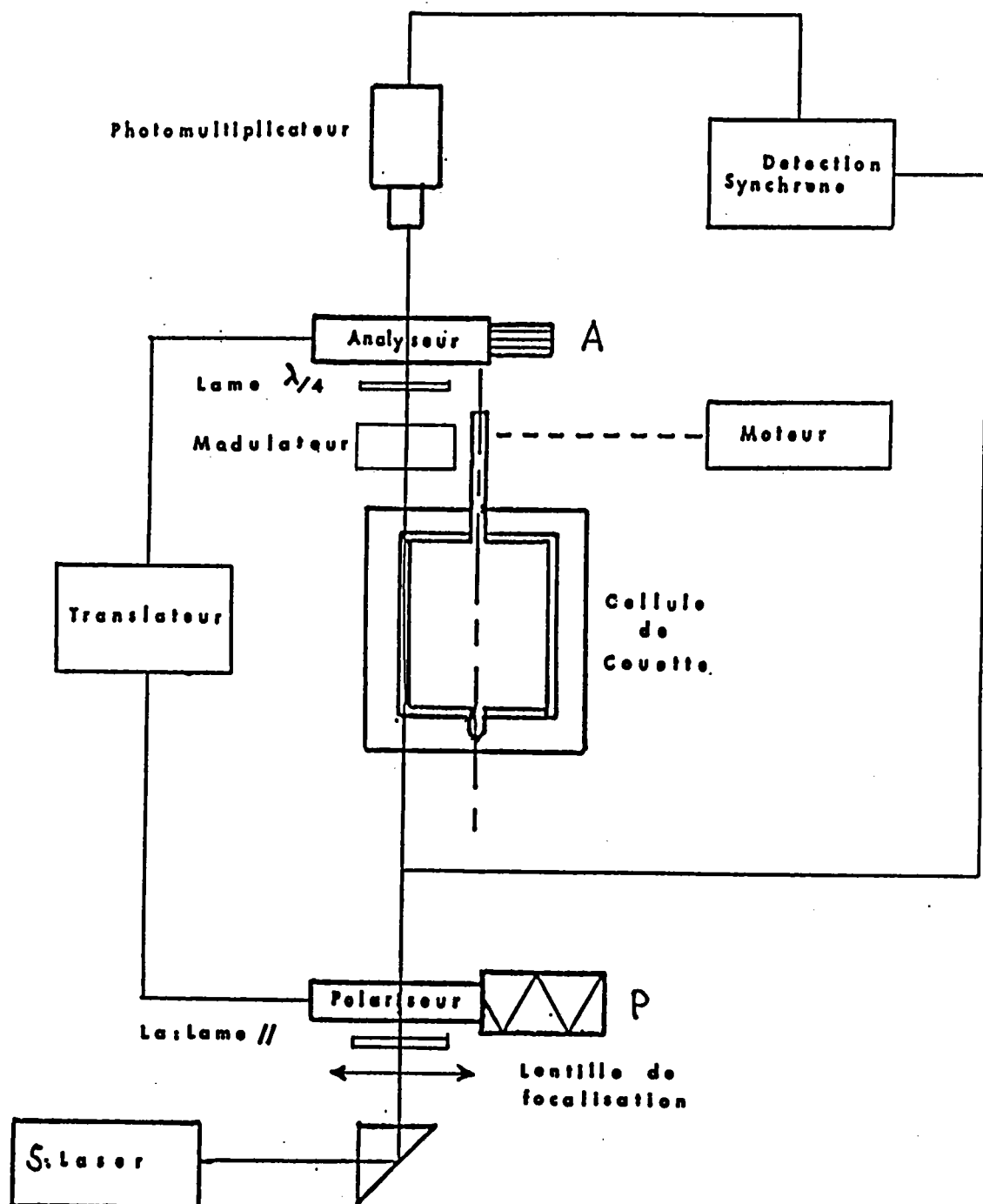


Fig 2.1

ELLIPSOMETRE

Chaque ensemble est monté sur un support à trois points permettant de rendre les dioptries perpendiculaires au faisceau par autocollimation .

Chaque support est lui-même porté par une table mobile autour d'un axe vertical et équipée d'un codeur optique permettant un affichage digital des rotations effectuées .

De plus la table supportant le polariseur P est pilotée par un moteur pas à pas commandé par les impulsions issues du codeur optique de l'analyseur . Le couplage polariseur-analyseur nécessaire à la recherche de la position des lignes neutres est ainsi réalisé . Une vérification qualitative visuelle a montré que, tant que l'accélération du mouvement de la table portant A reste faible, le couplage est maintenu : c'est-à-dire que l'extinction est conservée. Enfin, l'incrément de rotation des tables est de 0.01°

- Focalisation du faisceau .

Une tête de goniomètre G supporte une lentille convergente L qui focalise le faisceau à environ mi-hauteur dans l'entrefer de la cellule de Couette C .

- lame quart-d'onde .

Une lame $\lambda/4$ pour la radiation du laser He-Ne est supportée par une table identique à celles décrites précédemment . Elle est introduite dans le montage lors de la mesure Δn .

- Modulateur de lumière .

Il est constitué d'une lame à faces parallèles faiblement biréfringente et mobile autour d'un axe vertical .

Il est solidaire de l'équipage supportant l'analyseur par un accouplement mécanique .

Une description plus détaillée en sera donnée au paragraphe suivant.

- Détection du signal .

Un photomultiplicateur Ph recueille la lumière transmise par le système et l'analyse est réalisée par une détection synchrone dont la référence est fournie par le signal issu d'une photodiode occultée périodiquement par l'axe supportant la lame biréfringente du modulateur .

- lame La .

Une lame à faces parallèles La permet de déplacer le faisceau parallèlement à lui-même, afin de déterminer χ et Δn aux différents points de l'entrefer .

2.1.2. Le modulateur de lumière .

L'appareil conçu et réalisé par Monsieur le Professeur J. LERAY [66] a été utilisé dans nos expériences .

Le milieu biréfringent tournant est une lame mince de mica d'angle de phase voisin de 10° ; elle est placée entre deux couvre-objets collés au baume du Canada .

L'ensemble est placé sur le rotor à axe creux porté par un palier à air comprimé .

Le stator est alimenté sous quelques volts par une tension de fréquence 50 Hz; la vitesse de rotation est alors de 12.5 trs/s .

L'axe du rotor comporte également deux méplats symétriques par rapport à l'axe de rotation et qui occultent périodiquement une photodiode dont le signal à 25 Hz sert de référence à la détection synchrone .

Le support du modulateur est couplé mécaniquement à l'ensemble polariseur-analyseur afin de conserver une valeur constante à la phase à l'origine des temps θ du mouvement de la lame .

Examinons à l'aide de l'exemple de la détermination photoélectrique de la position des lignes neutres, la nécessité de ce couplage .

Dans son principe, la méthode consiste à tourner l'ensemble polariseur-analyseur croisés jusqu'à obtention d'un signal nul sur le galvanomètre de la détection synchrone .

Le signal E modulé transmis par le montage et utile à la détermination de l'angle χ est de la forme :

$$E = \sin 2\alpha \sin \delta \sin \gamma \sin 2(\omega t + \theta) = E_0 \sin 2(\omega t + \theta)$$

θ : phase à l'origine des temps : c'est l'angle qui détermine la position de l'une des lignes neutres par rapport à la référence des azimuts au temps $t = 0$.

L'amplification du signal introduit une différence de phase supplémentaire et le signal devient :

$$E = E_0 \sin 2(\omega t + \theta + \varphi)$$

Enfin à la sortie du démodulateur, le signal continu est :

$$E_0 \cos(\theta + \varphi)$$

Un nul est observé si

$$(\theta + \varphi) = (2k + 1)\pi/2 \quad \text{ou} \quad E_0 = 0$$

Si le modulateur est solidaire du polariseur dont la direction de polarisation sert de référence, seule la seconde condition est conservée puisque θ est alors constant . Il ne subsiste alors plus d'ambiguïté sur la signification du signal nul observé .

(φ est ajusté de sorte que $\cos(\theta + \varphi) = 1$)

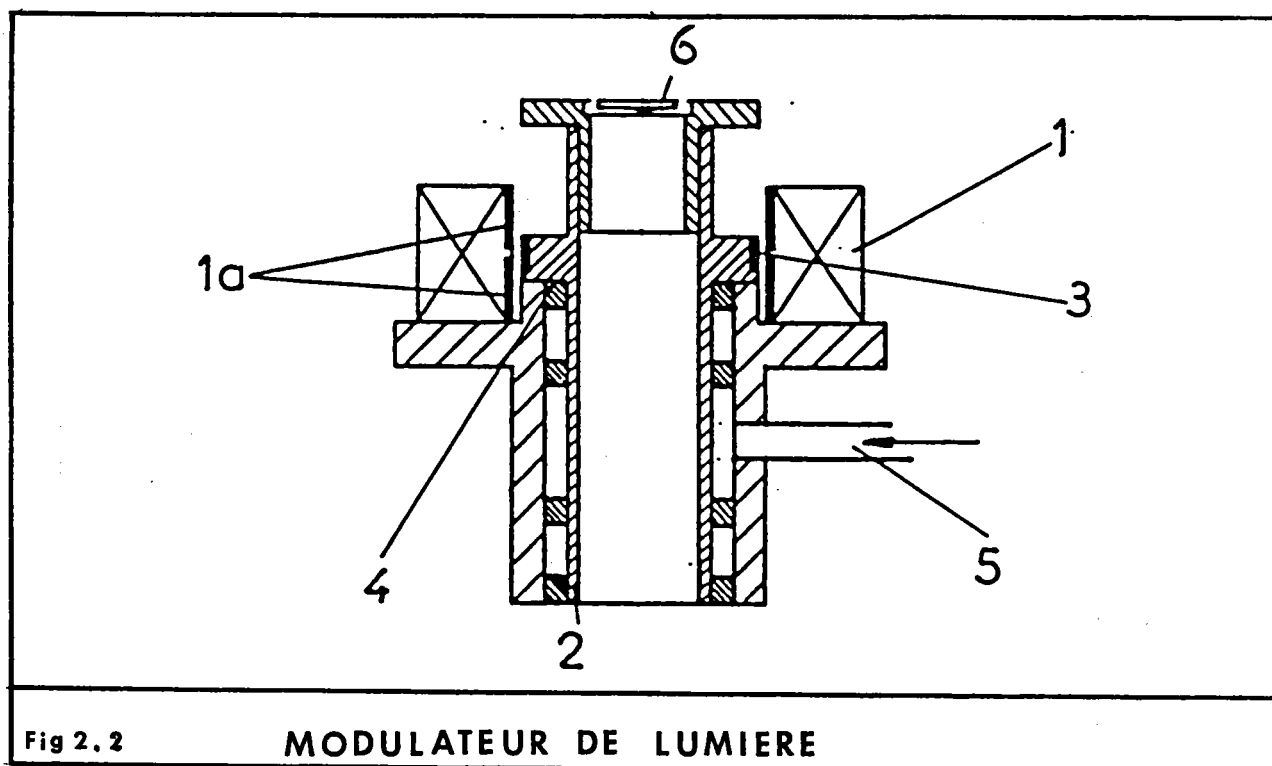
La lame de mica doit être suffisamment homogène de sorte que la différence de phase introduite par celle-ci ne dépende pas de la position du faisceau sur la lame .

Dans le cas contraire, une modulation parasite supplémentaire est introduite dans le signal E .

L'avantage de ce système sur d'autres types de modulateurs tels que ceux utilisant l'effet Faraday ou l'effet Pockels réside dans le fait qu'il n'introduit pas de biréfringence parasite dans le signal.

Enfin, de l'examen de l'expression de E , il apparaît qu'il suffirait d'augmenter γ pour augmenter l'amplitude du signal . En fait, le signal total transmis par le montage contient un terme constant proportionnel à $\sin\gamma$, qui tend donc à saturer le photomultiplicateur d'autant plus rapidement que $\sin\gamma$ est grand .

(Schéma, extrait de [67]).



1. Stator à champ tournant . 1.a). Rotor creux .
2. Rotor creux .
3. Bague d'acier .
4. Palier à air comprimé .
5. Arrivée d'air comprimé .
6. lame biréfringente .

2.1.3. La cellule de mesure .

De type classique, la cellule utilisée est représentée sur la (fig. 2.3) .

Toutes les pièces en contact avec les solutions sont, soit en acier inoxydable, soit en verre .

Une double enceinte extérieure en verre permet, à la fois de visualiser les différents types d'écoulement dans la cellule et d'assurer une thermostatisation des solutions .

Des cylindres intérieurs de différents diamètres peuvent être utilisés afin d'étudier la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor pour différentes valeurs de l'entrefer .

Les dimensions caractéristiques de la cellule sont les suivantes :

- diamètre extérieur : 50 mm
- diamètre intérieur : 46 , 47 ou 48 mm
- hauteur de la cellule : 70 mm

Les fenêtres inférieures et supérieures sont constituées d'une lame couvre-objet de microscope collée sur un support à trois points .

L'alignement de ces lames se fait par autocollimation .

Enfin, un moteur à courant continu asservi, entraîne les cylindres intérieurs par un jeu de courroie et de poulies crantées .

La coïncidence de l'axe de rotation du cylindre mobile et de l'axe de symétrie du stator est fondamentale lorsque l'on s'intéresse aux propriétés optiques du milieu en différents points de l'entrefer .

En effet B. JOULIER [68] a montré qu'un faible décalage entre l'axe du rotor et celui du cylindre extérieur fixe pouvait entraîner des variations considérables du gradient de vitesse sur la largeur de l'entrefer . De plus, au gradient de cisaillement se superpose un gradient élongationnel apportant une perturbation supplémentaire .

CELLULE DE MESURE

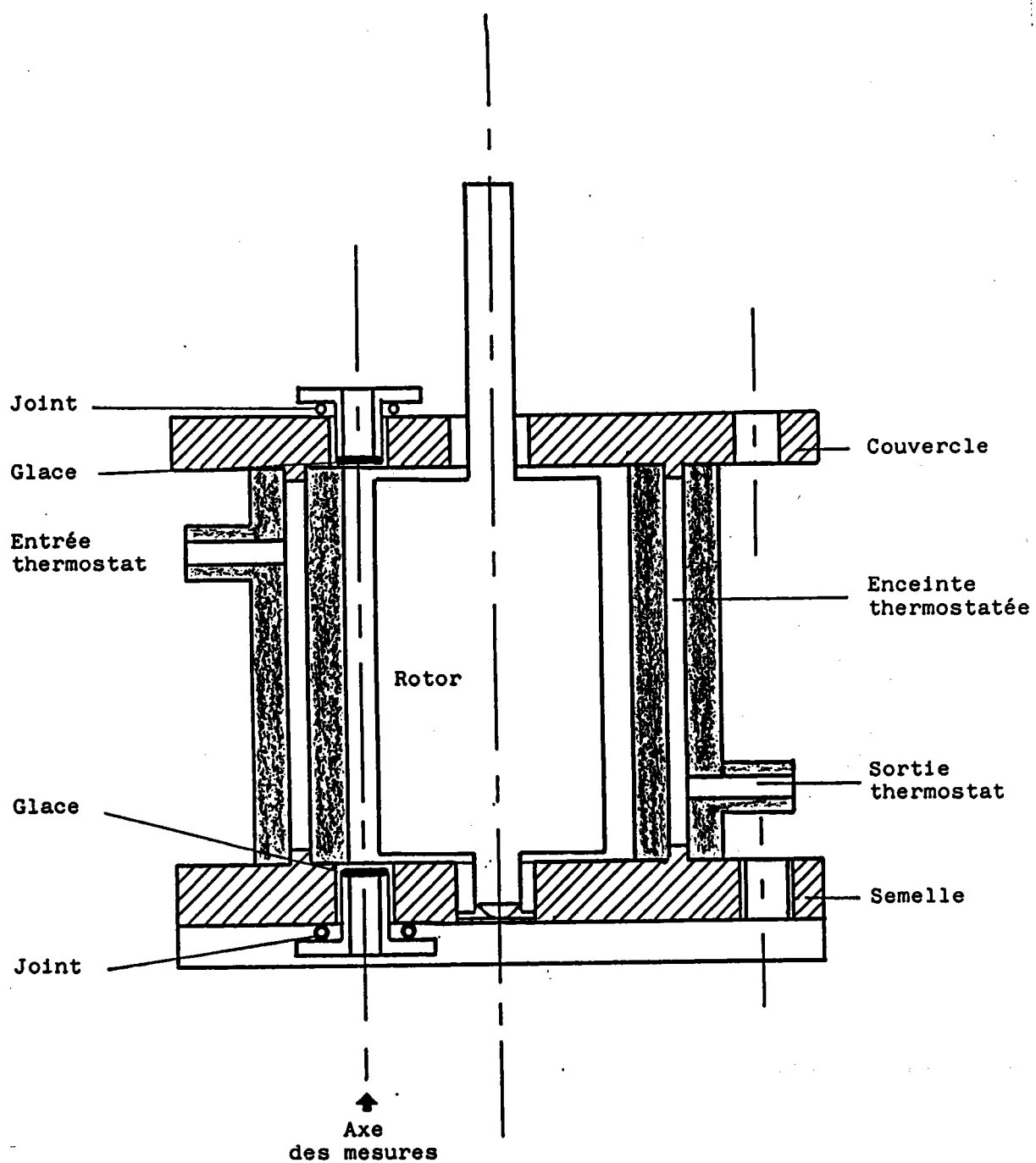


Fig.2.2

La variation relative du gradient θ dans l'entrefer s'écrit :

$$\frac{\Delta S}{S} = 6 \lambda \cos \theta$$

avec $\lambda = \varepsilon/d$, ε est le décalage des axes des cylindres .

Dans une cellule parfaite la diminution relative du gradient du rotor vers le stator est de l'ordre de d/R et pour les entrefers (d) couramment utilisé

$$\frac{d}{R} \ll 6\lambda$$

Il s'ensuit que les variations de χ observées ne peuvent être interprétées en invoquant seulement la courbure du champ des vitesses qui conduit à une diminution du gradient vers la partie fixe de la cellule (fig.2.4) .

Cette diminution conduit à une orientation moindre des particules dans la direction de l'écoulement donc à une augmentation de l'angle χ du rotor vers le stator . Or une série de mesures a montré l'effet totalement inverse . Nous avons donc construit une cellule excentrée dont l'entrefer au niveau de la fenêtre de visée peut être réglé de manière continue entre sa valeur minimale et maximale ; on mesure alors l'angle d'extinction d'une solution en écoulement en différents points de l'entrefer . La figure suivante (2.4) donne l'allure qualitative des courbes $\chi(x)$ pour une vitesse angulaire de 2 rad.s^{-1} .

On a porté les variations de χ en ordonnées pour différents points situés sur un rayon et pour différentes positions dans l'entrefer variable (fig.2.4) .

Conformément à la formule précédente, l'effet de la non-coïncidence des axes est nulle dans la direction $\theta = \pi/2$, on constate en effet qu'en passant de la position 2 à la position 3 le sens de variation de χ change .

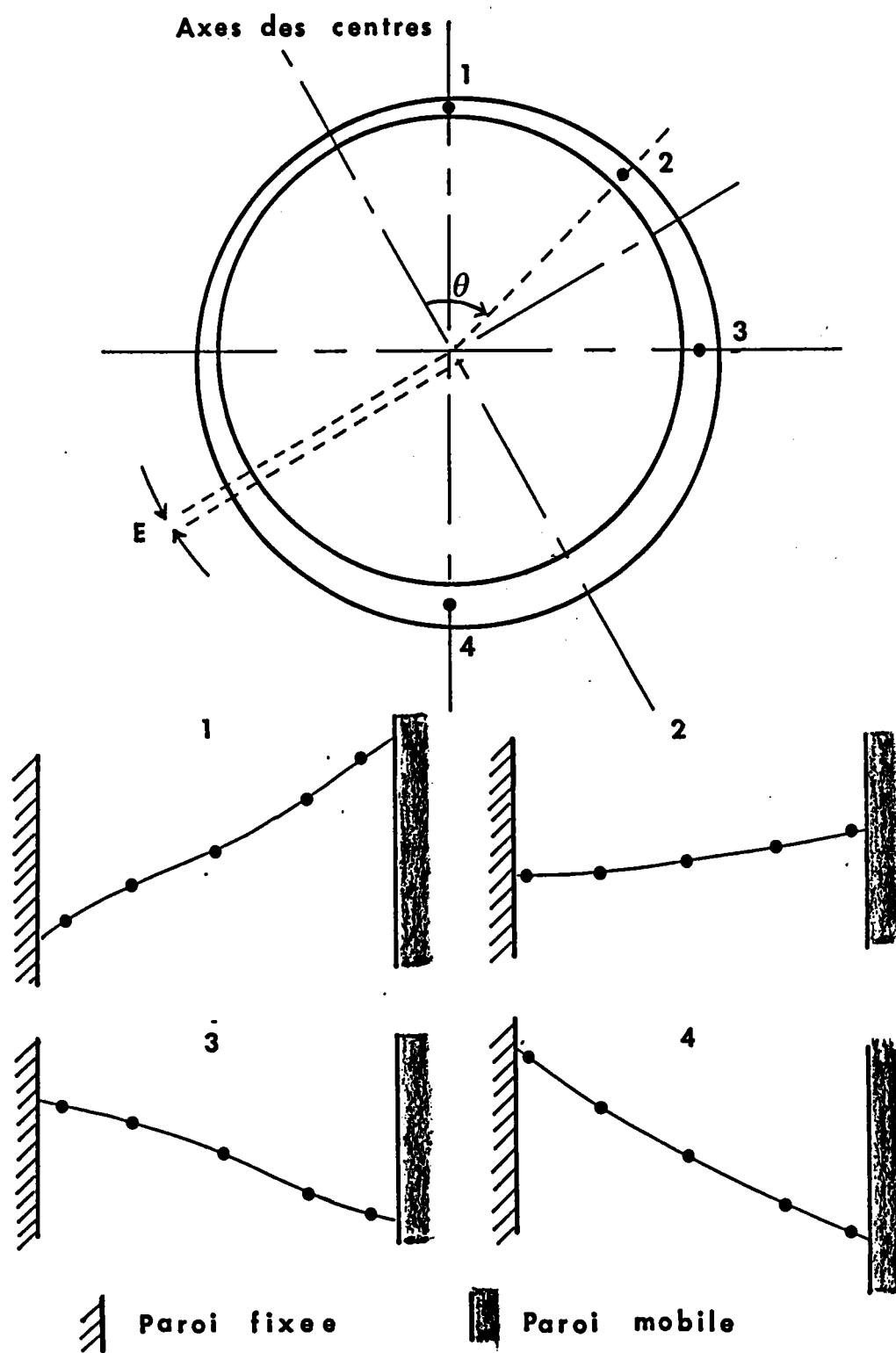


Fig. 2.4. : Variation de l'angle d'extinction et
et excentricité de la cellule

Afin de minimiser l'effet de l'excentricité, on s'efforcera de réaliser les mesures dans une direction perpendiculaire à celle de la droite supportant les centres du rotor et du stator . ($\theta = \pi/2$)

2.2. Biréfringence des solutions de particules solides .

Certaines solutions de particules solides présentent, lorsqu'elles sont soumises à un écoulement, des propriétés optiques identiques à celles des cristaux : un faisceau de lumière naturelle tombant sur un tel milieu est transformé, après réfraction, en deux faisceaux de lumière polarisée linéairement .

Ces directions de polarisation sont perpendiculaires entre elles et sont les bissectrices des projections des axes optiques sur le plan d'onde incident : ce sont les lignes neutres du milieu .

Pour une direction de propagation donnée, les deux vibrations linéaires présentent entre elle, après traversée du milieu, une certaine différence de phase δ que l'on relie à la biréfringence Δn par :

$$\Delta n = \frac{\delta}{2\pi e}$$

où e est l'épaisseur de la couche de liquide .

Eclairons, à présent en lumière polarisée linéairement, un liquide en écoulement placé entre polariseur et analyseur croisés; l'extinction sera conservée lorsque la direction de polarisation sera celle de l'une des lignes neutres du milieu .

On peut donc de cette manière, repérer la direction de l'une de ces lignes .

L'angle d'extinction χ est défini (fig. 2.5) comme l'angle entre la direction de l'écoulement et celle de l'une des lignes neutres (M_1) .

ANGLE D'EXTINCTION

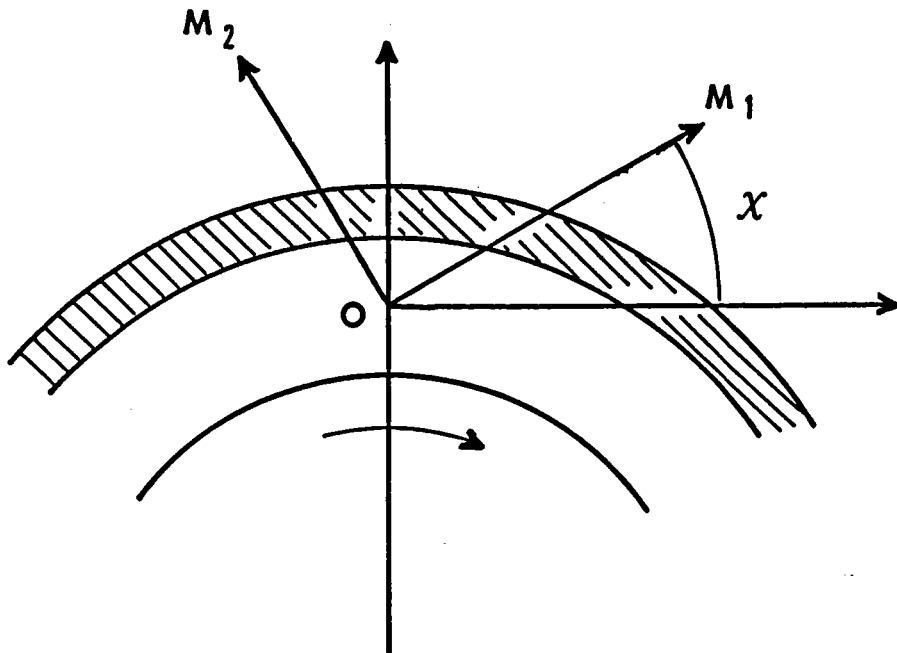


Fig 2.5

Angle d'extinction du milieu

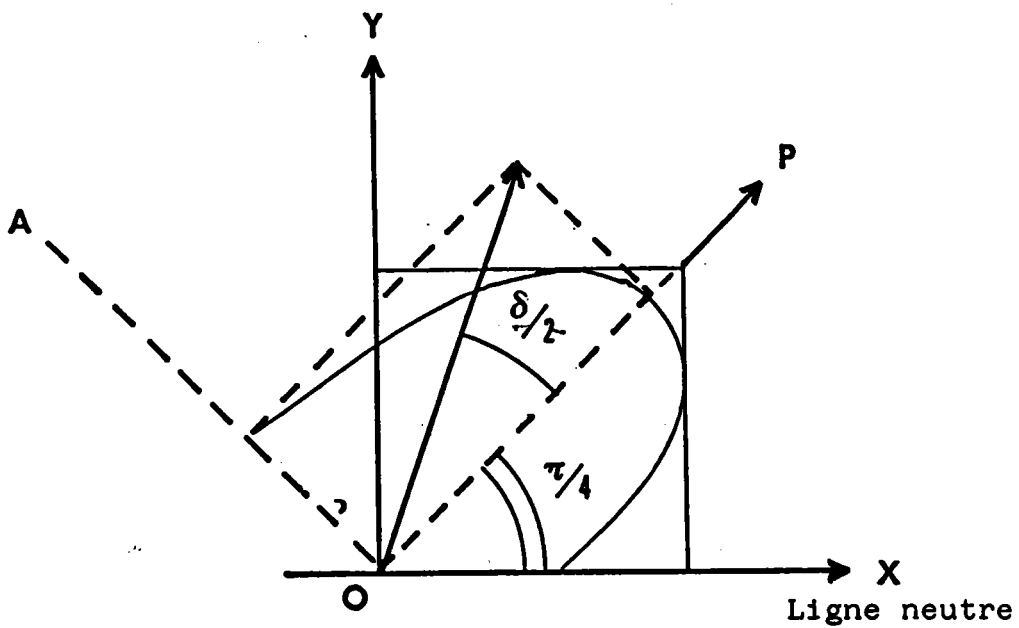


Fig 2.6

Principe de la méthode de Sernarmont

La différence de phase δ est mesurée par la méthode classique de Sénarmont (fig. 2.6) : la vibration incidente OP orientée à $\pi/4$ de la ligne neutre OX est transformée en une vibration elliptique d'axes OP,OA par le milieu . Une lame quart d'onde d'axes OP et OA en donne une vibration rectiligne orientée à $\delta/2$ de OP .

L'extinction est réalisée en tournant l'analyseur d'un angle φ égal à la demi différence de phase δ .

Nous avons substitué à la méthode d'extinction visuelle classique une méthode photoélectrique qui conduit à un signal proportionnel à la grandeur à mesurer au voisinage de l'extinction .

Le modulateur de lumière (M_0) est le milieu biréfringent tournant décrit précédemment .

L'azimut θ de l'une de ses lignes neutres est une fonction périodique du temps .

Pour calculer l'intensité lumineuse transmise par le système, nous utiliserons la méthode matricielle de Mueller [69] . Les matrices représentatives des différents éléments de l'ellipsomètre figurent en annexe A .

2.2.1.Détermination de l'angle d'extinction .

La disposition des divers éléments nécessaires à la détermination de l'angle χ est reportée sur la figure (2.7) .

La direction de polarisation de la lumière incidente sert d'origine aux azimuts .

Désignons par δ, γ les retards de phase introduits par le milieu biréfringent M et le modulateur de lumière M_0 ;

$\alpha, \beta, \pi/2 + \varphi$ représentent les azimuts du milieu, de la lame tournante et de l'analyseur .

Une lumière incidente polarisée linéairement dans la direction de référence, d'intensité égale à 1, est représentée par le vecteur colonne de Stokes :

$$J_0 = \{1, 1, 0, 0\} .$$

La lumière transmise par le système est décrite par le vecteur colonne J :

$$J = \{I, M, C, S\}$$

dont la première composante représente l'intensité relative transmise; M, C, S, nous renseignent sur l'état de polarisation de la lumière .

$$J = [A] [M_0] [M] J_0$$

où $[A]$, $[M_0]$, $[M]$ désignent respectivement les matrices représentatives de l'analyseur, du modulateur et du milieu biréfringent .

Effectuons le produit des matrices en négligeant les pertes par réflexion et absorption, l'intensité lumineuse relative transmise par le système s'écrit :

$$\begin{aligned} I = & 1 - \cos 2\varphi [(\cos^2 2\alpha + \sin^2 2\alpha \cos \delta)(\cos^2 2\beta + \sin^2 2\beta \cos \gamma) \\ & + \sin 2\alpha \cos 2\alpha (1 - \cos \delta) \sin 2\beta \cos 2\beta (1 - \cos \gamma) - \sin 2\alpha \sin \delta \sin 2\beta \sin \gamma] \\ & - \sin 2\varphi [(\cos^2 2\alpha + \sin^2 2\alpha \cos \delta) \sin 2\beta \cos 2\beta (1 - \cos \gamma) \\ & + \sin 2\alpha \cos 2\alpha (1 - \cos \delta) (\sin^2 2\beta + \cos \gamma \cos^2 2\beta) + \sin 2\beta \sin \delta \\ & \cos 2\beta \sin \gamma] \end{aligned}$$

Après réduction, on montre que I est la somme de trois termes :

$$\begin{aligned} & - \text{un terme constant : } I_0 = \\ & 1 - 1/4 [\cos \gamma + 1] [(1 + \cos \delta) \cos 2\varphi + (\cos \delta - 1) \cos 2(2\alpha - \varphi)] \end{aligned}$$

qui fournit un courant continu dans le P.M .

Sens de propagation de la lumière →

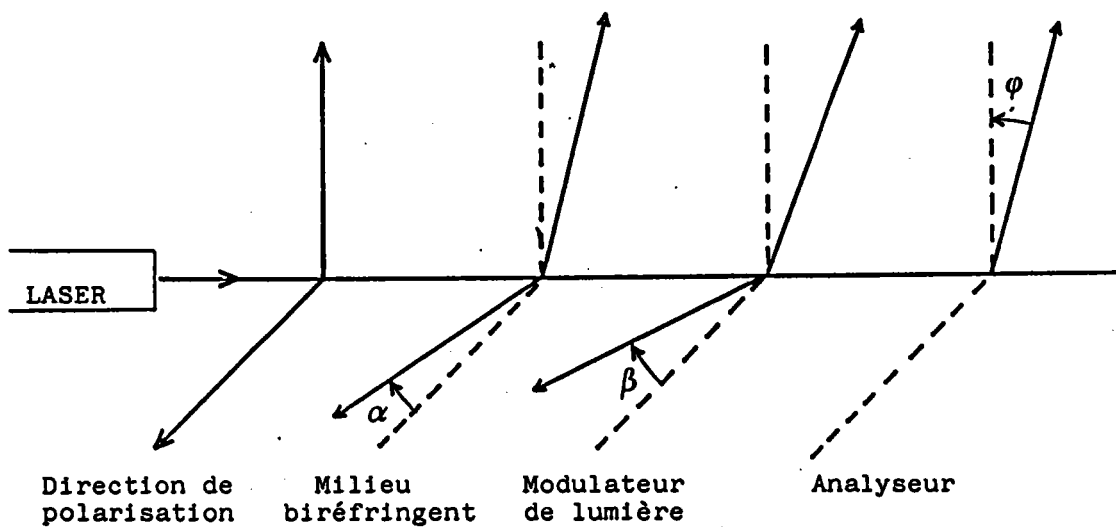


Fig 2.7

Repérage des lignes neutres du milieu

Sens de propagation de la lumière →

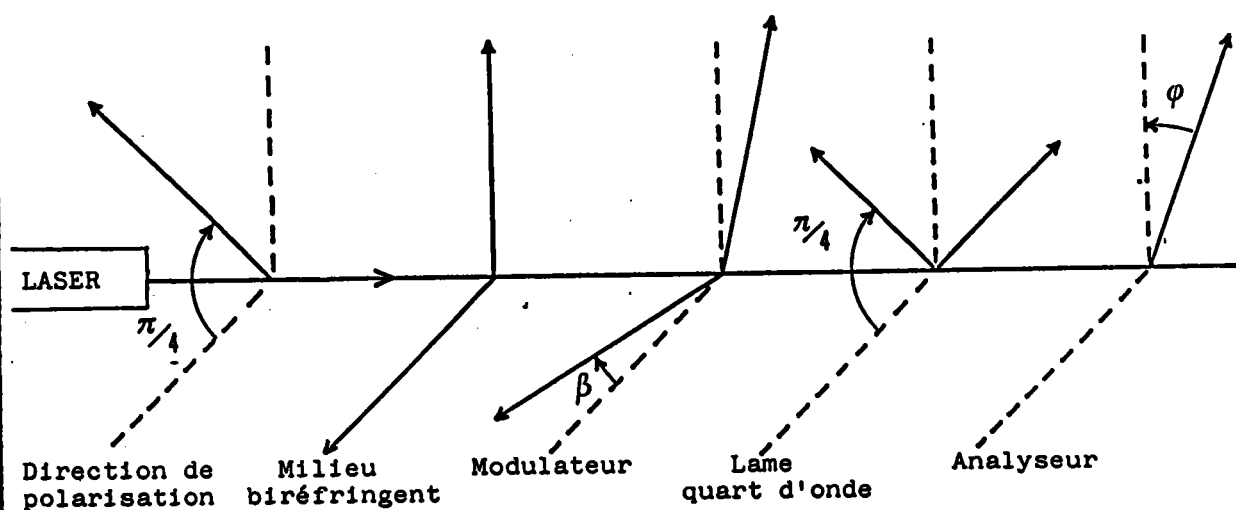


Fig 2.8

Mesure de la différence de phase

Ce terme doit être suffisamment petit afin de ne pas saturer le détecteur .

- un terme en $4\omega t$ rejeté par un filtre passe-bas monté en aval de la détection synchrone : $I_{4\omega}$

$$- \frac{1}{4}(1 - \cos\gamma)[(\cos\delta + 1)\cos^2(2\beta - \varphi) + (1 - \cos\gamma)\cos^2(2\alpha - 2\beta - \varphi)]$$

- un terme en $2\omega t$: $I_{2\omega} =$

$$\sin\gamma \sin\delta \sin 2\alpha \sin 2(\omega t - \varphi)$$

amplifié et isolé par la détection synchrone accordée sur la pulsation 2ω .

L'amplitude de ce terme dépend de l'azimut de l'une des lignes neutres du milieu biréfringent .

Pour les faibles valeurs de α , c'est-à-dire lorsque l'extinction est pratiquement réalisée :

$$\sin 2\alpha \simeq 2\alpha$$

et les déviations du galvanomètre des détecteurs sont alors proportionnelles à α .

La mesure consiste à annuler le terme $I_{2\omega}$: la direction de polarisation est confondue avec l'une des lignes neutres du milieu . On note également que, lorsque l'on adopte cette disposition du modulateur (après le milieu), l'angle φ de décroisement de l'analyseur intervient dans la phase du signal et n'a de ce fait aucune influence sur la détermination de la position des lignes neutres si ce n'est qu'il accroît la valeur du terme constant I_0 .

L'angle d'extinction χ est défini par rapport à la direction de l'écoulement (cf.fig.2.5) ; cependant, cette direction n'est pas connue, mais l'on sait que les lignes neutres correspondant aux deux sens de rotation du rotor intérieur sont symétriques par rapport à

la direction de l'écoulement; aussi trace-t-on les courbes de χ pour différentes vitesses de rotation et pour les deux sens de rotation; l'axe de symétrie de la figure est alors la référence recherchée et une simple translation d'axe permet de connaître les valeurs vraies de χ .

2.2.2. Mesure de la différence de phase δ .

La disposition des divers éléments est indiquée sur la figure (2.8) .

Une lame quart d'onde est introduite entre le modulateur et l'analyseur . Elle est alignée sur la direction de polarisation . Le vecteur de Stokes représentant la lumière transmise par l'ensemble, s'écrit :

$$J = [A] [Q] [M_0] [M] J_0$$

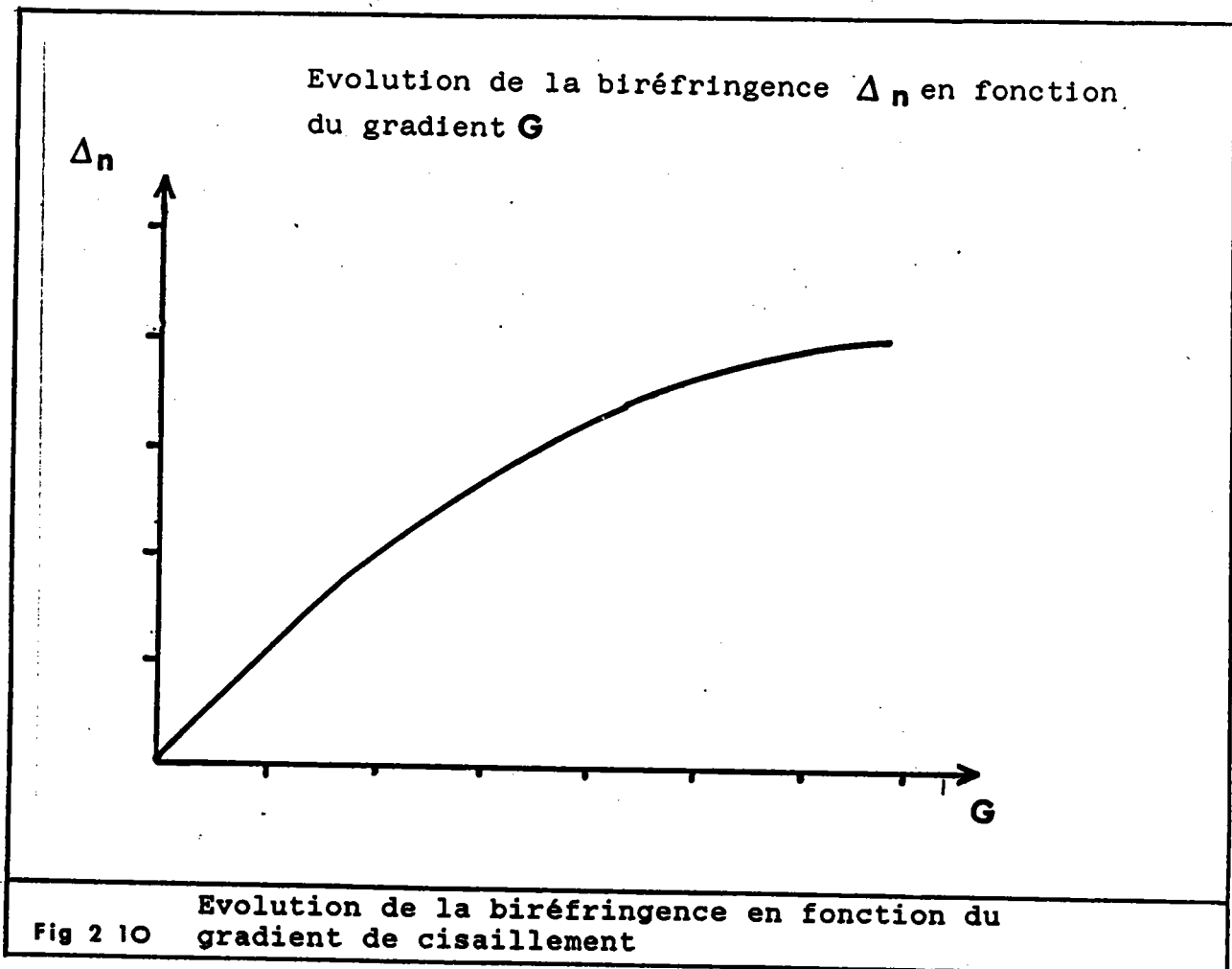
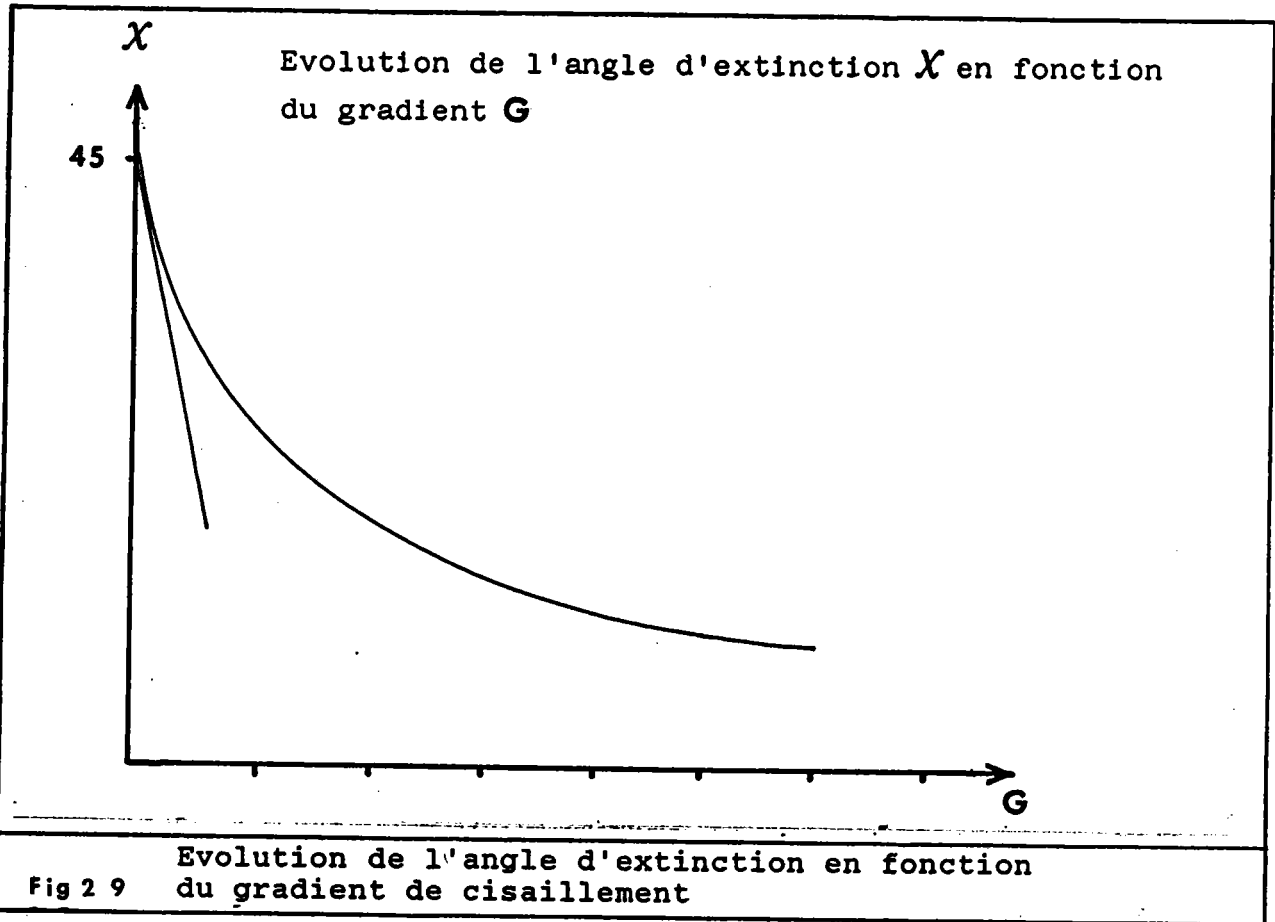
$[Q]$ désigne la matrice représentant la lame $\lambda/4$ (annexe A) .

En effectuant le produit des matrices, on obtient l'intensité transmise. Comme précédemment, elle est la somme de trois termes dont seule la composante en $2\omega t$ nous sera utile .

$$I = 1 + \sin 2\varphi \cos \gamma \sin \delta - \frac{1}{2} \cos 2\delta \cos \gamma (\cos \gamma + 1) - \frac{1}{2} \cos 2\varphi \cos \delta (\cos \gamma - 1) \cos 4 \omega t + \sin \gamma \sin (\delta - 2\varphi) \cos 2 \omega t$$

La méthode de mesure consiste à tourner l'analyseur de manière à annuler le terme en $2\omega t$; la différence de phase recherchée est alors égale au double de l'angle de rotation de l'analyseur .

L'allure typique des courbes représentant les variations de l'angle d'extinction χ et de la biréfringence Δn en fonction du gradient de vitesse dans l'entrefer est reportée sur les figures (2.9) et (2.10) .



Pour les faibles valeurs de G , l'angle χ tend vers 45° ; puis lorsque G croît, les particules s'orientent de plus en plus dans la direction de l'écoulement et l'angle décroît vers zéro .

Pour les solutions diluées de particules rigides, Peterlin et Stuart [70] ont donné le développement de χ au voisinage de $\sigma(G/D_r) = 0$.

$$\chi = \frac{\pi}{4} - \frac{\sigma}{12} \left[1 - \frac{\sigma^2}{108} \left(1 + \frac{24b^2}{35} \right) + \dots \right]$$

La pente à l'origine de la courbe $\chi(G)$ permet d'atteindre le coefficient de diffusion de rotation D_r de la particule .

Si l'on se donne un modèle de particule rigide, on peut déterminer l'expression théorique de D_r [71] et en déduire des informations sur les dimensions géométriques des particules .

La courbe de biréfringence, quant à elle, croît linéairement avec G pour les faibles valeurs du gradient, puis atteint un palier de saturation : l'orientation des particules est alors peu modifiée par une nouvelle augmentation du gradient .

En régime dilué et en l'absence de dichroïsme

$$\Delta n = \frac{2\pi c}{n_0} (g_1 - g_2) f(\sigma, b)$$

avec

$$f(\sigma, b) = \frac{\sigma b}{15} \left[1 - \frac{\sigma^2}{72} \left(1 + \frac{6b^2}{35} \right) + \dots \right]$$

Les valeurs tabulées du facteur d'orientation $f(\sigma, b)$ ont été données par Scheraga, Edsall et Gadd [72] puis par Cressely [19] .

La pente à l'origine de la courbe $\Delta n(G)$ permet d'atteindre la biréfringence intrinsèque de la particule

$$\Delta n_{int} = \lim_{\substack{c \rightarrow 0 \\ G \rightarrow 0}} \left| \frac{\Delta n}{c G n_s} \right|$$

avec n_s qui représente la viscosité dynamique du solvant.

2.3. Erreurs dans les mesures expérimentales .

Les glaces de fermeture de la cellule, les lames de protection des polariseurs constituent autant de milieux biréfringents parasites qui, quoique faibles, n'en perturbent pas moins les mesures. D'autre part, l'imperfection des composants de l'ellipsomètre (polariseurs, modulateur, lame quart d'onde) ainsi que leur positionnement incorrect influe également sur l'état de polarisation de la lumière transmise et sont autant de facteurs dont il faudrait tenir compte dans les résultats .

Il ressort des nombreuses publications concernant ces problèmes, que l'effet conjugué de tous les facteurs d'erreurs possibles est complexe et la majorité des auteurs s'attache à examiner l'influence d'un composant imparfait sur l'état de polarisation de la lumière .

Ainsi Hollingsworth et al. [73] [74] ont étudié l'influence du polychromatisme de la source, de l'inexactitude de la lame quart d'onde et du dichroïsme sur la mesure de la biréfringence .

De même M.P Kothiyal [75] [76] a montré que l'imperfection de l'analyseur n'influe pas, du moins au premier ordre, sur la mesure de l'ellipticité et de l'azimut de la vibration lorsque le compensateur utilisé est pratiquement parfait .

H. JANESCHITZ KRIEGL [77] traite d'une manière détaillée l'influence de la biréfringence des fenêtres de la cellule et propose une méthode de compensation par rotation de l'une des fenêtres .

Enfin H.G. JERRARD [78] étudie l'effet combiné du mauvais positionnement des polariseurs et de la lame quart d'onde, ainsi que l'effet d'une lame quart d'onde non exacte et de la biréfringence résiduelle dans les composants électro-optique du montage (modulateur de lumière, enveloppe du P.M) .

Il détermine une marge d'erreur pour la position des composants et montre que l'exactitude de la lame quart d'onde n'est pas cruciale .

Examinons à présent plus en détail l'effet des biréfringences résiduelles sur la détermination de la position des lignes neutres et sur la mesure de l'angle de phase du milieu et cherchons par quelle méthode on pourra s'affranchir de leurs effets .

2.3.1. Détermination de la position des lignes neutres .

Les biréfringences résiduelles (glaces de protection des polariseurs, fenêtres de la cellule, sont faibles ; dans ce cas l'ensemble est assimilable à un milieu biréfringent unique doué de pouvoir rotatoire [79] .

Cette dernière propriété, en général plus faible que la biréfringence, sera négligée dans les calculs .

D'autre part nous savons que les biréfringents faibles se composent vectoriellement [80] . Ces considérations permettent de montrer qu'une sorte de compensation des parasites est possible .

En effet choisissons un axe de référence OR à partir duquel on compte les azimuts des différents milieux

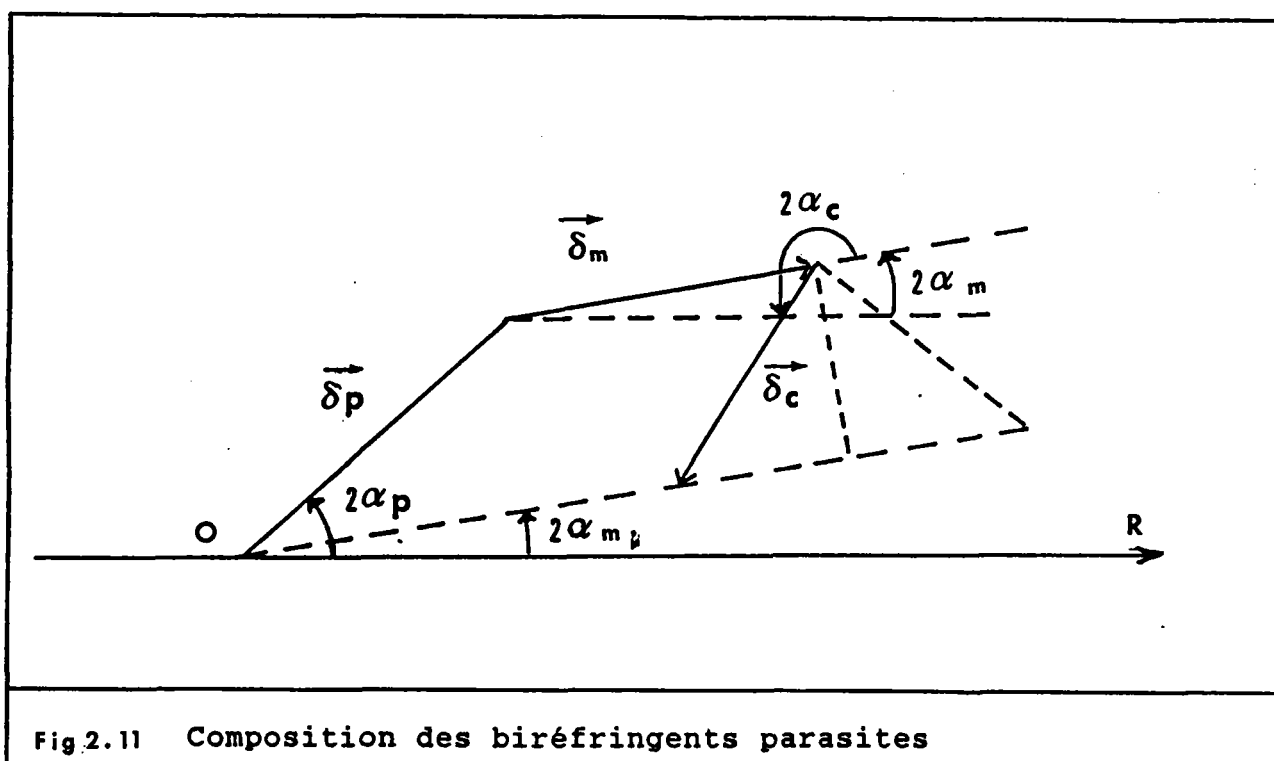


Fig 2.11 Composition des biréfringents parasites

Le milieu biréfringent d'angle de phase δ_m et d'azimut α_m sera représenté par un vecteur $\vec{\delta}_m$ de module δ_m et d'azimut $2\alpha_m$, l'ensemble des parasites par $\vec{\delta}_p$ ($\delta_p, 2\alpha_p$) et la lame compensatrice par $\vec{\delta}_c$ ($\delta_c, 2\alpha_c$) .

Lorsque δ_c est supérieur à $\delta_p \sin(2\alpha_p - 2\alpha_m)$ il est toujours possible d'orienter le compensateur de sorte que le milieu équivalent $\vec{\delta}_p + \vec{\delta}_m + \vec{\delta}_c$ ait même orientation 2α que le milieu .

L'orientation α_p des parasites n'étant pas connue, on procède par approximations successives en recherchant un signal nul et en ajustant la position de la lame compensatrice lorsque le liquide est au repos, puis en tournant l'ensemble couplé polariseur-analyseur lorsque le liquide est en mouvement .

En général quelques essais suffisent et l'une des lignes neutres est alors repérée sans erreur dans le cadre des approximations effectuées. Une manière de vérifier que la compensation effectuée est suffisante, consiste à tracer les courbes représentant les variations de χ en fonction de G pour les deux sens de rotation du cylindre mobile .

Les courbes obtenues doivent être symétriques par rapport à la direction de l'écoulement ; de ce fait, on observera une superposition parfaite des courbes lorsque la compensation des biréfringents parasites est satisfaisante .

2.3.2. Mesure de la différence de phase .

Du fait même de la présence de biréfringences résiduelles, la méthode directe de mesure ne permet pas d'atteindre la valeur exacte de l'angle de phase .

Rappelons que la méthode consiste à transformer par une lame quart d'onde la vibration elliptique issue du milieu en une vibration rectiligne que l'on cherchera à éteindre par une rotation convenable de l'analyseur .

Ceci suppose que la lame quart d'onde soit orientée à 45° des lignes neutres du milieu ; même en ne conservant dans le montage que les polariseurs et la lame $\lambda/4$ il sera impossible de l'orienter parfaitement du fait des biréfringences parasites des glaces de protection. Soit alors ε l'écart de la lame $\lambda/4$ par rapport à la position idéale, le signal recueilli par le P.M. à la sortie de l'ellipsomètre s'écrit dans la mesure où l'on ne tient compte que des biréfringences résiduelles des lames de protection :

$$\begin{aligned} & \cos 2\omega t [\sin \gamma [\sin \delta + \delta_p \cos 2\alpha_p \cos \delta] \cos 2(\varepsilon - \varphi) \cos 2\varepsilon \\ & \quad + \sin \gamma [\cos \delta + \delta_p \cos 2\alpha_p \sin \delta] \sin 2(\varepsilon - \varphi) \\ & \quad + \delta_f \sin \gamma [-\sin \delta - \delta_p \cos 2\alpha_p \cos \delta] \cos 2(\varphi - \delta_f) \sin 2\varepsilon] \\ & + \sin 2\omega t [\sin \gamma [\sin \delta + \delta_p \cos 2\alpha_p \cos \delta] \cos 2(\varepsilon - \varphi) \sin 2\varepsilon \\ & \quad + \delta_f \sin \gamma [\sin \delta + \delta_p \cos 2\alpha_p \cos \delta] \cos 2(\varphi - \alpha_f) \cos 2\varepsilon] \end{aligned}$$

où

δ_p, δ_f et α_p, α_f représentent respectivement l'angle de phase et l'azimut des biréfringents résiduels situés avant et après le milieu en écoulement d'angle de phase δ .

φ est l'angle dont on doit tourner l'analyseur afin de rétablir l'extinction.

On constate tout d'abord que le signal modulé contient deux termes en quadrature de phase d'importance inégale.

En effet, l'angle de décroisement de la lame quart d'onde est certainement petit puisque les parasites sont faibles, il en est de même pour δ_f et il s'ensuit que le coefficient de $\sin 2\omega t$ est petit : on négligera ce terme en première approximation.

Moyennant ces approximations, il vient :

$$\cos 2\omega t [\sin \gamma \sin(2\varepsilon - 2\varphi + \delta) + \delta_p \cos 2\alpha_p \sin \gamma \cos(2\varepsilon - 2\varphi + \delta) + \varepsilon^2 \dots]$$

En ajustant l'angle φ de manière à annuler le signal

$$\operatorname{tg}(2\varepsilon - 2\varphi + \delta) = 2\varepsilon - 2\varphi + \delta = -\delta_p \cos 2\alpha_p$$

$$\varphi = \frac{\delta}{2} + \left(\varepsilon + \frac{\delta_p}{2} \cos 2\alpha_p \right)$$

Dans la pratique on assimilera φ à $\delta/2$

Mis à part le mauvais positionnement de la lame, l'angle de phase n'est pas toujours rigoureusement égal à $\pi/2$; cependant l'erreur due à ce défaut [81] n'introduit que des termes du troisième ordre . Signalons pour terminer, l'existence de la méthode différentielle de Signer [82] qui permet de s'affranchir des biréfringences parasites .

Une lame quart d'onde alignée sur la direction de polarisation de la lumière incidente est introduite entre le milieu en écoulement et l'analyseur .

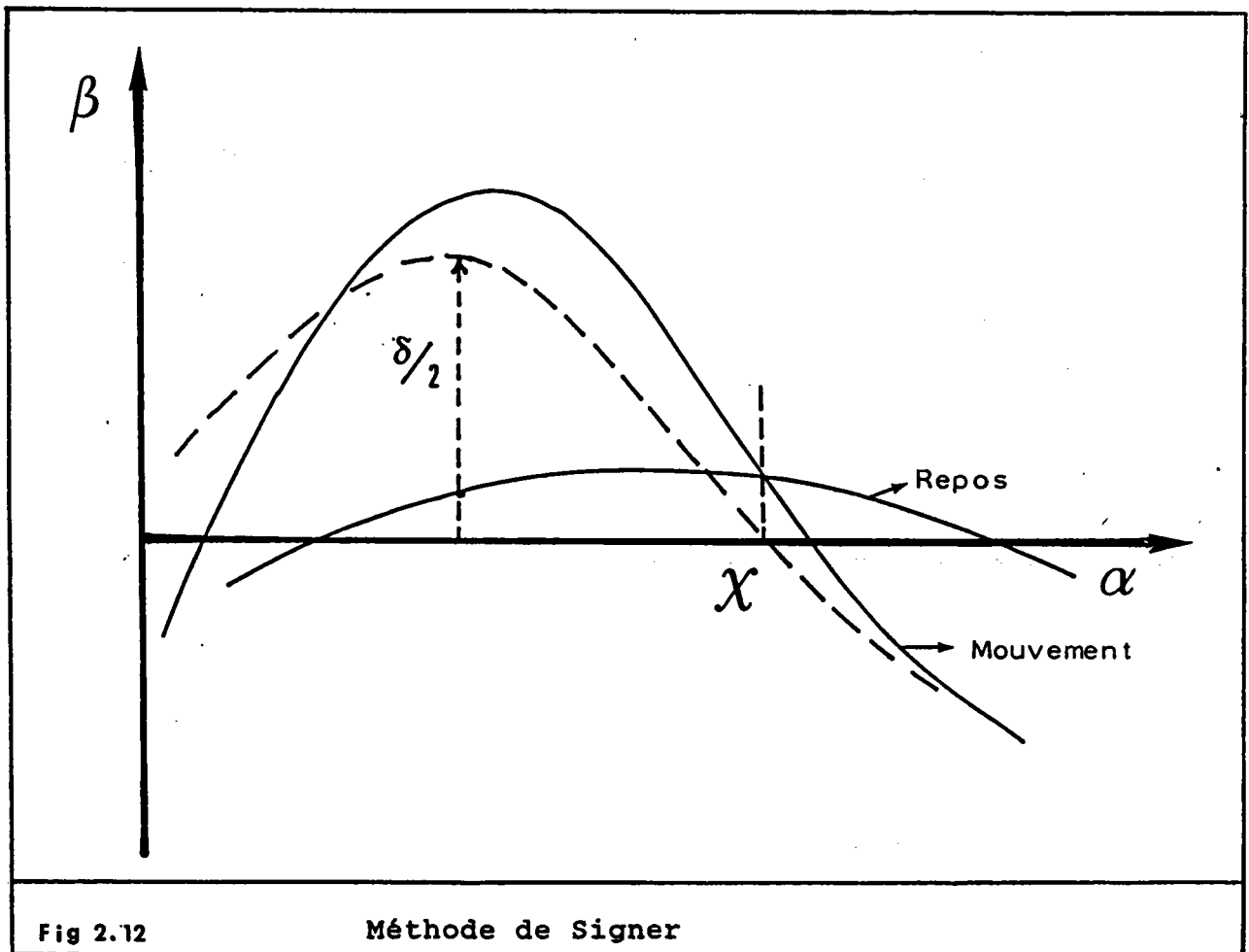


Fig 2.12

Méthode de Signer

La direction de l'écoulement est prise comme référence, on appelle α l'azimut du polariseur .

On trace les courbes $\beta(\alpha)$ lorsque la solution est en mouvement puis au repos (β est l'angle compté à partir de la position de croisement, dont il faut tourner l'analyseur pour rétablir l'extinction) .

L'allure des courbes est donnée sur la figure 2.12 .

L'angle d'extinction est l'abscisse de l'intersection des deux courbes, tandis que le demi angle Δn est le maximum de la courbe obtenue en portant en ordonnées les différences des ordonnées des courbes M et R .

La méthode est très longue et ne sera utilisée que dans les cas extrêmes .

2.4. Influence du dichroïsme linéaire et du pouvoir rotatoire .

La biréfringence d'écoulement présentée par les solutions de particules anisodiamétriques est fréquemment accompagnée de dichroïsme linéaire (absorption différentielle) ou de pouvoir rotatoire (biréfringence circulaire) .

Les deux propriétés étant intimement liées, le milieu en écoulement n'est pas en général équivalent à un ensemble de deux milieux indépendants, doués chacun de l'une des propriétés . Néanmoins, on constate expérimentalement que, dans les solutions étudiées, la biréfringence linéaire est toujours supérieure soit au dichroïsme linéaire, soit au pouvoir rotatoire, et de ce fait on pourra séparer les deux propriétés .

Pour la suite des calculs, les éléments de l'ellipsomètre seront supposés parfaits ; on calculera le signal transmis en premier lieu par un milieu biréfringent doué d'absorption différentielle, puis par un biréfringent présentant du pouvoir rotatoire .

2.4.1. Milieux biréfringent et dichroïque .

Les modes normaux d'un tel milieu sont deux vibrations linéaires dont les amplitudes décroissent au cours de la traversée du milieu . On supposera que les directions principales d'absorption sont confondues avec les lignes neutres du milieu .

Le milieu présente alors une biréfringence complexe $\Delta\tilde{n} = \Delta n - j\Delta k$ dont la partie réelle représente la biréfringence linéaire classique tandis que la partie imaginaire est reliée au dichroïsme linéaire . En utilisant le formalisme matriciel de Mueller, on détermine le signal transmis par l'ellipsomètre dont les éléments ont la disposition des figures (2.7) et (2.8) .

a). Repérage des lignes neutres .

Le produit matriciel $[A][M_0][M]J_0$ dans lequel $[M]$ représente maintenant le milieu doué des deux propriétés (annexe A) conduit au signal

$$S_2(2\omega t) = \rho_1 \rho_2 \sin\gamma \sin 2\alpha \sin(2\omega t - \varphi)$$

Le dichroïsme linéaire n'intervenant que par le produit $\rho_1 \rho_2$ dans l'amplitude du terme S_2 , il ne perturbe pas le repérage des lignes neutres .

Il n'en sera pas de même pour la mesure de l'angle de phase .

b). Mesure de l'angle de phase .

De la même manière, le produit

$$[A][Q][M_0][M]J_0$$

avec $J_0 = \{1, \cos 2\alpha, \sin 2\alpha, 0\}$

conduit à

$$S_2(2\omega t) = (S_k + \Delta k \cos 2\alpha) \sin \gamma \sin 2\varphi \sin 2\omega t \\ + \rho_1 \rho_2 \sin \gamma \sin 2\alpha \sin(\delta - 2\varphi) \cos 2\omega t$$

Le signal contient deux termes en quadrature de phase et d'amplitude inégales . (α représente l'azimut du polariseur par rapport à l'une des lignes neutres du milieu) .

L'angle de décroisement φ de l'analyseur est généralement faible, il s'ensuit qu'en première approximation, seul le terme en $\cos 2\omega t$ subsiste et lorsqu'un signal nul est atteint

$$\varphi = \delta/2$$

Une détection synchrone, double voies, permettrait d'annuler indépendamment les deux composantes du signal et d'atteindre la partie réelle et imaginaire de la biréfringence complexe .

Cependant, lorsque la biréfringence de la solution est suffisamment forte pour qu'une analyse visuelle de la lumière soit possible, la biréfringence et le dichroïsme linéaire peuvent être obtenus d'une manière approchée .

Soit ε , l'angle du grand axe de l'ellipse avec la direction de polarisation (ε est nul lorsque le milieu est purement biréfringent) . (fig. 2.14) .

On montre que :

$$\operatorname{tg} 2\varepsilon = \frac{\rho_1^2 - \rho_2^2}{\rho_1 \rho_2 \cos 2\delta} \quad \delta = (\varphi_2 - \varphi_1)$$

De même l'ellipticité de la vibration s'écrit :

$$\sin 2\psi = \frac{2\rho_1 \rho_2 \sin(\varphi_2 - \varphi_1)}{\rho_1^2 + \rho_2^2}$$

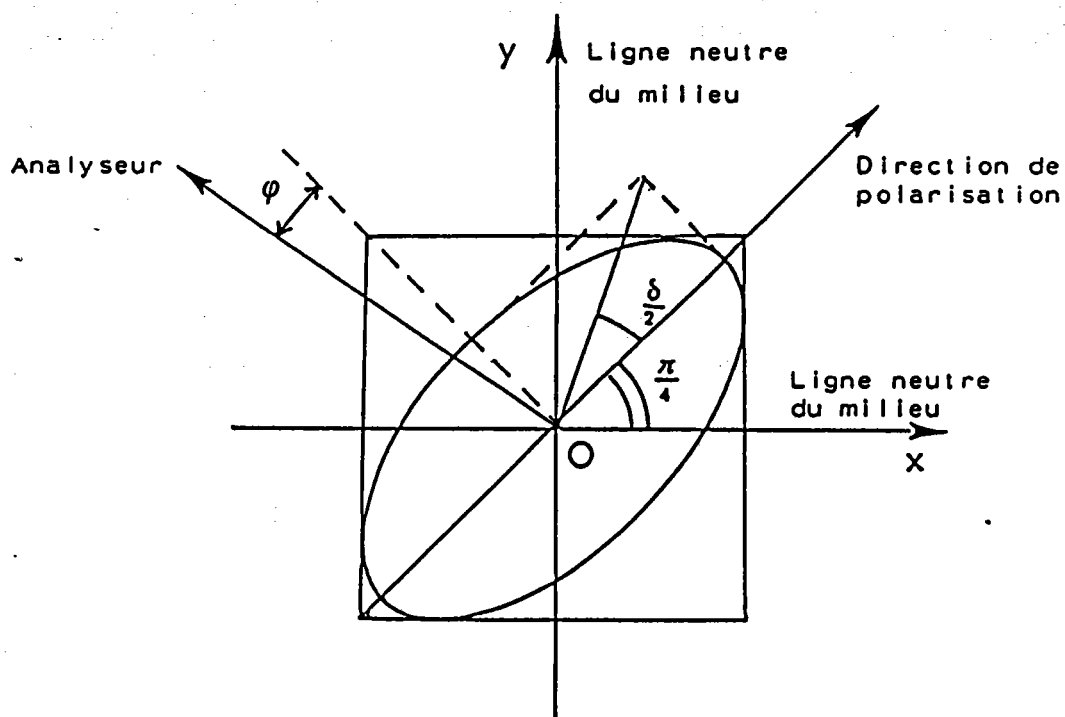
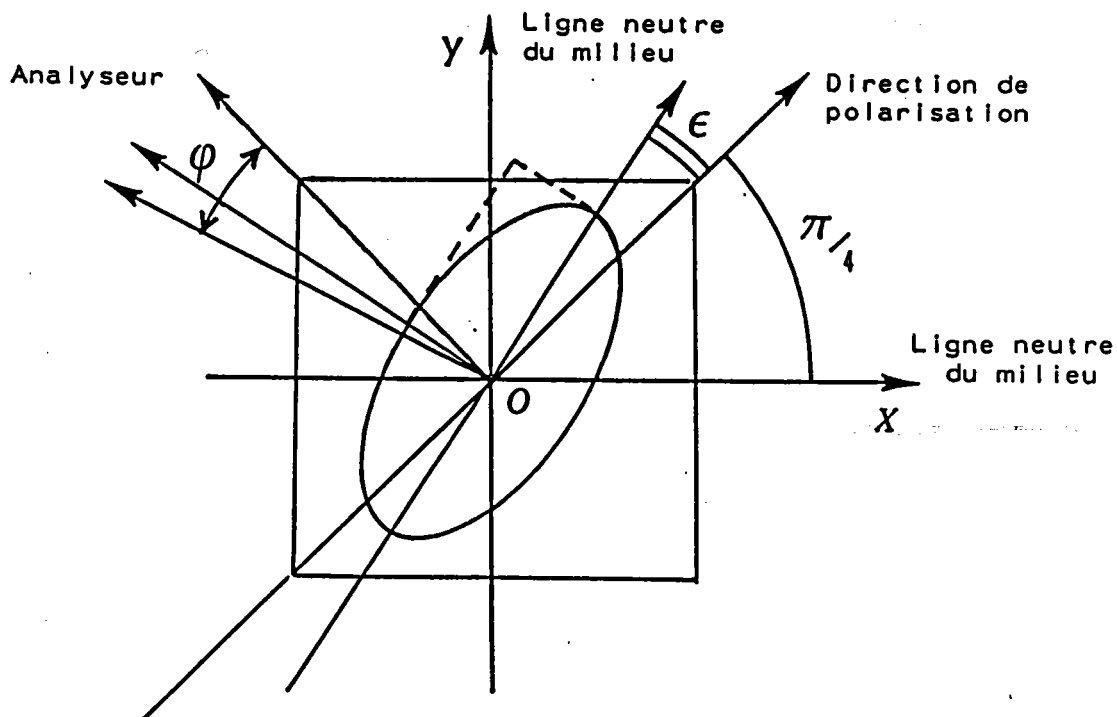


Fig 2.13

Orientation de la vibration elliptique transmise par un biréfringent



Disposition de la vibration élliptique transmise par un milieu dichroïque et biréfringent.

Fig 2.14

Orientation de la vibration elliptique transmise par un milieu biréfringent et dichroïque

Puisque ε est différent de zéro, la vibration issue de la lame $\lambda/4$ est elliptique et l'on ne peut réaliser l'extinction par la seule rotation de l'analyseur .

Cependant, en agissant simultanément sur l'orientation de la lame $\lambda/4$ et de l'analyseur, il est possible de réaliser l'extinction totale : ceci signifie que la vibration issue de la lame quart d'onde est linéaire, donc que l'un des axes de cette dernière est confondu avec le grand axe de l'ellipse . En mesurant ε , on peut en déduire une valeur approchée de Δk .

$$\operatorname{tg} 2\varepsilon = 2(1 - \rho_2 / \rho_1) (\cos 2\delta)^{-1}$$

$$\operatorname{tg} 2\varepsilon = 2[1 - \exp(-2\pi d \Delta k)] \cos 2\delta$$

avec $\Delta k = k_e - k_o$: différence des coefficients d'extinction principaux .

De même, dans la mesure où $\rho_1 = \rho_2$, la rotation de l'analyseur donne la demie différence de phase ($\varphi_2 - \varphi_1$)

$$2\varphi = (\varphi_2 - \varphi_1) = \frac{2\pi}{\lambda} d \Delta n$$

2.4.2. Milieu biréfringent linéaire doué de pouvoir rotatoire .

Un tel milieu qualifié de retardateur elliptique peut transmettre sans déformation deux vibrations elliptiques [83] orthogonales de même ellipticité ε , mais se propageant à des vitesses différentes .

Les modes normaux incidents normalisés seront représentés par

$$\begin{vmatrix} \cos \varepsilon \\ j \sin \varepsilon \end{vmatrix} \quad \text{et} \quad \begin{vmatrix} j \sin \varepsilon \\ \cos \varepsilon \end{vmatrix}$$

La méthode simple de superposition [84] qui consiste à décomposer le milieu en couches infiniment minces dans lesquelles les deux propriétés sont indépendantes, permet de calculer $\text{tg} 2\varepsilon$ et la différence de phase composite Δ par unité de longueur

$$\text{tg} 2\varepsilon = - \frac{2\theta}{\delta} \quad \text{et} \quad \Delta = \sqrt{\delta^2 + 4\theta^2}$$

où δ est la différence de phase que présenterait un milieu purement biréfringent et θ la rotation produite en l'absence de biréfringence .

a). Repérage des lignes neutres .

Dans un tel milieu, on appellera ligne neutre, la direction du grand axe de l'un des modes normaux .

En adoptant la disposition des éléments décrite sur la figure (2.7), le terme $S_2(2\omega t)$ s'écrit : (en annexe A, la matrice de Mueller du milieu)

$$S_2(2\omega t) = 2\sin\gamma [\cos 2\varepsilon \sin 2\varepsilon \cos 2\alpha (\cos \Delta - 1) + \cos 2\varepsilon \sin 2\alpha \sin \Delta] \sin 2(\omega t - \varphi)$$

La condition de nullité du signal s'écrit :

$$\text{tg} 2\alpha = \frac{\sin 2\varepsilon (1 - \cos \Delta)}{\sin \Delta}$$

Elle montre que le signal est nul pour α différent de zéro ; donc l'emploi d'une lumière incidente polarisée linéairement ne permet pas de repérer les directions principales sans erreur .

Cependant, lorsque les angles sont petits, ce qui en général est le cas, on montre que

$$\operatorname{tg} 2\varepsilon = 2\varepsilon = \theta$$

autrement dit, l'une des lignes neutres est à $\theta/2$ de la vibration incidente .

L'emploi d'un polariseur et d'un analyseur elliptique permet de résoudre le problème et de déterminer les directions principales ; deux lames quart d'onde sont introduites sur le trajet de la lumière : l'une en amont du milieu en rotation, l'autre en aval ; elles sont couplées et leur axe rapide croisé . Pour une orientation convenable par rapport à la direction de polarisation rectiligne incidente, la première lame fournit une vibration d'ellipticité identique à celle de l'un des modes propres du milieu . La seconde lame est orientée de la même manière par rapport à la direction de transmission de l'analyseur .

L'ensemble polariseur-analyseur croisé et lames quart d'onde est tourné jusqu'à retrouver l'extinction totale : l'un des axes de la lame quart d'onde aval est alors confondu avec le grand axe de l'ellipse représentant l'un des modes normaux .

b). Mesure de l'angle de phase δ .

Examinons dans quelle mesure l'emploi d'une lumière polarisée linéairement permet d'atteindre la biréfringence propre δ de la solution .

Bien que les directions principales ne soient pas connues avec précision, plaçons le polariseur à $\pi/4$ de la direction repérée précédemment .

Le signal transmis par le système s'écrit

$$S_2(2\omega t) = \frac{2\theta}{\Delta} \sin\Delta \sin\gamma \sin 2\varphi \sin 2\omega t \\ + \sin\gamma \left[-\frac{\delta}{\Delta} \sin\Delta \cos 2\varphi - \sin 2\varphi \cos\Delta \right] \cos 2\omega t$$

A nouveau le signal transmis contient deux termes en quadrature de phase d'importance inégale séparable par une détection synchrone double voie .

En première approximation, lorsque l'on ne tient compte que du second terme, la condition de nullité du signal s'écrit

$$\operatorname{tg} 2\varphi = -\frac{\delta}{\Delta} \operatorname{tg} \Delta$$

et

$$\varphi = \frac{\Delta}{2} - \frac{\theta^2 \Delta}{\delta^2} + \dots$$

La rotation de l'analyseur à partir de sa position croisée ne permet d'atteindre que la différence de phase composite du milieu .

Examinons à présent dans quelle mesure l'observation visuelle de l'extinction permettrait d'atteindre δ et θ .

Par rapport à la direction de polarisation incidente le grand axe de l'ellipse est à l'azimut ζ tel que

$$\operatorname{tg} 2\zeta = \frac{2\theta}{\Delta} \operatorname{tg} \Delta = 2\theta$$

De même l'ellipticité ε de la vibration s'écrit

$$\sin 2\varepsilon = \frac{\delta}{\Delta} \sin \Delta \\ \varepsilon = \frac{\delta}{2} \left[1 - \frac{\Delta^2}{3\theta} + \dots \right]$$

Par un raisonnement identique à celui développé au paragraphe concernant le milieu doué de dichroïsme linéaire, à l'extinction la rotation de la lame quart d'onde à partir de sa position d'alignement donnera θ , tandis que la rotation de l'analyseur à partir de sa position de croisement donnera la différence de phase propre au premier ordre .

En conclusion, que le milieu biréfringent linéaire soit doué en plus de dichroïsme linéaire ou de pouvoir rotatoire, l'analyse photo-électrique du signal modulé ne nous permet pas de distinguer les différentes propriétés . Néanmoins, lorsque les angles à mesurer sont suffisamment grands, une méthode visuelle simple conduit aux valeurs approchées des caractéristiques optiques des solutions : angle de phase, dichroïsme, pouvoir rotatoire .

La méthode que nous avons employée pour nos mesures a été fonction des solutions étudiées .

CHAPITRE III

RESULTATS EXPERIMENTAUX.

L'objectif initial de cette étude a été de fournir une base expérimentale aux calculs théoriques qui seront développés au chapitre suivant.

En régime laminaire, on montre [33] que l'angle d'extinction ne dépend de la forme de la particule que par le carré du rapport de forme b .

Les mesures expérimentales de χ en fonction du gradient de cisaillement ne permettent donc pas de distinguer entre une particule très longue ou très aplatie (plaquette).

En écoulement de Taylor, au-delà de la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor, il n'en est plus de même : les puissances impaires de b sont présentes dans l'expression analytique de χ ; il s'ensuit que les courbes représentant les variations de χ et de l'intensité de la biréfringence Δn doivent présenter un aspect différent suivant la forme, allongée ou aplatie de la particule utilisée.

Ainsi, dans le but de vérifier ces prédictions, avons-nous expérimenté des solutions contenant des particules dont la forme se rapproche le plus des modèles théoriques utilisés : ellipsoïdes, bâtonnets, fil très long.

Les suspensions aqueuses d'argiles tels que la bentonite ou l'attapulгите apparaissent comme composées respectivement de plaquettes et d'aiguilles.

Le xanthane fera office de particules filliforme et enfin, le virus de la mosaïque du tabac a la forme d'un bâtonnet cylindrique.

Après avoir décrit les particules utilisées pour cette étude, nous examinerons successivement la stabilité dans le temps des solutions, puis leurs propriétés dynamo-optiques en régime laminaire aux faibles gradients afin de déterminer le coefficient de diffusion de rotation de chaque type de particules puis, enfin le comportement de ces mêmes propriétés à la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor et au-delà.

Afin de simplifier l'échelle des ordonnées, toutes les valeurs de la biréfringence Δn ont été multipliées par le coefficient

$$k = n_1/l = 2.04 \cdot 10^7$$

où l représente la hauteur de la cellule de mesure.

3.1. Les solutions utilisées dans les expériences.

Nous n'avons utilisé que des solutions aqueuses de différents types de particules.

3.1.1. Caractérisations des particules.

a. La bentonite.

L'argile utilisé est un produit commercial purifié, contenant d'après la dénomination communément admise, au moins 75 pour cent de montmorillonite. [85]

Cette dernière est un silicate d'Aluminium qui présente des degrés d'hydratation variés.

L'intérêt de ce minéral réside dans la structure en feuillets de ses particules qui lui confère une grande capacité de gonflement par fixation de molécules d'eau.

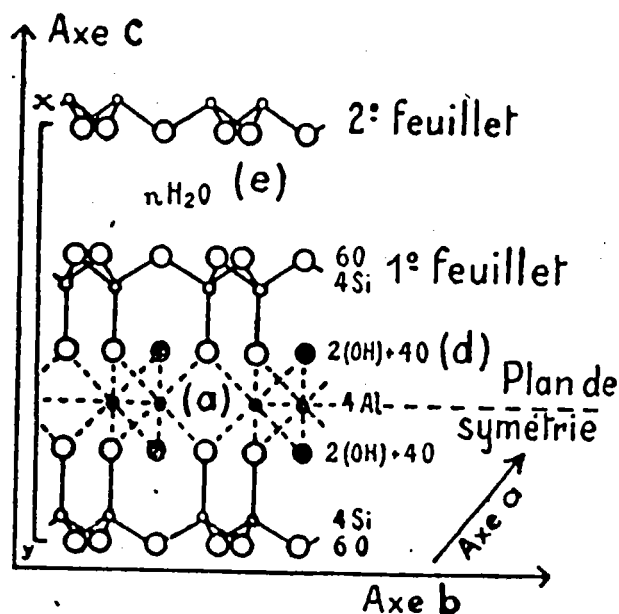


Fig 3.1 Structure de la bentonite

Un feuillet est une superposition de sept couches atomiques dont la maille élémentaire s'étend à l'infini, du moins en théorie, dans le plan horizontal.

La longueur d'un feuillet peut atteindre 50 000 Å pour une épaisseur d'environ 20 Å.

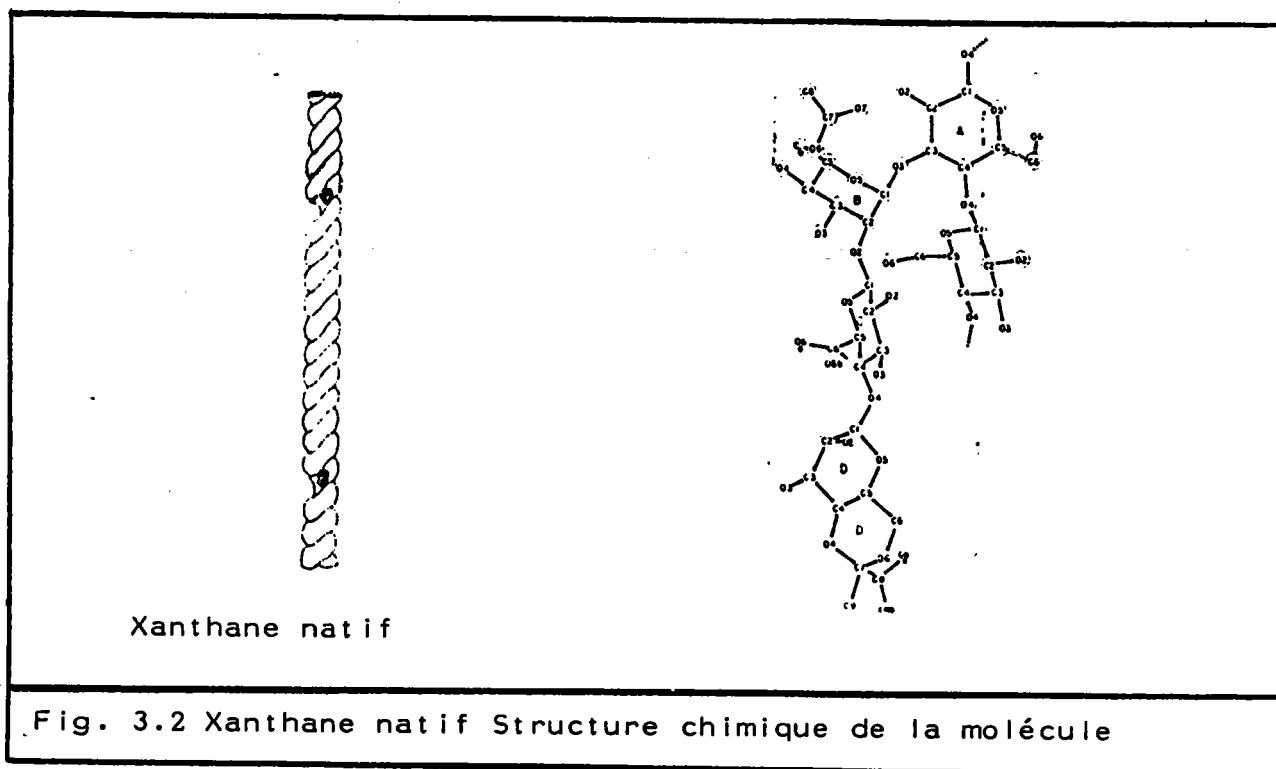
Les feuillets sont groupés pour former des micelles d'environ 100 à 200 Å d'épaisseur . Il en résulte donc une grande anisotropie de forme de la particule.[86]

b. Le xanthane.

Le Xanthane est un polysaccharide synthétisé par *Xanthomonas Campestris* et utilisé dans des domaines aussi variés que l'industrie alimentaire comme agent gélifiant, la pharmacie ou la récupération assistée du pétrole.

La structure primaire est une chaîne centrale similaire à celle de la cellulose et formée de D-glucose [87] sur laquelle sont greffées des chaînes latérales trisaccharides.

Mise en solution dans de l'eau à faible force ionique (0,01M en NaCl), la molécule subit une transformation conformationnelle induite par une élévation de la température [88]. Ce fait ainsi que des études de diffraction de rayons X [89] laissent à penser que la molécule native ordonnée a une structure hélicoïdale (fig. 3.2).



Les observations au microscope électronique de Holzwarth et Prestridge [90] ont révélé que la molécule a une structure en double, voire même en triple hélice de 20 000 Å de longueur pour un diamètre de 40 Å.

En milieu ionique, la molécule qui est un polyélectrolyte, acquiert une certaine rigidité par suite des répulsions électrostatiques. Elle représente le modèle théorique du fil rigide très long et mince. Il faut cependant remarquer que sa longueur est nettement supérieure à la longueur d'onde de la lumière utilisée dans les mesures de biréfringence et que, par conséquent le moment induit dans la particule par le champ électrique incident ne sera pas dipolaire, conformément à l'hypothèse de la théorie classique, mais multipolaire.

c. Le virus de la mosaïque du tabac. (V.M.T.).

L'âme de tout virus est un acide nucléique combiné avec différentes protéines. Dans le cas du V.M.T., l'acide nucléique, en l'occurrence l'A.R.N., est enroulé sur lui-même pour former un cylindre creux d'environ 40 Å de diamètre [91]. Autour de ce cylindre les protéines sont enroulées en une spirale continue (fig. 3.3).

La particule a la forme d'un batonnet rigide de 3 000 Å de longueur moyenne pour un diamètre moyen de 150 Å et de ce fait représente parfaitement le modèle simple théorique utilisé dans les calculs.

Du point de vue optique, la particule est pratiquement isotrope [92] la biréfringence présentée par les solutions de V.M.T. est donc essentiellement une biréfringence de forme.

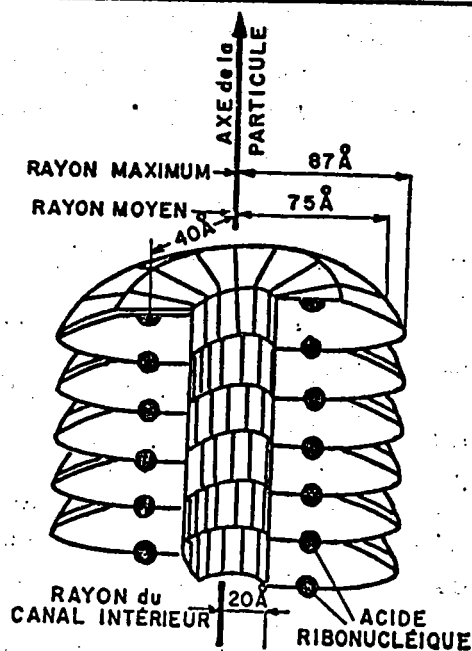


Fig. 3.3 Structure du virus de la mosaïque du tabac

3.1.2. Préparation des solutions.

Des solutions aqueuses des trois particules décrites ont été préparées en vue d'étudier leurs propriétés dynamo-optiques à la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor.

a. Solution de bentonite.

La bentonite utilisée est un produit commercial Prolabo. Environ 2 grammes de produit brut sont introduits dans un litre d'eau bipermutée additionnée de $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$ à 1' /

La solution est alors vigoureusement agitée mécaniquement pendant plusieurs heures avant d'être abandonnée au repos afin que les particules les plus grosses puissent décanter.

Une série de deux filtrations est ensuite effectuée sur le liquide surnageant afin d'éliminer les microcristaux ainsi que les agrégats les plus gros : la première a lieu sur papier filtre ordinaire et la seconde sur filtre micropore de 0.45μ .

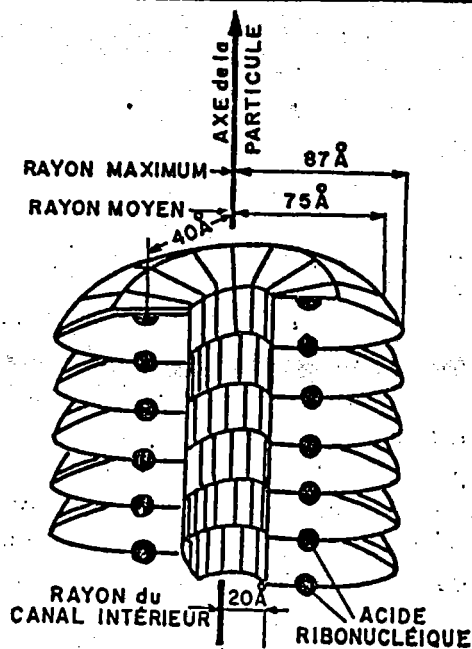


Fig. 3.3 Structure du virus de la mosaïque du tabac

3.1.2. Préparation des solutions.

Des solutions aqueuses des trois particules décrites ont été préparées en vue d'étudier leurs propriétés dynamo-optiques à la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor.

a. Solution de bentonite.

La bentonite utilisée est un produit commercial Prolabo. Environ 2 grammes de produit brut sont introduits dans un litre d'eau bipermutée additionnée de $\text{Na}_4\text{P}_2\text{O}_7$ à 1'/. . . . La solution est alors vigoureusement agitée mécaniquement pendant plusieurs heures avant d'être abandonnée au repos afin que les particules les plus grosses puissent décanter. Une série de deux filtrations est ensuite effectuée sur le liquide surnageant afin d'éliminer les microcristaux ainsi que les agrégats les plus gros : la première a lieu sur papier filtre ordinaire et la seconde sur filtre micropore de 0.45μ .

Enfin avant d'être utilisée, la solution subit une centrifugation d'une durée de 20mn à 10 000 trs/mn afin de la dépoussiérer.

Le pH de la solution est basique (environ 7.4) et dans ces conditions les particules se trouvent à l'état finement dispersé sous forme de feuillets [93].

Suite à ces multiples manipulations, la concentration de la solution n'est plus connue ; il nous suffira cependant de savoir qu'elle est suffisamment faible pour satisfaire à l'hypothèse de régime dilué.

Pour la suite, la concentration de la solution-mère sera notée C

b. Solution de Virus de la mosaïque du tabac.

La solution mère de concentration 34 mg/ml nous a été fournie gracieusement par Monsieur le Professeur Jean Vitz de l'Institut de Botanique de Strasbourg.

Une solution moins concentrée à 1 mg/ml a été réalisée en mélangeant la solution mère à un tampon phosphate à pH 7.

Après centrifugation à 11 000 trs/mn pendant 20 mn afin d'éliminer les poussières, la solution est prête à être étudiée.

c. Solution de xanthane.

Les solutions sont préparées à partir d'un produit commercial Rhône-Poulenc : le Rhodopol 23.

Une solution mère à 0.5 gr/l, 0.1 M en NaCl et contenant 0.02 gr/l de NaN_3 est dialysée pendant 48 heures.

Elle subit ensuite une filtration sur filtre Micropore de 0.45 μ .

Des dilutions croissantes sont alors réalisées à partir de cette solution-mère et chaque échantillon est soumis à une centrifugation de 20 mn à 10 000 trs/mn afin de le dépoussiérer.

3.2. Stabilité des solutions.

Le repérage des lignes neutres ainsi que les mesures de l'intensité de la biréfringence d'écoulement sont longues et il arrive fréquemment que la solution que l'on étudie soit soumise au cisaillement pendant plusieurs heures lorsque l'on suit les variations de χ et de Δn pour différentes valeurs du gradient et en plusieurs points de l'espace annulaire.

Il est donc indispensable de s'assurer en premier lieu que les particules en solution ne subissent pas de dégradations importantes ou de modifications de structure durant l'intervalle de temps que durent les mesures.

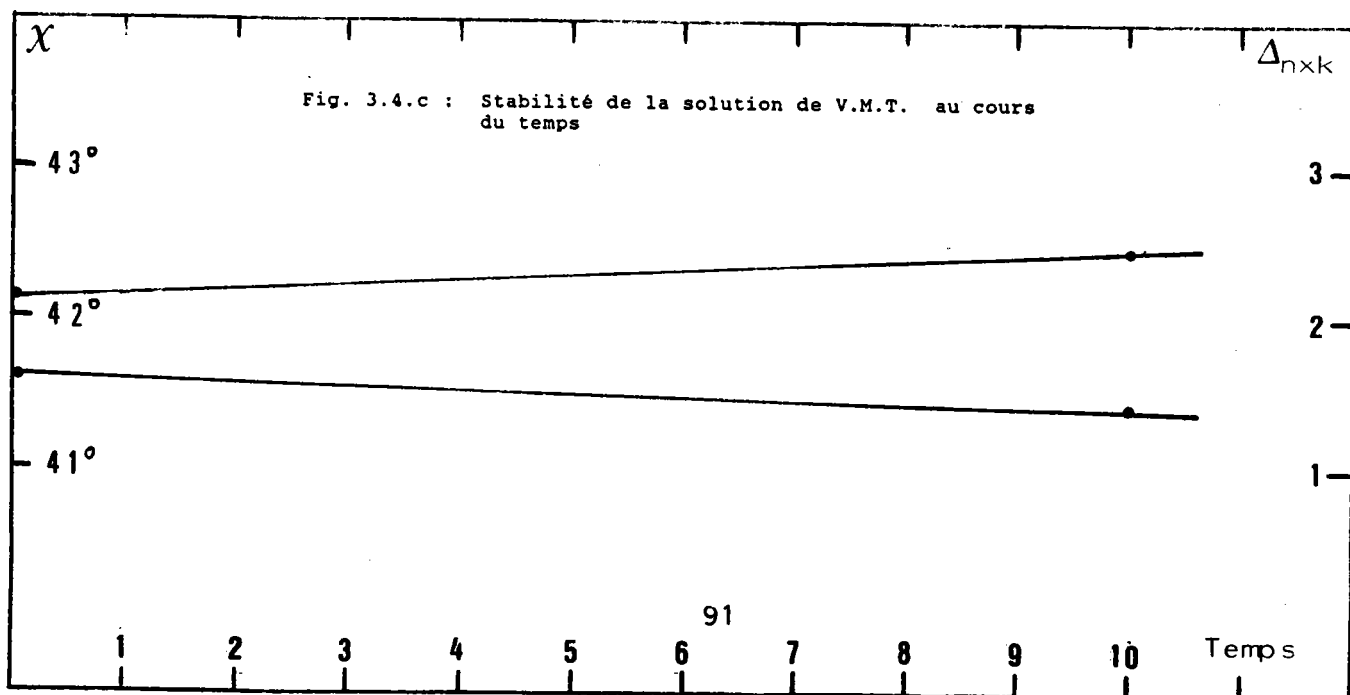
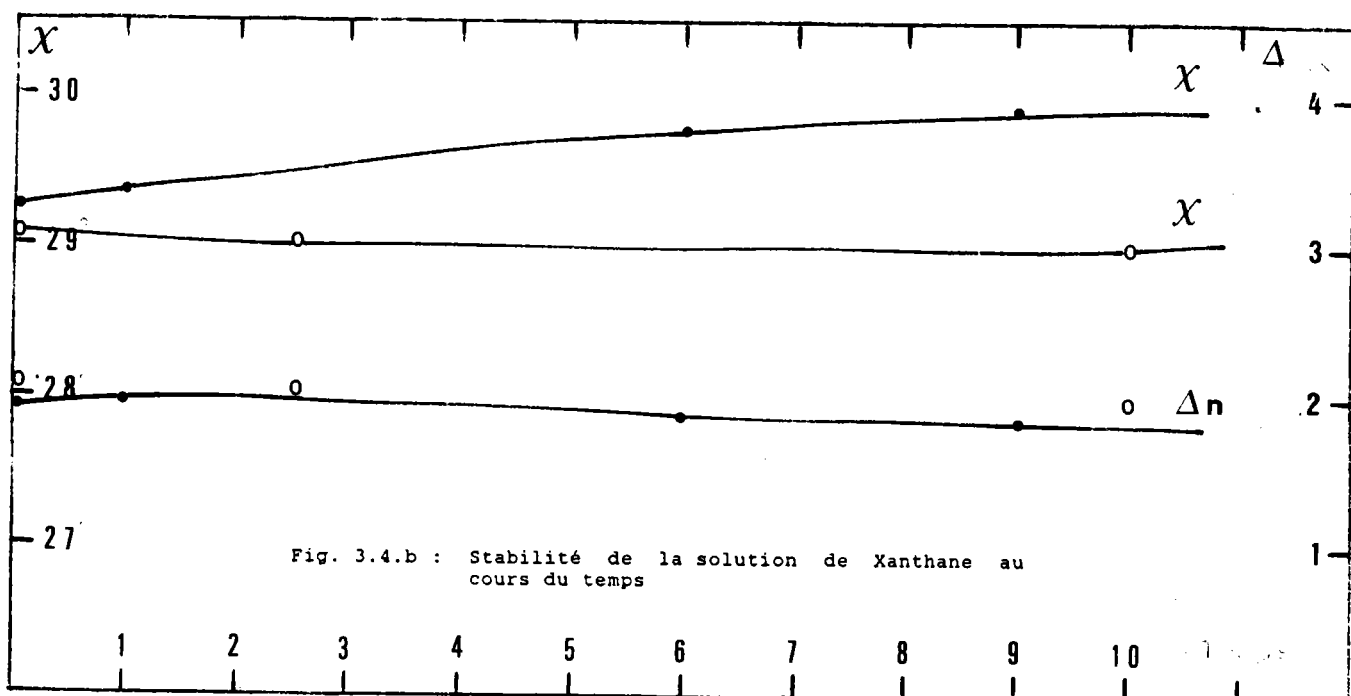
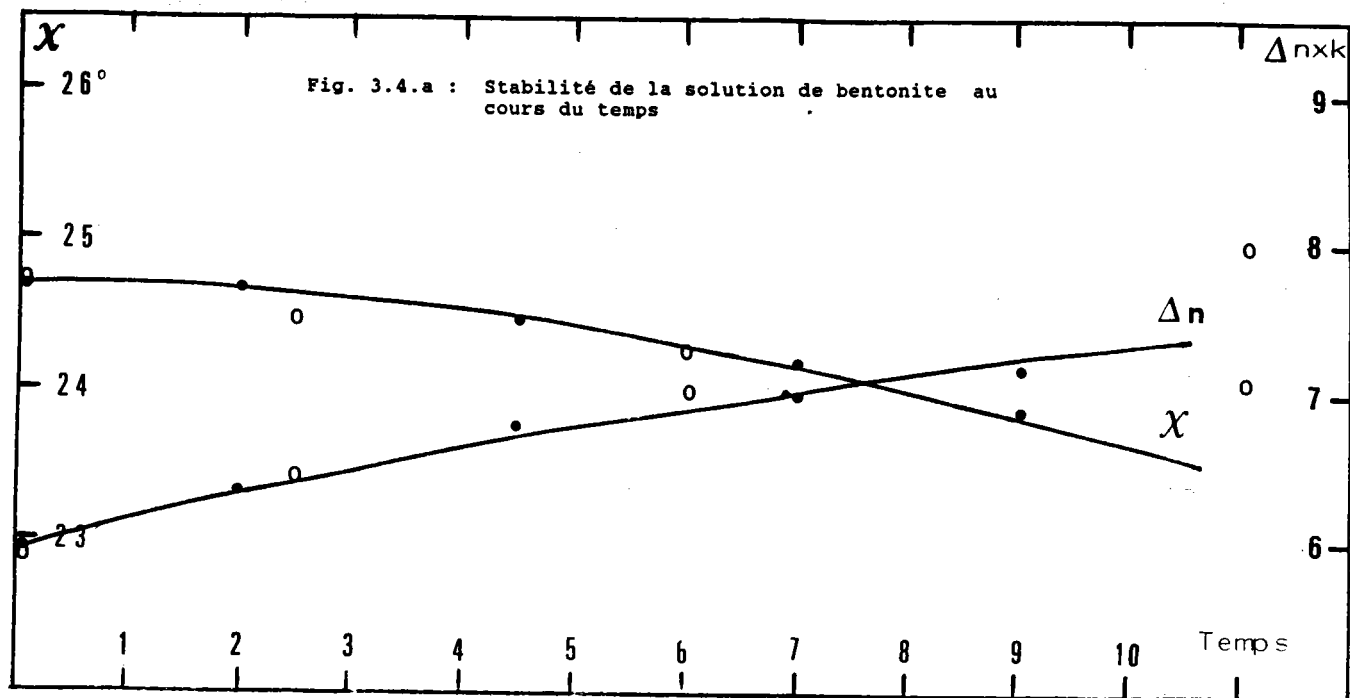
Un échantillon des solutions de bentonite et de xanthane a été soumis au cisaillement pendant une durée de huit heures ;

la position des lignes neutres ainsi que l'intensité de la biréfringence sont mesurées plusieurs fois au cours de cet intervalle de temps.

En ce qui concerne le V.M.T. dont nous ne disposons que d'une faible quantité nous avons simplement vérifié la constante des propriétés optiques avant et après une série de mesure.

Les figures (3.4.a) (3.4.b) et (3.4.c) rendent compte de ces résultats sur une période de neuf heures.

D'une manière générale, on constate que, à gradient constant, l'angle d'extinction croît tandis que Δn décroît légèrement.



Dans le cas des particules rigides et pour un gradient et une température donnés, χ ne dépend que des caractéristiques géométriques des particules [33] par l'intermédiaire du coefficient de diffusion de rotation D_r et de b défini comme suit :

$$b = \frac{p^2 - 1}{p^2 + 1}$$

où p est l'allongement de la particule.

Il s'ensuit donc, et ceci est particulièrement marqué dans le cas de la bentonite, que les dimensions ou la forme des particules sont modifiées au cours des mesures. Ces changements sont nettement moins importants dans le cas du xanthane et du V.M.T. Enfin de vérifier que ces variations de χ et Δn sont bien dues à une dégradation de la solution par suite du cisaillement prolongé, un échantillon de bentonite puis de Xanthane ont séjourné plusieurs heures dans la cellule au repos, la rotation n'étant effectuée que durant le temps minimum nécessaire aux mesures. Les résultats correspondent aux points vides (0) des figures (3.4.a) et (3.4.b).

La dégradation de la solution de bentonite est identique à celle réalisée au cours du cisaillement prolongé : ceci nous conduit à supposer que le contact de la solution avec le métal de la cellule est responsable de la modification des caractéristiques géométriques des particules.

Quant à la solution de xanthane, ses propriétés ne semblent pas affectées par un séjour prolongé au contact du métal dans la cellule au repos.

3.3. Coefficient de diffusion de rotation.

Nous exposerons à présent les résultats des mesures effectuées aux faibles valeurs de G et qui conduisent au coefficient de diffusion de rotation des diverses particules utilisées.

D'une manière générale, on détermine en premier lieu la concentration limite à partir de laquelle la solution peut être considérée comme diluée : pour une solution donnée, l'angle d'extinction χ ne dépend plus que du gradient de cisaillement et la biréfringence Δn est proportionnelle à la concentration.

La pente de la tangente à l'origine de la courbe $\chi(G)$ conduit au coefficient recherché puisque

$$\left(\frac{\pi/4 - \chi}{G} \right)_{G \rightarrow 0} = \frac{1}{12D_r}$$

Les mesures précises aux faibles gradients sont délicates et les points expérimentaux intéressants au voisinage de $G=0$ manquent souvent.

De ce fait, nous avons employé la méthode d'interpolation numérique de Lagrange pour déterminer D_r . Les courbes expérimentales présentent ainsi deux parties qui correspondent à ces deux domaines : les symboles tels que ($\bullet \star \star \star$) représentent les points réels expérimentaux tandis que les symboles vides ($\circ$) les points interpolés.

La connaissance de D_r permet de tracer les courbes $\chi(\sigma)$ avec $\sigma=G/D$ et de comparer ces résultats aux calculs théoriques de Scheraga et al. [72].

Les variations de Δn en fonction de G sont également reportées afin de vérifier la proportionnalité entre Δn et la concentration c .

3.3.1. Solutions de bentonite.

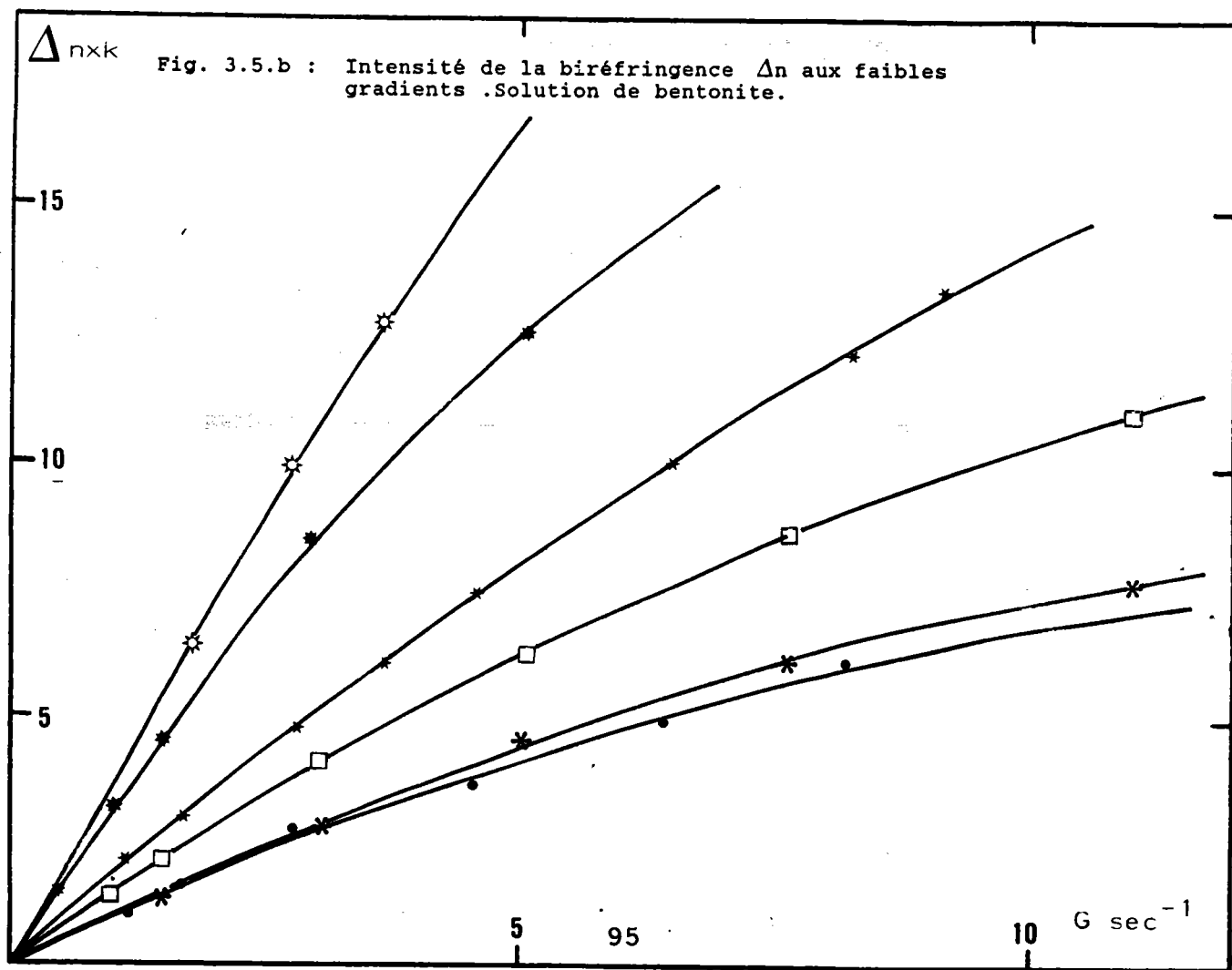
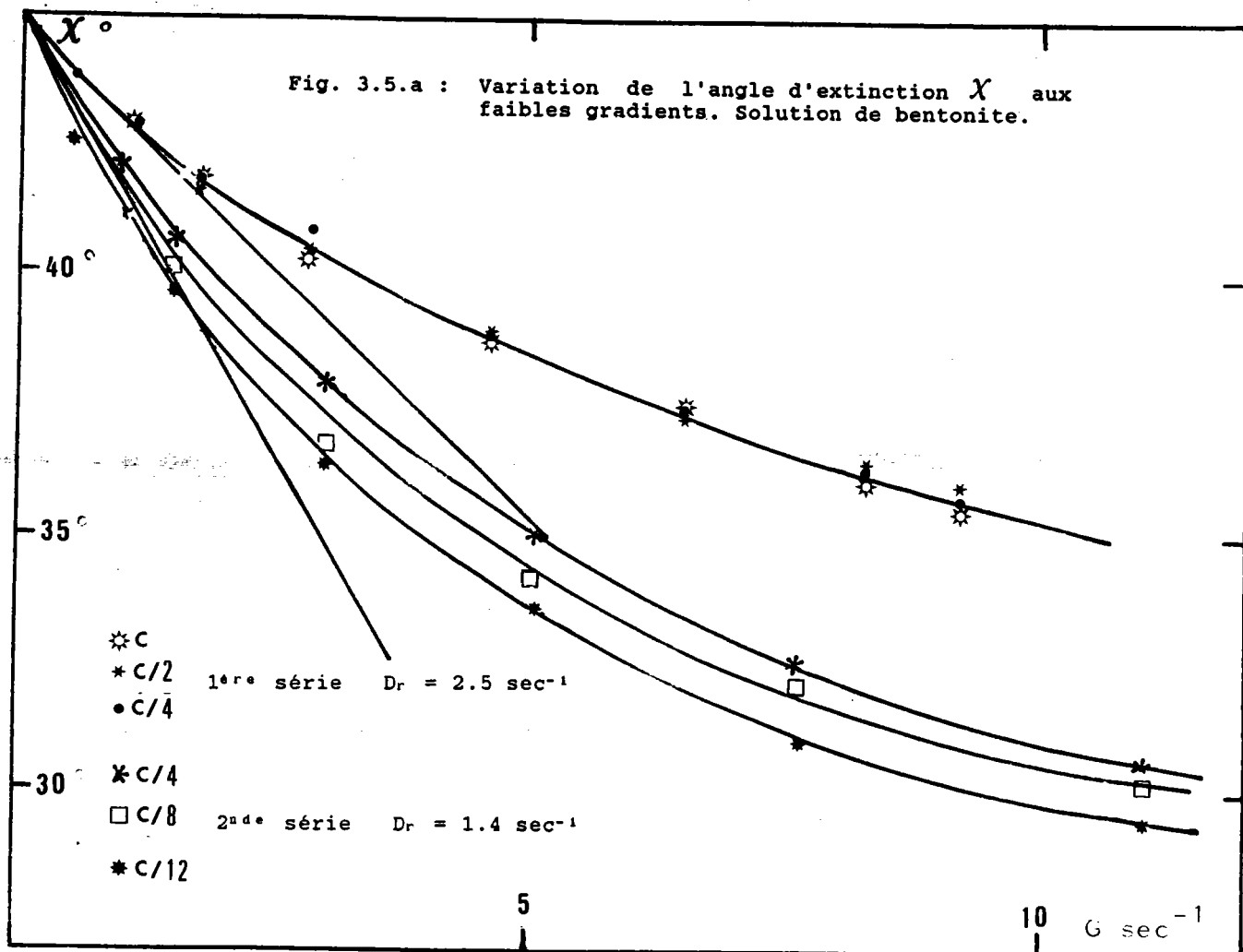
Deux séries de mesures (désignées par la suite par série I et série II) effectuées à plusieurs mois d'intervalle ont montré que la solution évolue de manière importante au cours du temps. Les variations de χ et Δn en fonction du gradient sont reportées sur les figures (3.5) et (3.6).

Le coefficient de diffusion de rotation D_r est calculé partir des valeurs interpolées de l'angle au voisinage de G tendant vers 0 pour les points expérimentaux correspondants au régime dilué.

La concentration des solutions des séries I et II est exprimée en fonction de la concentration C de la solution-mère. Pour la série I, le régime dilué est atteint à $C/2$ tandis que pour la série II, il l'est à $C/8$.

Les coefficients de diffusion sont calculés à partir des valeurs de χ interpolées.

Essai	Concentration	Coefficient de diffusion calculé
Série I	$C/2$	2.5 sec^{-1}
Série II	$C/8$	1.4 sec^{-1}



Le vieillissement de la solution-mère conduit à une diminution significative du coefficient D_r , ce qui nous incite à penser que la taille des particules s'est accrue au cours du temps. Deux mécanismes peuvent être incriminés pour expliquer cet accroissement : une agglomération de plusieurs particules ou un gonflement des particules individuelles par adsorption d'un nombre croissant de molécules d'eau entre les feuillets.

A titre de comparaison, mentionnons les résultats de W.T. GRANQUIST et al. [94] qui, par extrapolation à concentration et gradient nuls, proposent une valeur de 13.3 sec^{-1} pour une montmorillonite.

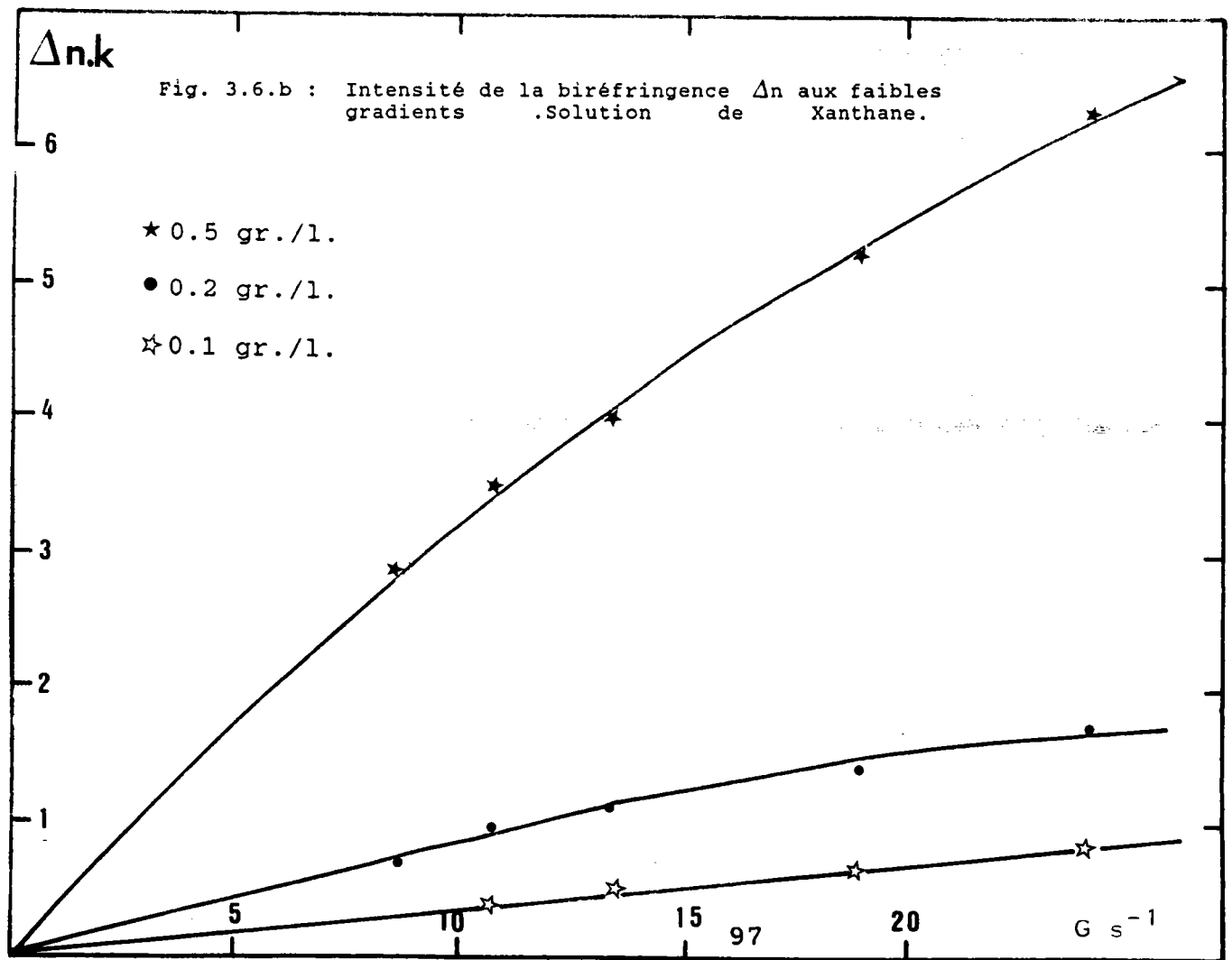
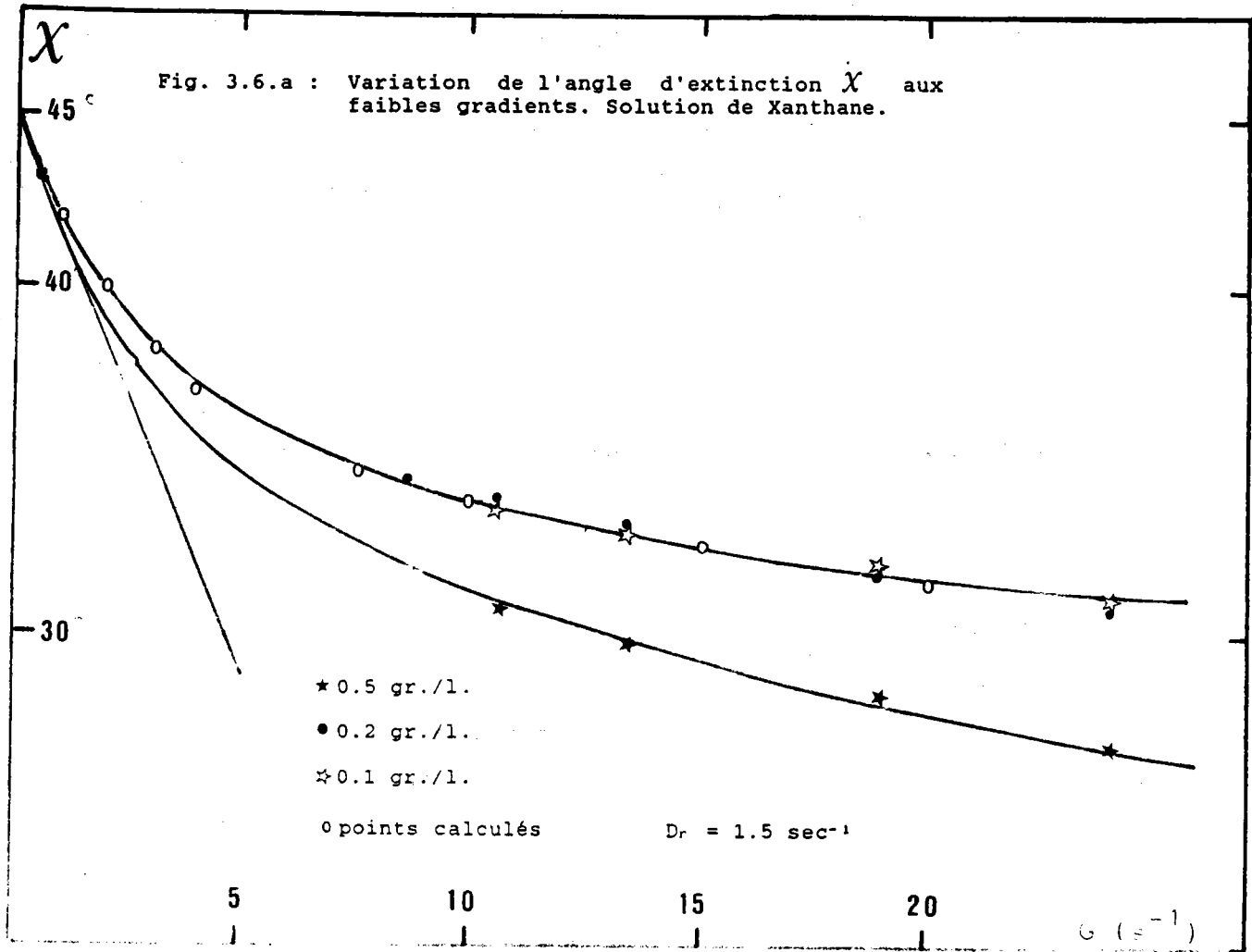
A partir de la formule théorique de Donnet [95] et d'une distribution de taille donnée ils calculent également une valeur théorique du coefficient de diffusion et proposent $D_r = 10.4 \text{ sec}^{-1}$

Les courbes $\Delta n(G)$ tracées pour les deux séries de mesures montrent également que le régime dilué est atteint pour les séries I et II puisque l'on observe une bonne proportionnalité entre Δn et la concentration c aux faibles valeurs de G .

3.3.2. Solution de xanthane

Des échantillons de concentration décroissante sont préparés à partir de la solution - mère à 0.5 gr./l. par dilution successive à l'aide de H_2O distillée 0.1 M en NaCl afin de maintenir constante la salinité de la solution qui influe sur la forme des particules.

Le tracé des courbes $\chi(G)$ permet ensuite de déterminer la concentration correspondant au régime dilué. On constate sur la figure (3.6.a) que les concentrations 0.2 gr./l. et 0.1 gr./l. conduisent à une superposition satisfaisante des courbes.



La courbe correspondant à $c = 0.2 \text{ gr./l.}$ comprend une partie interpolée par la méthode de Lagrange et qui permet de calculer D_r pour le Xanthane :

$$D_r = 1.5 \text{ sec}^{-1}$$

Compte tenu de la taille relativement importante des particules de xanthane une valeur aussi petite de D est tout à fait plausible.

Ce résultat est comparable aux valeurs de B.Jouhier [68] obtenues en ajustant une courbe théorique calculée à l'aide d'une distribution donnée de taille des particules à ses résultats expérimentaux. La figure (3.6.b) montre pour les deux solutions diluées une bonne proportionnalité entre Δn et c aux faibles valeurs du gradient.

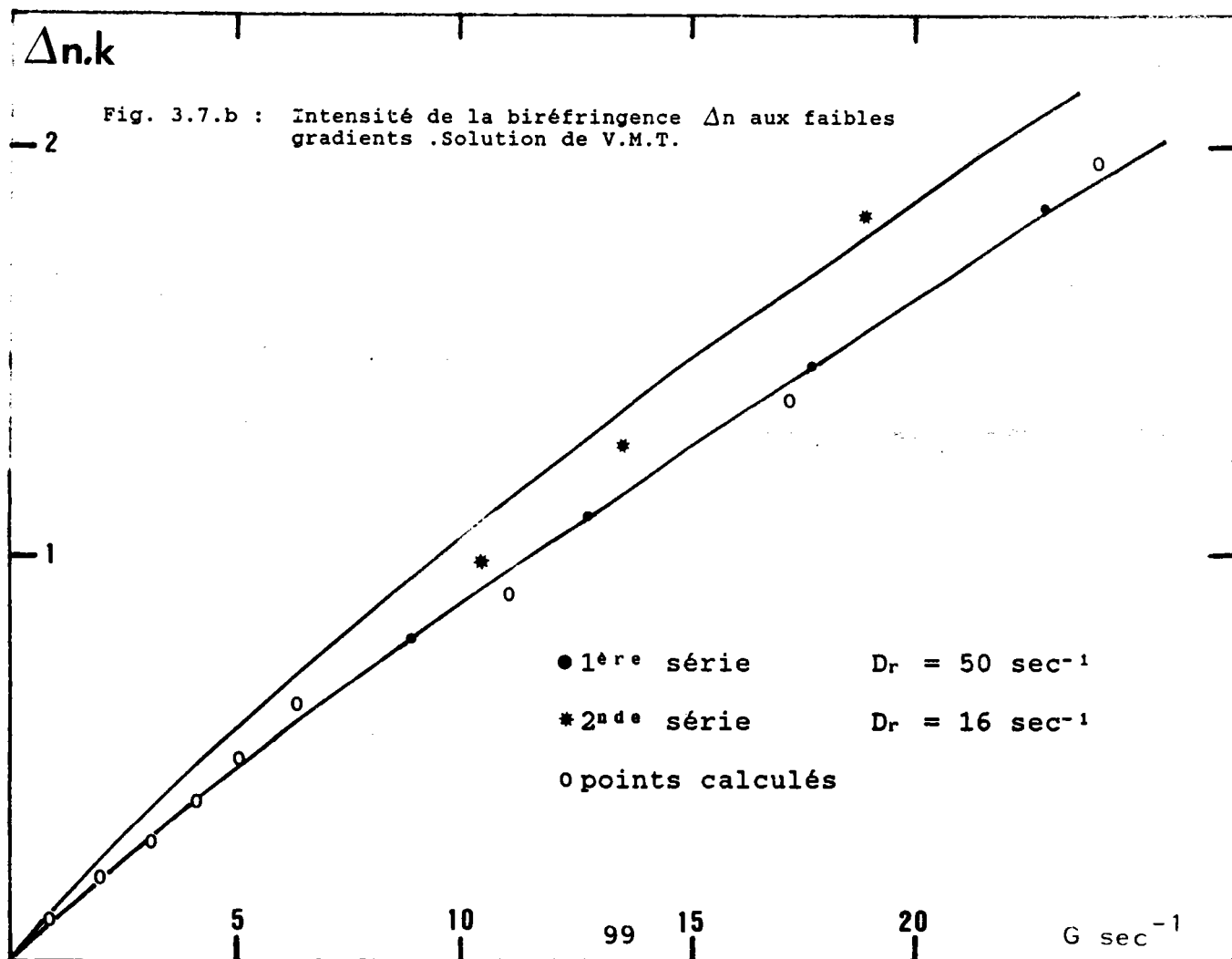
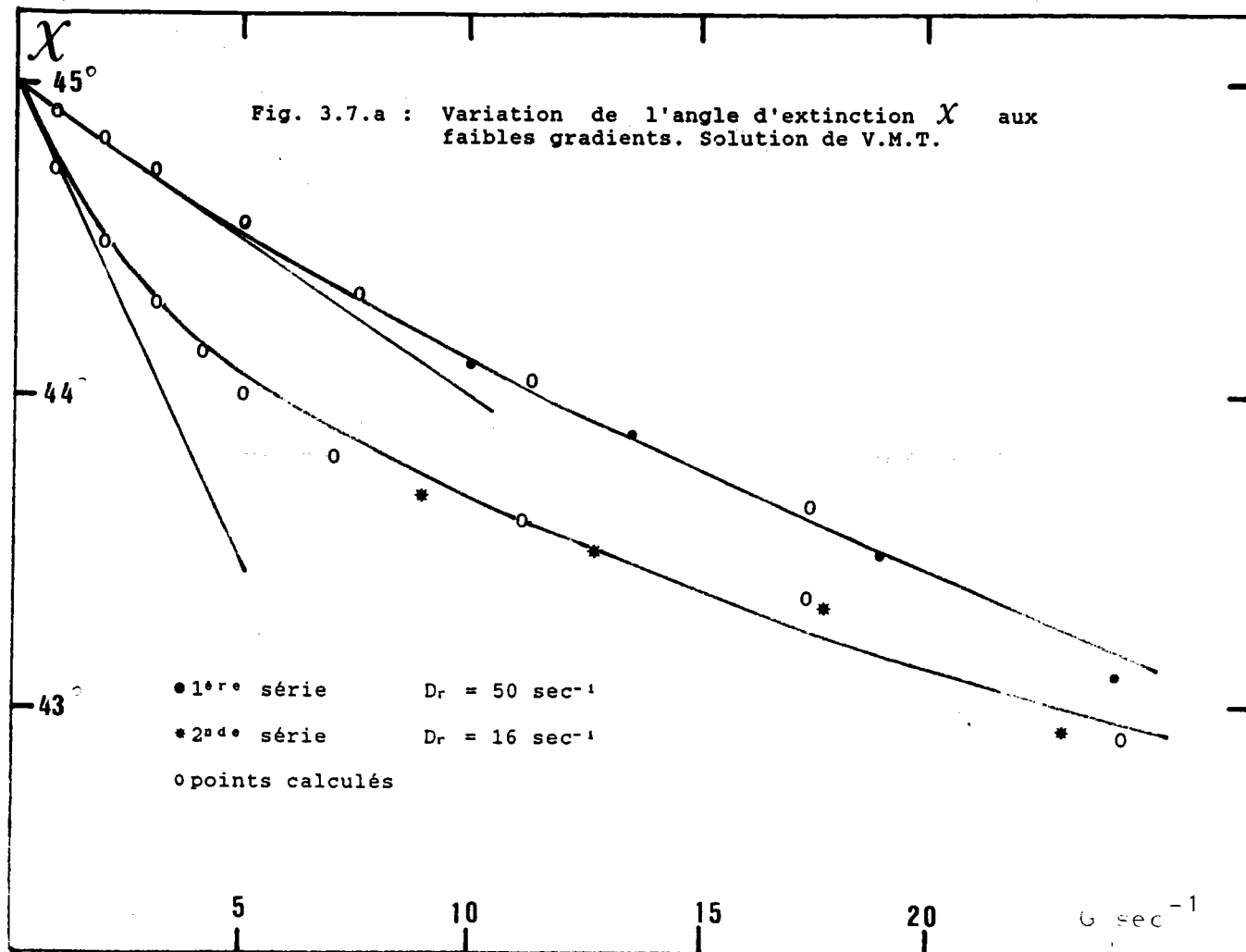
3.3.3 Solution de Virus de la Mosaïque du tabac

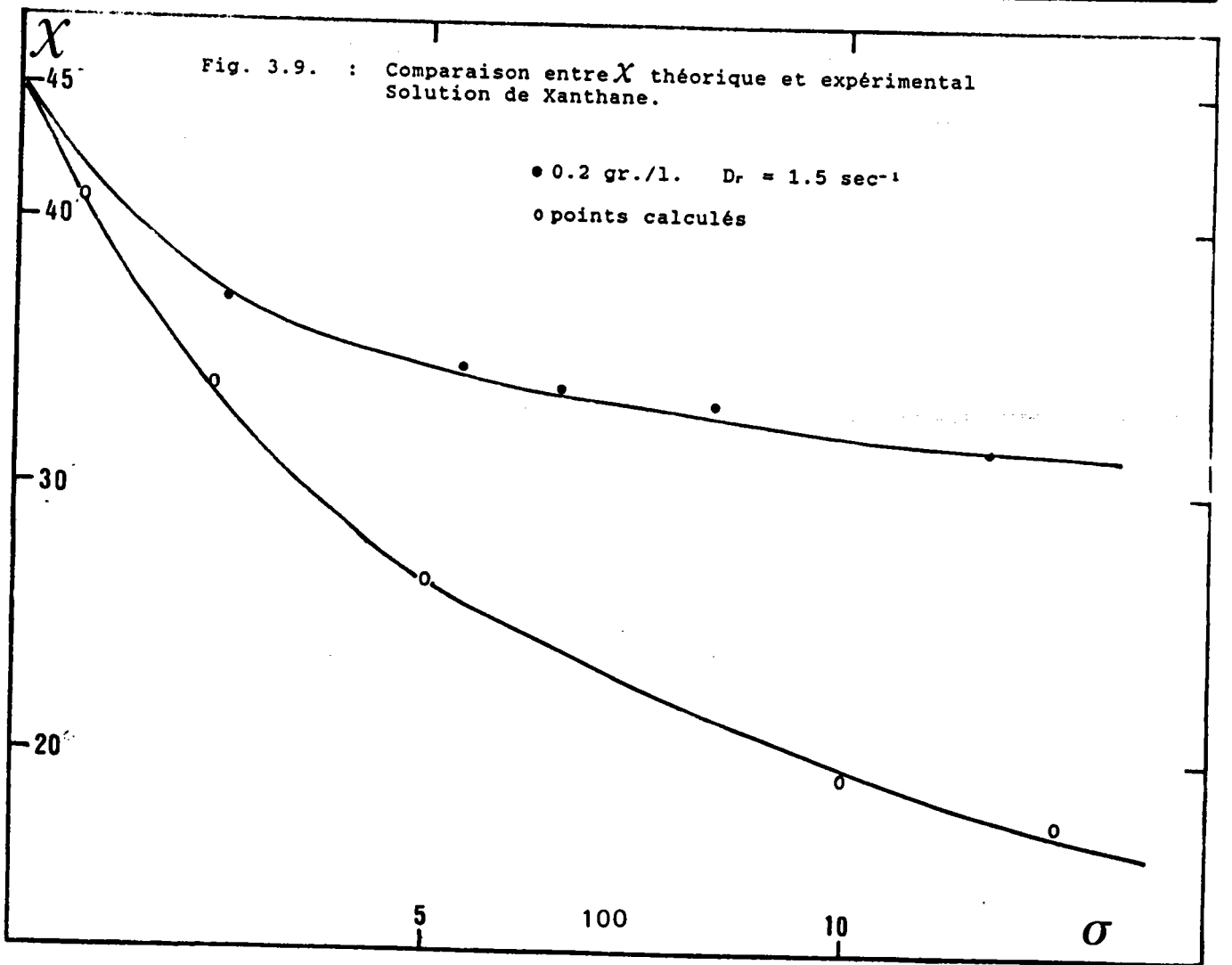
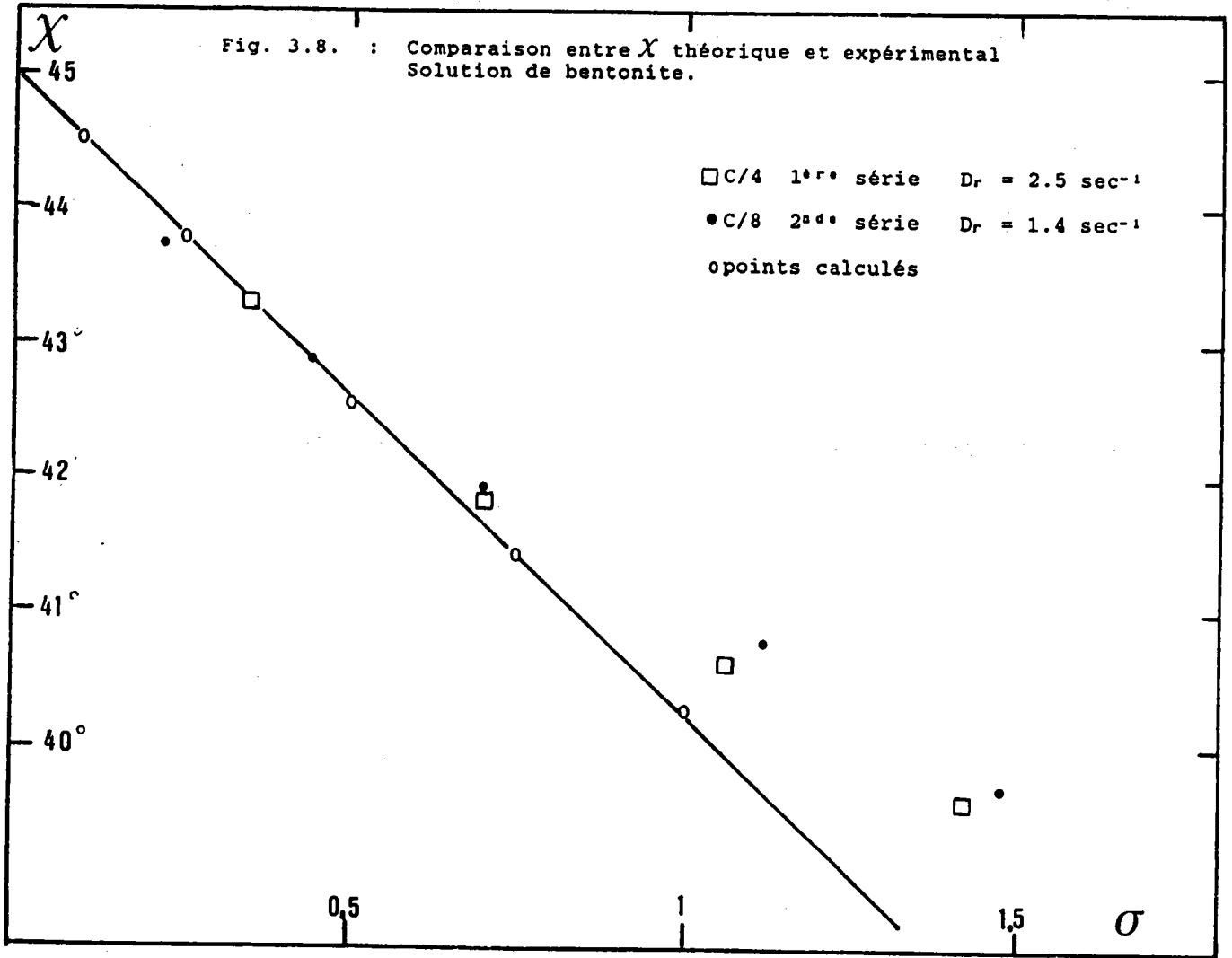
Deux séries d'essais distantes de quelques mois ont été réalisées à l'aide de la solution de V.M.T.

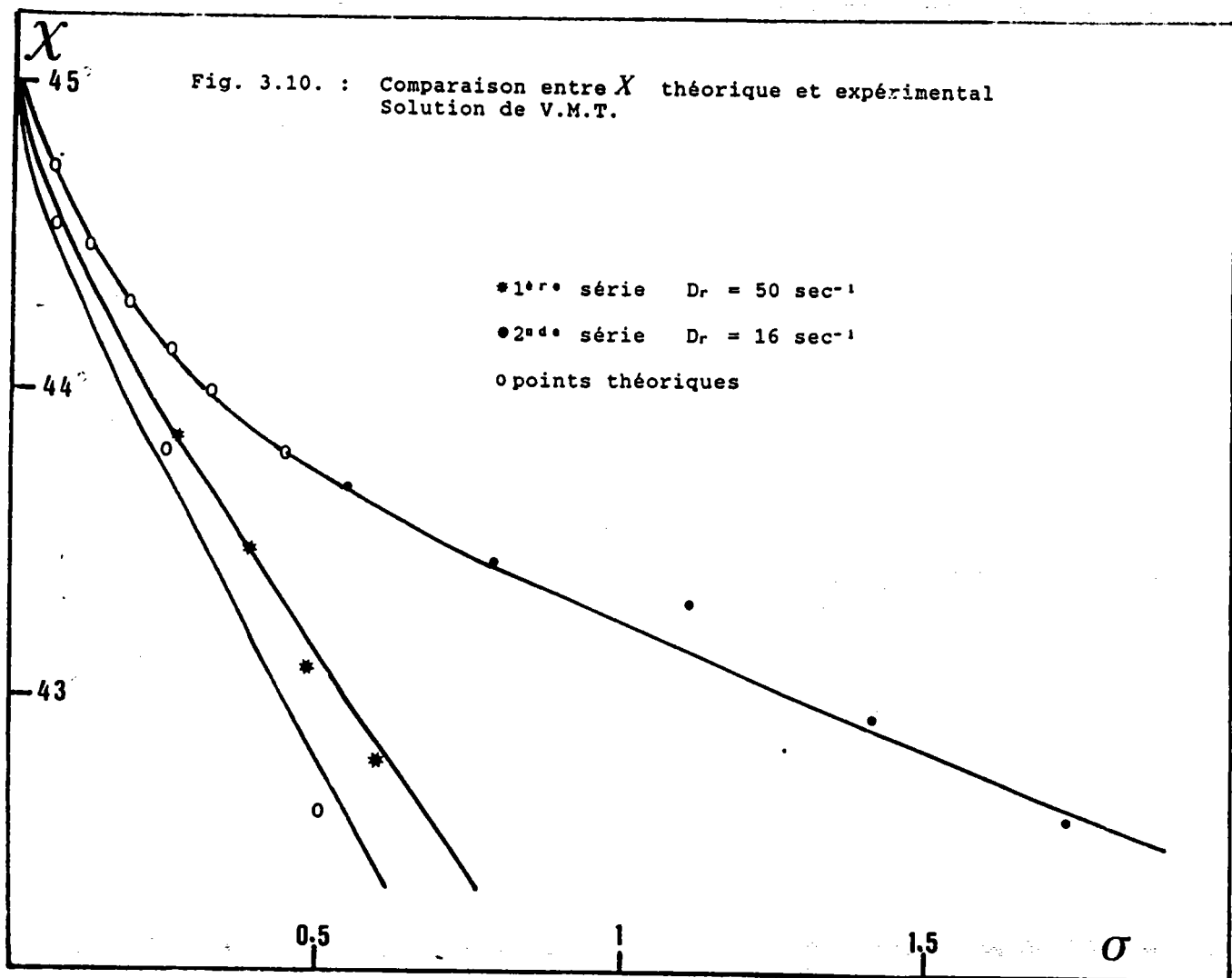
Pour chaque série une seule concentration c a été étudiée car nous ne disposons que de très peu de produit. Nous avons cependant bénéficié des résultats de R. Cressely [19] qui a montré que le régime dilué est atteint pour $c = 1 \text{ mg./l.}$

Les courbes représentées sur les figures (3.7.a) et (3.7.b) présentent également une partie interpolée par la méthode de Lagrange et, le coefficient de diffusion de rotation calculé pour G tendant vers zéro est:

Essai	Coefficient de diffusion
1 ^{ère} série	50 sec^{-1}
2 nd e série	16 sec^{-1}







On constate donc que les propriétés de la solution ont considérablement varié dans l'intervalle de temps séparant les deux séries de mesures; D_r a subi une diminution importante qui laisse à penser que les particules individuelles se sont groupées en amas plus volumineux qui s'orientent plus rapidement dans la champ.

Le calcul théorique de D_r , effectué dans l'approximation de l'ellipsoïde allongé conduit à une valeur de 330 sec^{-1} .

L'écart entre la valeur théorique et les résultats expérimentaux est donc très important.

3.3.4 Conclusions

L'orientation des particules par le champ hydrodynamique est d'autant plus aisée que la particule est grande et dissymétrique; les courbes $\chi(G)$ et $\Delta n(G)$ tracées aux faibles valeurs de G , rendent donc principalement compte des propriétés optiques conférées à la solution par les particules les plus grandes.

On peut néanmoins comparer les courbes expérimentales $\chi(\sigma)$ où $\sigma = G/D$ avec les résultats théoriques de Scheraga et al. [72] (Fig(3.8) (3.9) (3.10))

En ce qui concerne la solution de xanthane (Fig. 3.9) l'accord entre la courbe théorique et les résultats expérimentaux est décevant ; les raisons de ce désaccord sont certainement à rechercher dans la polydispersité des particules et dans le fait que la taille des particules dépasse largement la limite imposée par la théorie quasi-statique classique (plus grande dimension de la particule inférieure à la longueur d'onde de la lumière). Aux faibles valeurs de G , les points expérimentaux des solutions de bentonite et de V.M.T. série I sont assez proches des points théoriques.

La série II du V.M.T s'écarte notablement de la courbe théorique ce qui est conforme à ce que l'on pouvait attendre du fait de la diminution de D_r due au vieillissement de la solution.

3.4 Courbes expérimentales des variations de χ et Δn

Au chapitre premier , nous avons décrit la multiplicité des états que l'on peut créer suivant la manière d'initier l'écoulement dans la cellule ; aussi est-il nécessaire de bien préciser les conditions dans lesquelles les mesures ont été réalisées.

D'autre part , parmi les écoulements laminaires réalisables dans un domaine de gradient nous distinguerons trois régimes possibles

pour $\Omega < \Omega_{c1}$: écoulement de Couette

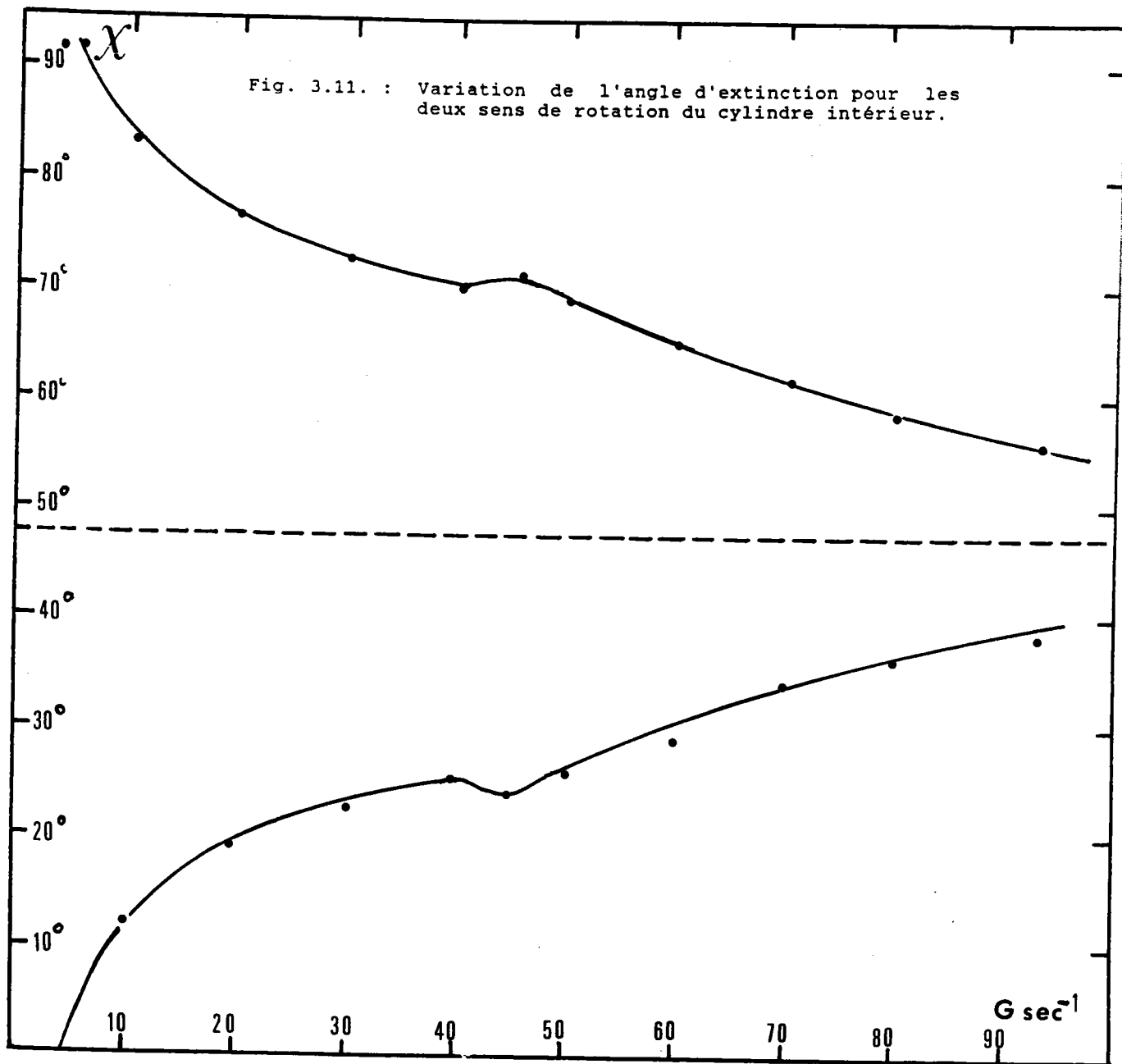
pour $\Omega_{c1} < \Omega < \Omega_{c2}$: tourbillons de Taylor

pour $\Omega > \Omega_{c2}$: tourbillons de Taylor ondulants

La vitesse angulaire Ω_1 du cylindre mobile est amenée lentement et graduellement à la valeur pour laquelle χ et Δn seront mesurées. L'écoulement ainsi obtenu est reproductible : le nombre de cellules de Taylor est toujours le même et leur épaisseur sensiblement égale à la largeur de l'espace annulaire.

Nous exposerons en premier lieu les résultats concernant les mesures de χ et Δn effectuées au centre de la cellule pour différentes valeurs du gradient , puis en différents points de l'entrefer pour différents gradients.

En régime d'écoulement de Taylor nous continuerons à repérer l'angle d'extinction par rapport à la direction qu'auraient les lignes de courant circonférentielles de l'écoulement de Couette au même gradient. Les deux branches des courbes $\chi(G)$ correspondant aux deux sens de rotation du cylindre intérieur restent en effet symétriques par rapport à la direction de l'écoulement circonférentiel lorsque le régime de Taylor est atteint.
(fig. 3.11)



3.4.1 Evolution de χ et Δn au centre de la cellule en fonction du gradient

a) Variation de l'angle d'extinction

Les résultats expérimentaux relatifs aux trois types de particules étudiées sont reportés sur les figures (3.12.a), (3.13.a), (3.14.a) .

En écoulement de Couette laminaire la forme des courbes $\chi(G)$ ne semble pas dépendre de la forme des particules du moins en ce qui concerne l'allure qualitative des courbes : diminue régulièrement lorsque G croît conformément à la théorie de Peterlin et Stuart. [33].

Pour une forme de particule donnée (V.M.T. et xanthane) , l'orientation dans la direction des lignes de courant est d'autant plus rapide que les particules sont grandes. Quant à la bentonite dont la forme est assimilable à un ellipsoïde aplati, les valeurs de l'angle χ à gradient donné sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus avec le Xanthane . Les coefficients de diffusion respectifs étant très voisins , ce résultat n'est a priori pas surprenant.

Lorsque la vitesse de rotation du cylindre mobile atteint et dépasse la vitesse angulaire critique Ω_c , à laquelle le régime des tourbillons de Taylor s'établit dans la cellule , les courbes $\chi(G)$ subissent une modification importante par rapport à la courbe obtenue pour des valeurs identiques du gradient mais correspondant encore au régime de Couette (entrefer plus petit). Ce fait expérimental concernant les solutions colloïdales de bentonite a déjà été observé par H.Wayland [10] mais n'a fait, à ce jour, l'objet d'aucune interprétation théorique.

La modification la plus importante a lieu pour la solution de bentonite pour laquelle l'angle χ croît à partir de Ω_{c1} , passe par un maximum puis décroît rapidement dans la direction de l'écoulement. Ce maximum qui se retrouve pour les mesures effectuées avec deux espaces annulaires d différents (2 et 1.5 mm.) est cependant moins prononcé et plus étalé lorsque d diminue.

Dans le cas des particules allongées ce maximum n'apparaît pas mais il semble plutôt et ceci et particulièrement perceptible dans le cas du V.M.T. que la courbe $\chi(G)$ présente un palier entre Ω_{c1} et une seconde valeur de Ω à partir de laquelle la décroissance rapide de χ s'amorce (Fig.3.14.a).

En ce qui concerne le xanthane, ce palier ne semble pas exister et le début de la rupture de pente est imprécis; on constate cependant une similitude de comportement entre le V.M.T. et le xanthane pour $G > G_c$ et $d = 2$ mm.: on note en effet, une décroissance sensiblement linéaire de χ en fonction de G tandis que dans le même domaine de gradient, l'angle d'extinction de la solution de bentonite tend vers un palier (Fig. 3.12.a).

L'effet de la viscosité plus grande de la solution de Xanthane se traduit par un accroissement de la valeur du gradient critique.

b) Variation de l'intensité de la biréfringence

Les courbes correspondantes sont reportées sur les figures (3.12.b), (3.13.b) et (3.14.b).

(Rappelons que Δn est multiplié par le coefficient k qui vaut $(2.04 \cdot 10^7)$).

Pour les différents entrefers, les portions de courbes correspondant au régime laminaire sont tout à fait classiques et, à gradient égal les points obtenus pour les différentes épaisseurs de l'espace annulaire se regroupent de manière satisfaisante au

voisinage d'une seule courbe.

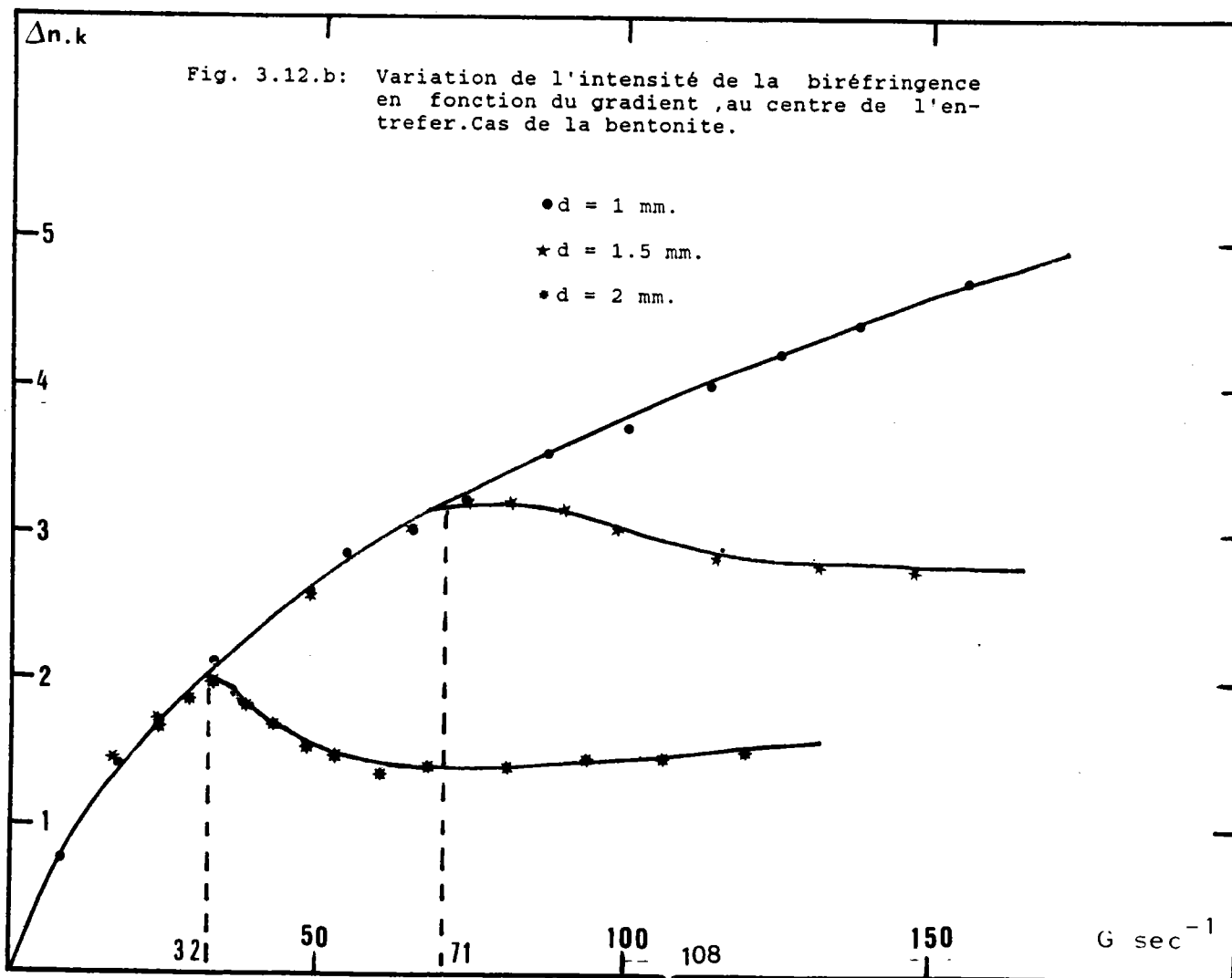
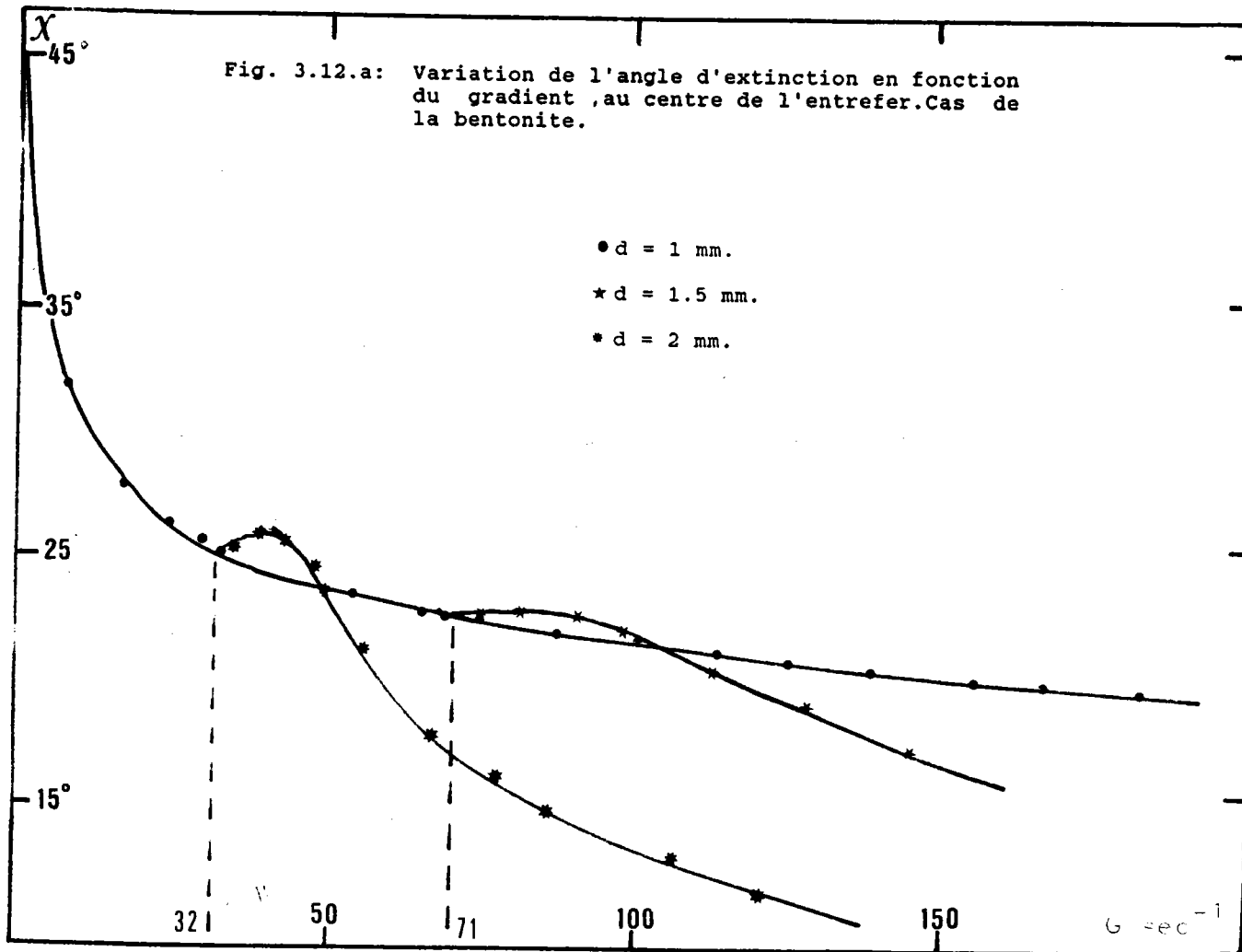
L'apparition des tourbillons de Taylor se manifeste nettement pour les trois types de particule : on note une diminution catastrophique de Δn à partir de G_c par rapport à la valeur que l'on obtiendrait en régime de Couette .Ensuite, lorsque G croit encore on semble atteindre une valeur de saturation du moins pour la bentonite et le V.M.T

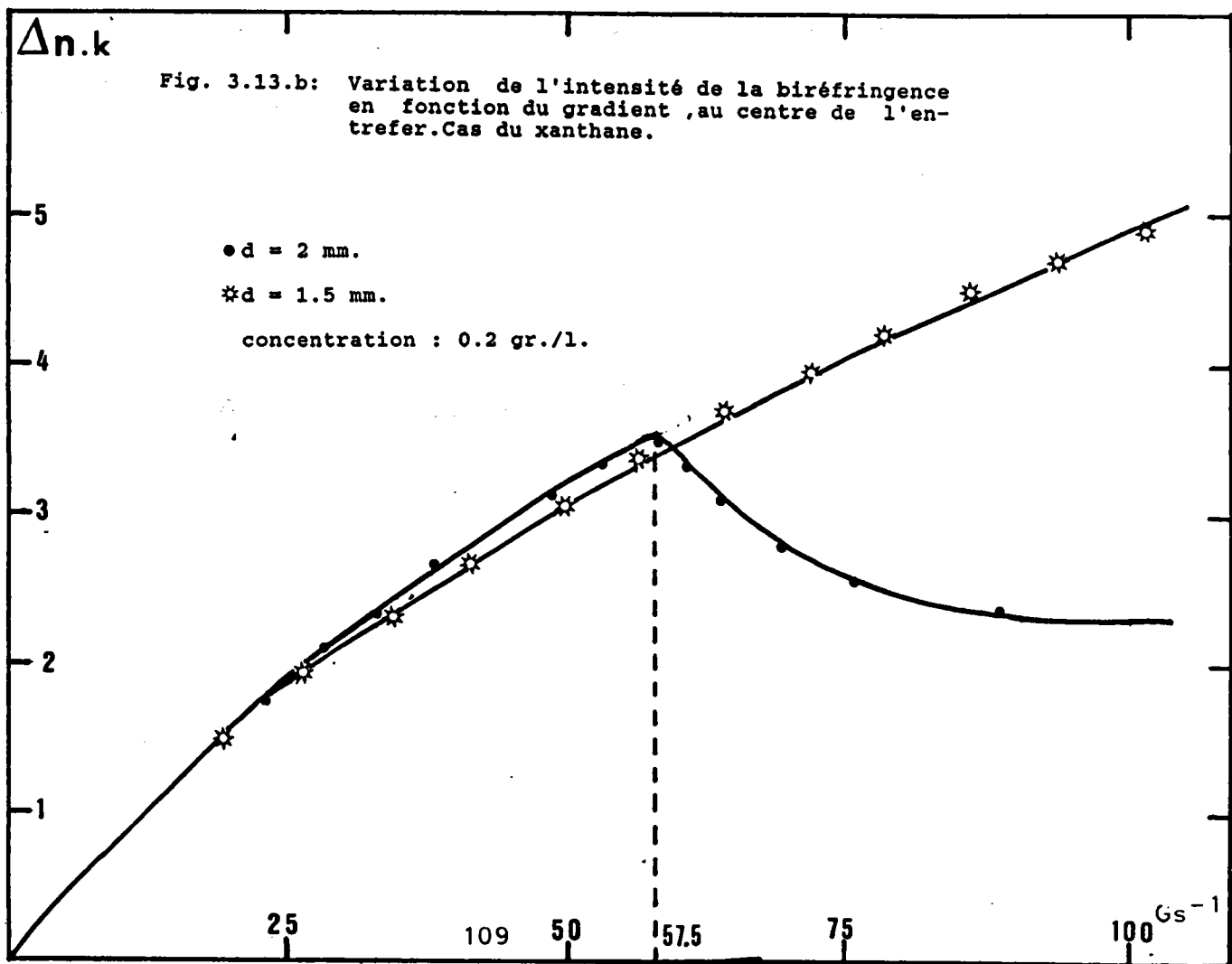
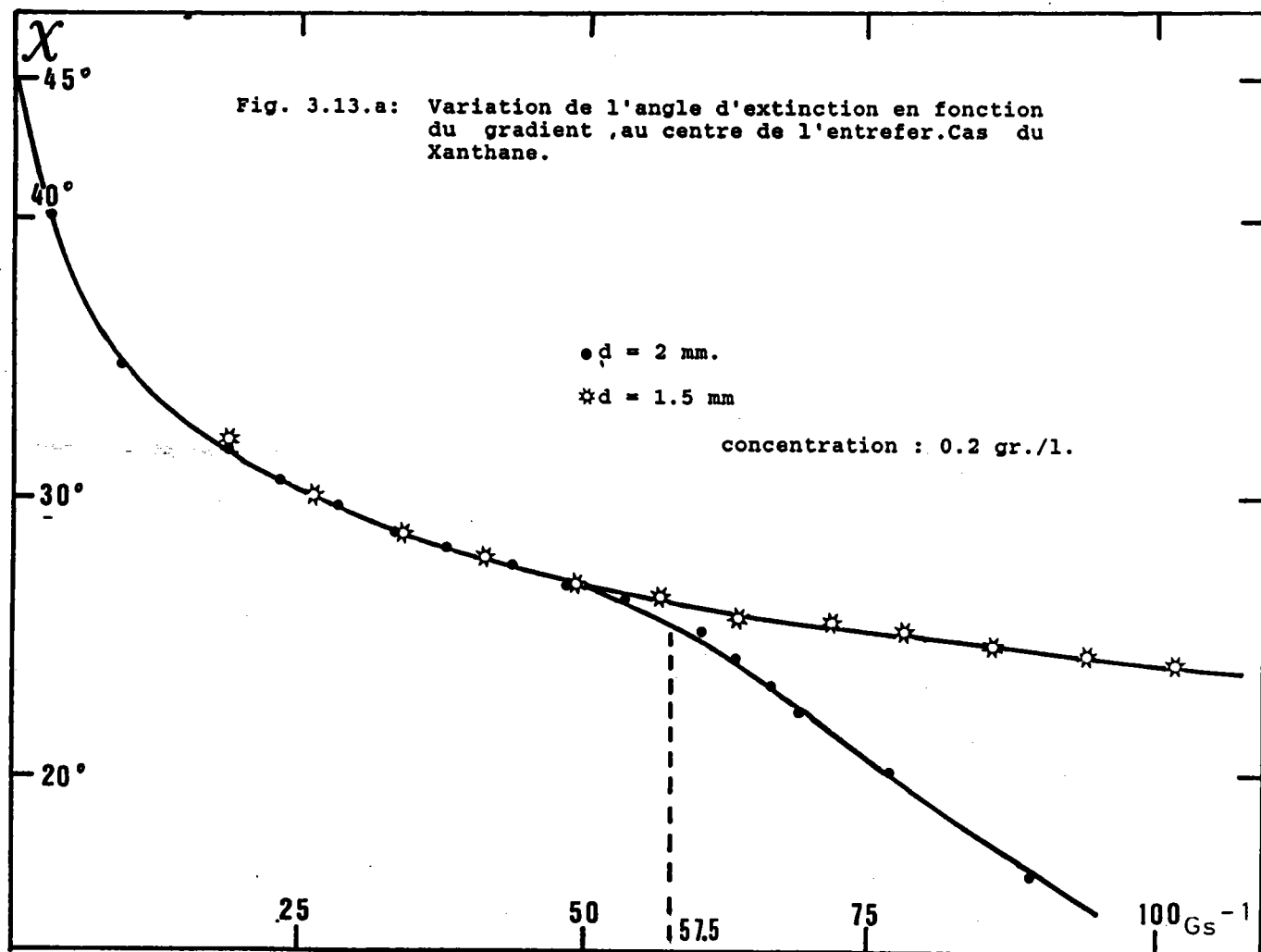
Cette diminution de Δn au centre de la cellule s'explique aisément en admettant que l'orientation moyenne des particules dans une direction est moins bien réalisée en régime de Taylor qu'elle ne l'est en écoulement de Couette par suite de l'existence des composantes radiales et axiales u et v de la perturbation. Par contre, la diminution correspondante de χ après G_c s'interprète plus difficilement. A priori une décroissance de χ dans le sens de l'écoulement traduit une meilleure orientation du milieu.

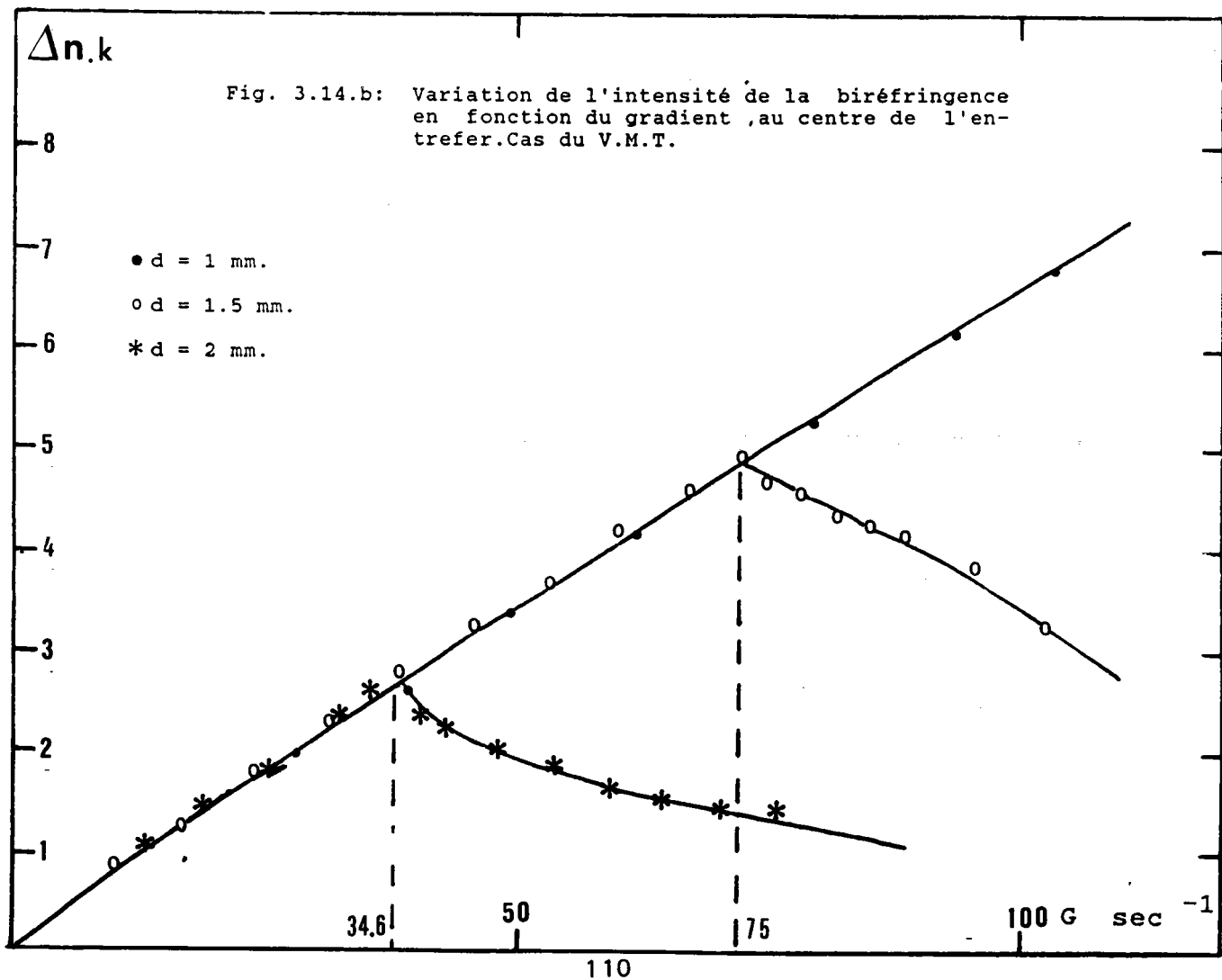
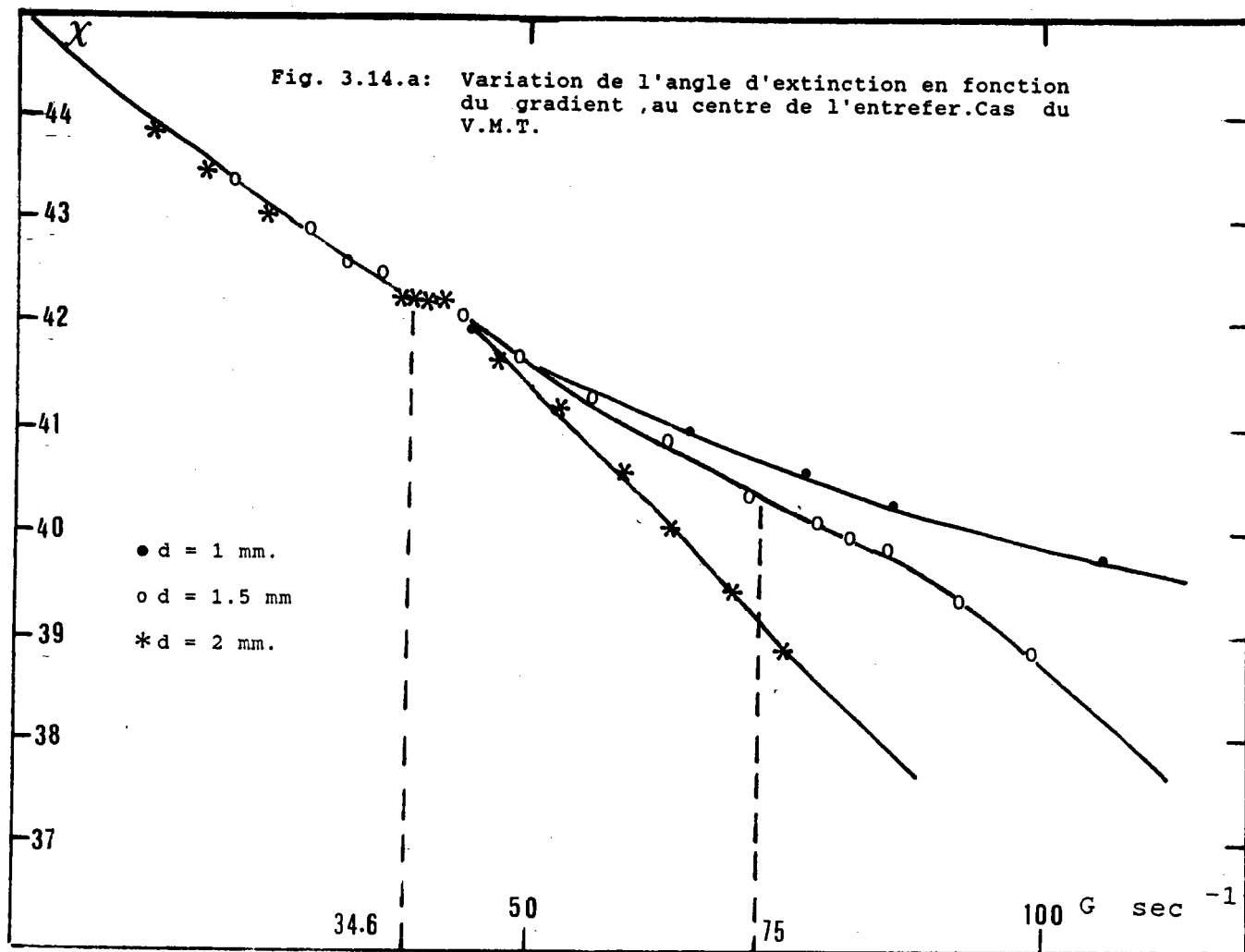
Mais en fait, la direction de la ligne de courant qui sert de référence pour la détermination de χ change pour chaque valeur du gradient supérieure au gradient critique ; néanmoins les courbes $\chi(G)$ pour $G > G_c$ restent parfaitement symétriques par rapport à l'axe déterminé à l'aide des mesures correspondant au régime de Couette ; on conserve ,de ce fait , la même référence pour définir l'angle d'extinction quel que soit l'écoulement.

c) Conclusion

La comparaison des courbes $\chi(G)$ pour les deux formes de particules allongées(xanthane et V.M.T.) et aplaties (bentonite) laisse apparaître un comportement différents en fonction de la forme des particules en solution.







De ce fait il semble qu'il soit possible de déterminer qualitativement la forme d'une particule en solution à partir du simple examen des variations de l'angle d'extinction au voisinage de G_c . Les ruptures de pente dans les courbes $\Delta n(G)$ sont suffisamment abruptes pour permettre une détermination quantitative du gradient critique G_c correspondant à un espace annulaire donné. Les résultats sont regroupés dans le tableau suivant:

d mm	bentonite	V.M.T.	Xanthane	Valeurs théoriques pour l'eau
2	32 s ⁻¹	34 s ⁻¹	57.5 s ⁻¹	35.8 s ⁻¹
1.5	71 s ⁻¹	75 s ⁻¹	117 s ⁻¹	73.8 s ⁻¹

Pour les deux solutions (bentonite et V.M.T) dont la viscosité est très proche de celle de l'eau ,l'accord avec les valeurs théoriques est très satisfaisant.

3.4.2 Evolution de χ et de Δn en fonction de la position

 dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient

Les résultats apparaissent sur les courbes (3.15-16-17 a) pour ce qui concerne l'évolution de χ et (3.15-16-17 b) pour l'intensité de la biréfringence. Un maximum de onze points de mesure a pu être atteint dans l'espace annulaire de 2 mm. ; on admet, pour la représentation graphique que les grandeurs mesurées représentent les propriétés du point central du faisceau lumineux de 0.3 mm. de diamètre.

a) Variation de l'angle d'extinction

D'une manière générale et pour les trois types de particules , dans le domaine des faibles gradients (régime laminaire) l'angle d'extinction croît lorsque le point de mesur se déplace du bord mobile vers le cylindre fixe.

Le gradient ayant pour expression :

$$G = - \frac{\Omega_1 R_1^2}{R_2^2 - R_1^2} \left[1 + \frac{R_2^2}{r^2} \right]$$

le résultat précédent n'est pas surprenant puisque G diminue à mesure que l'on s'éloigne du cylindre mobile (r croît) et , par conséquent l'orientation des particules est moindre près du cylindre fixe.

De plus l'espace annulaire d est petit devant les rayons R_1 et R_2 , un développement au 1^{er} ordre montre que G est proportionnel à la distance x du point de mesure à la paroi mobile .

$$(r = R_1 + x)$$

Compte tenu des dimensions géométriques de la cellule , l'application de la formule précédente donnant G montre que des variations du gradient de l'ordre de 4 à 5 %/ par rapport à la valeur au centre de l'entrefer sont tout à fait plausibles.

En régime laminaire l'expression de χ s'écrit :

$$\chi = \frac{\pi}{4} - \frac{G}{12D_r} \left[1 - \frac{\sigma^2}{108D_r^2} [1 + \dots] \right]$$

il s'ensuit donc que χ est sensiblement proportionnel à x aux faibles valeurs de G comme le montrent les courbes relatives au régime laminaire sur les figures (3.15-16-17 a).

Les différences notables apparaissent lorsque la première transition est atteinte.

A mesure que G croît, les courbes $\chi(x)$ s'incurvent en prenant l'aspect de paraboles dont la concavité est tournée vers les faibles valeurs de l'angle χ .

Les résultats obtenus avec la solution de xanthane semblent ne pas suivre ce schéma puisque les courbes présentent directement un minimum au voisinage du centre de l'entrefer alors que ce stade n'apparaît pour la bentonite et le V.M.T. qu'après la forme parabole.

Pour des valeurs de G encore supérieures les courbes subissent une transformation curieuse en forme de dos d'âne avec deux maxima de part et d'autre d'un minimum approximativement central.

Contrairement à la forme parabolique qui apparaît d'une manière soudaine (particulièrement dans le cas de la bentonite) cette déformation s'amplifie de manière progressive et ne semble pas liée à l'apparition de la seconde transition (onde azimutale). Au voisinage des deux parois et quel que soit la valeur du gradient $> G_c$, l'angle d'extinction pour la bentonite et le V.M.T. est toujours inférieur à la valeur au centre, tandis que le xanthane se comporte de manière opposée.

Les dimensions importantes des molécules ainsi que les propriétés viscoélastiques sont certainement à l'origine de ce comportement singulier.

b) Variation de l'intensité de la biréfringence

En ce qui concerne Δn , les trois types de particules présentent un comportement assez similaire.

En écoulement de Couette Δn croît vers la paroi fixe conformément aux conclusions émises en a.

A la transition laminaire - tourbillons de Taylor ,les courbes $\Delta n(x)$ prennent la forme d'une parabole de concavité tournée vers le haut.La biréfringence croit notablement au voisinage des parois alors que l'on note une diminution importante au voisinage du centre.

c) Conclusion

L'interprétation qualitative des courbes tracées pour les solutions de bentonite et de V.M.T. permet de tirer les conclusions suivantes.

Déplaçons-nous du bord mobile vers la paroi fixe le long d'une courbe parabolique: partant d'une faible valeur de χ traduisant une forte orientation des particules ,la biréfringence est élevée , puis, à mesure que l'on approche du centre ,elle décroît ,passe par un minimum correspondant au maximum de χ puis décroît à nouveau .L'effet du régime d'écoulement de Taylor est d'accroître le gradient au voisinage des deux parois : les variations de χ et Δn sont conformes à cette hypothèse.

Cependant, pour une valeur de G légèrement supérieure ,comme nous l'avons vu $\chi(x)$ est considérablement modifié tandis que $\Delta n(x)$ conserve toujours une forme parabolique : il semble donc que l'intensité de la biréfringence Δn soit plutôt sensible à un gradient moyen obtenu par superposition des deux écoulements tandis que l' angle d'extinction est plus fortement conditionné par la structure détaillée de la perturbation apportée par les tourbillons de Taylor.

Remarquons également que les maxima des courbes $\chi(x)$ correspondent sensiblement aux points communs des courbes $\Delta n(x)$.L'existence de ce point commun implique qu'il existe dans l'espace annulaire deux nappes cylindriques où l'écoulement de Taylor

n'influe pas sur l'intensité de la biréfringence puisque l'ordonnée de ce point est pratiquement identique à celle de la dernière courbe tracée en régime laminaire.

Ces deux nappes existent également dans le cas du Xanthane pour lequel nous avons vu que les courbes $\chi(x)$ ne présentaient pas de maxima.

Le chapitre suivant va à présent tenter d'apporter une confirmation théorique à ces hypothèses.

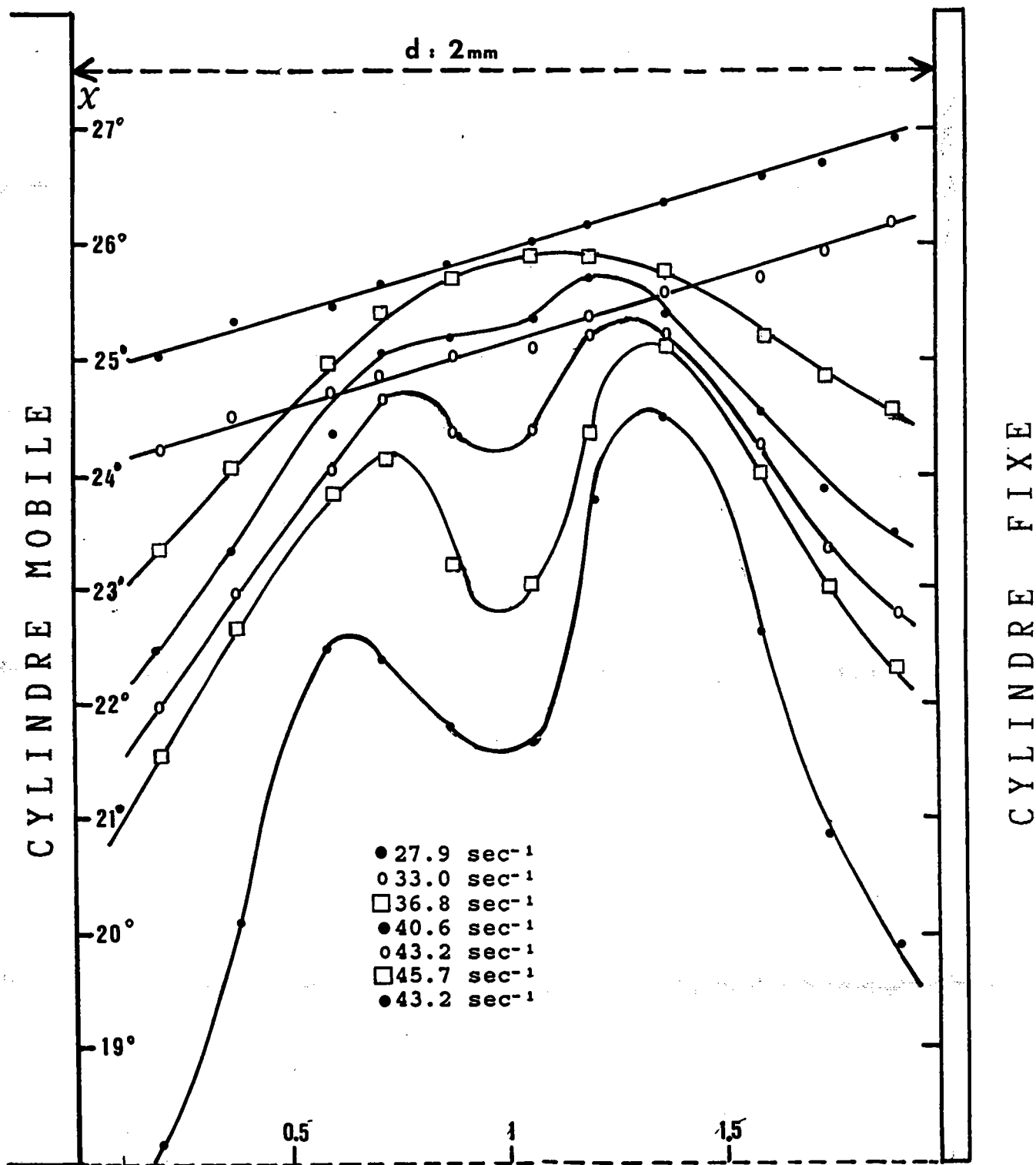


Fig. 3.15.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient. Bentonite.

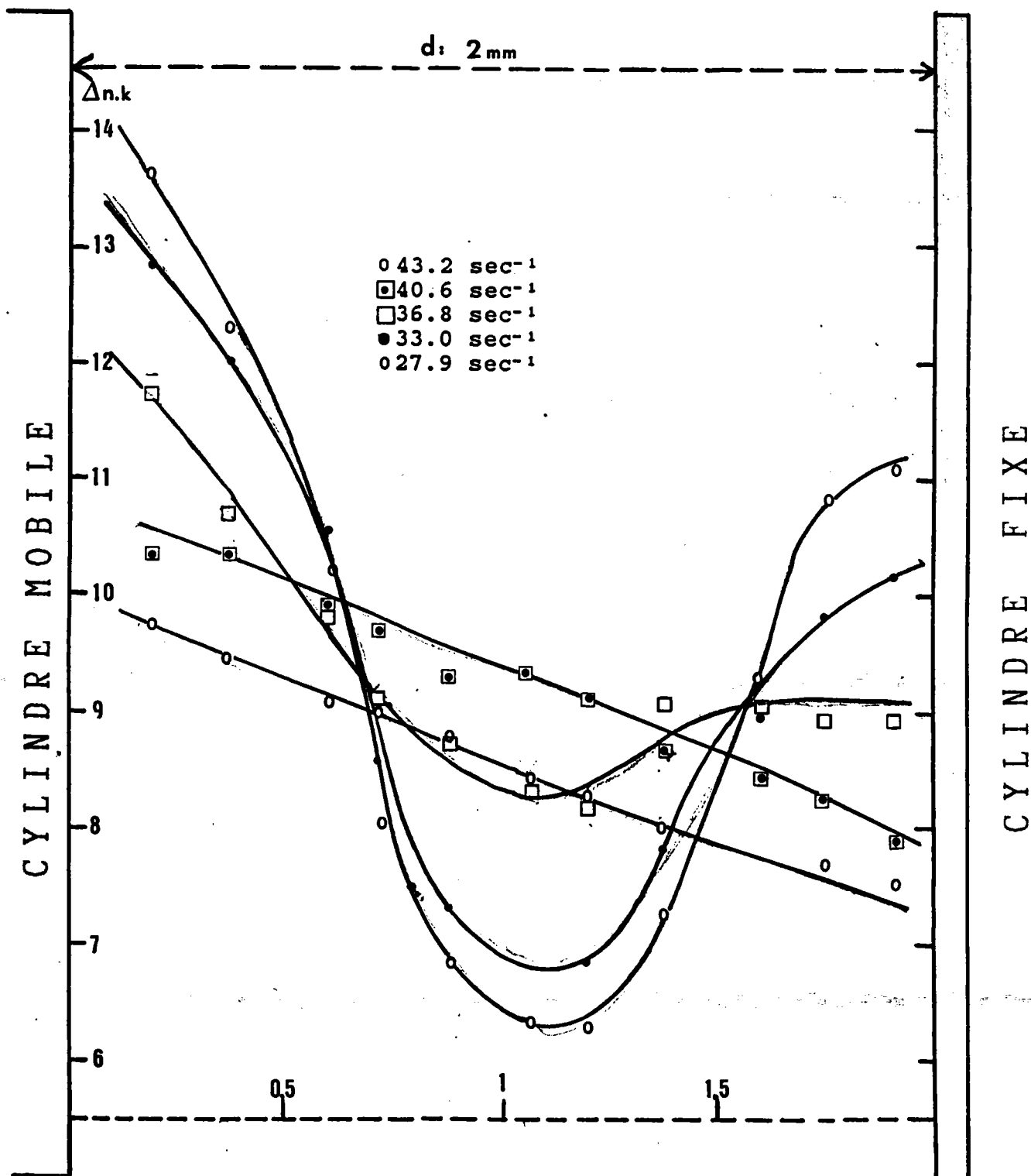


Fig. 3.15.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient. Bentonite.

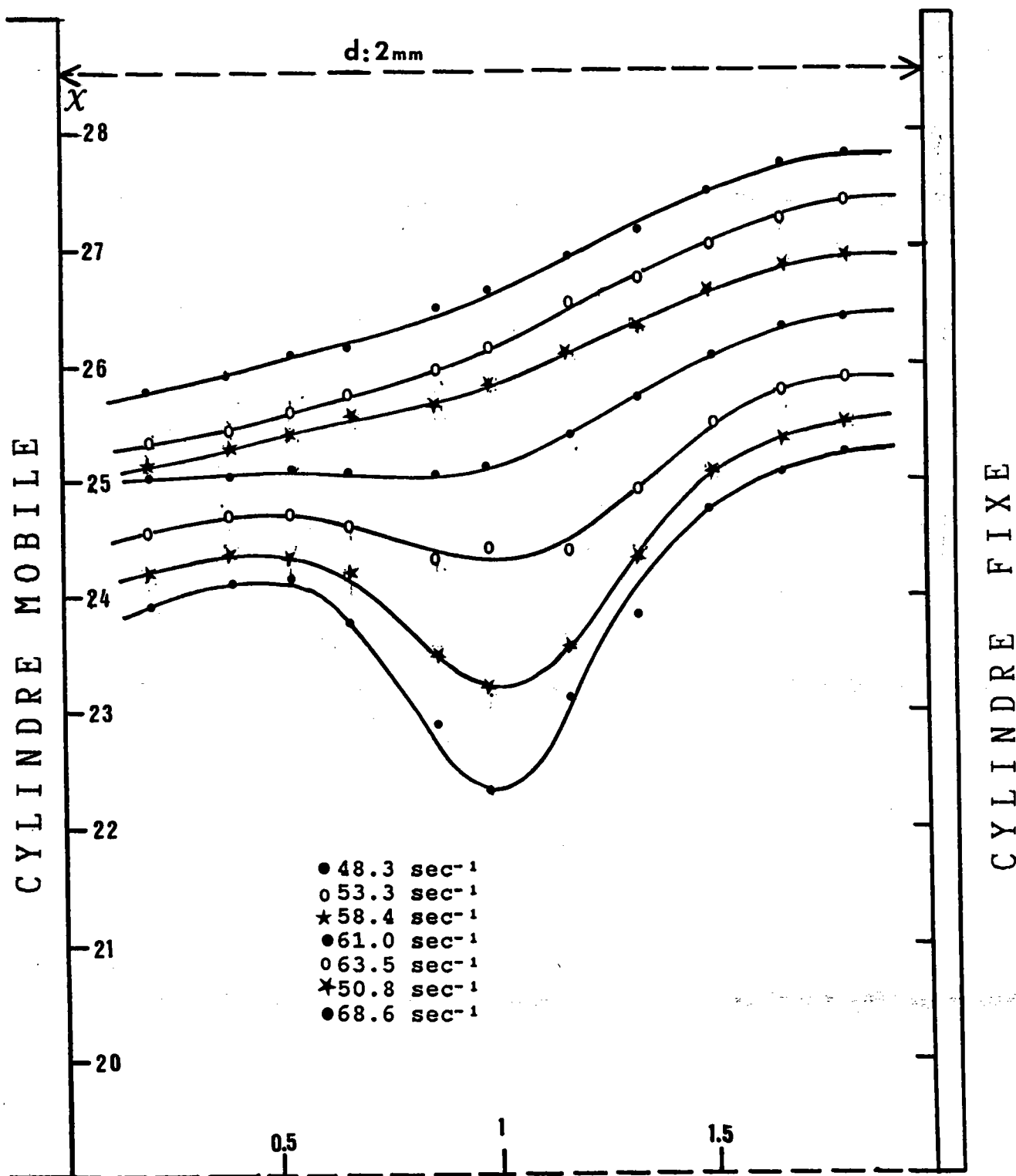


Fig. 3.16.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient. Xanthane.

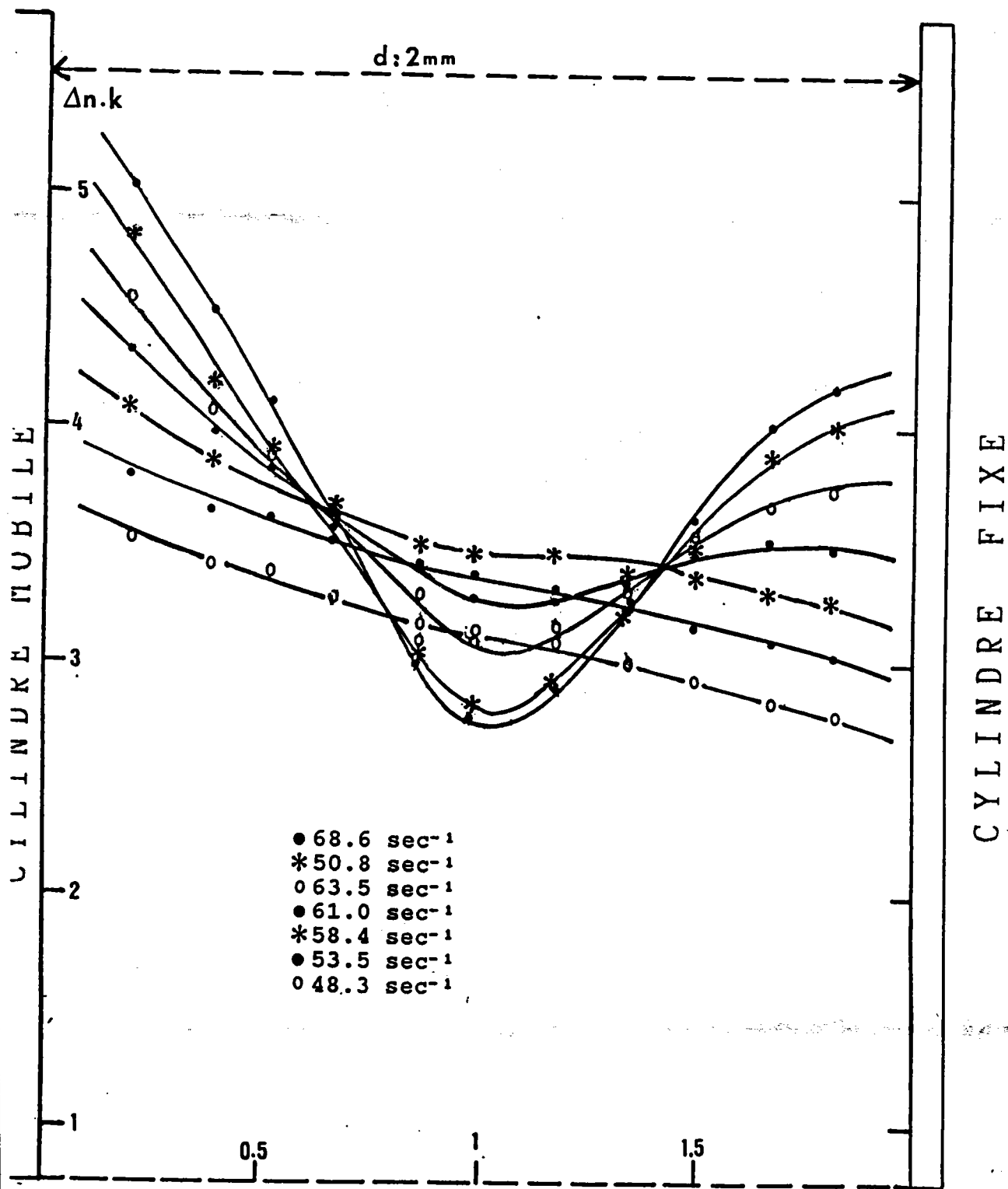


Fig. 3.16.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient.Xanthane.

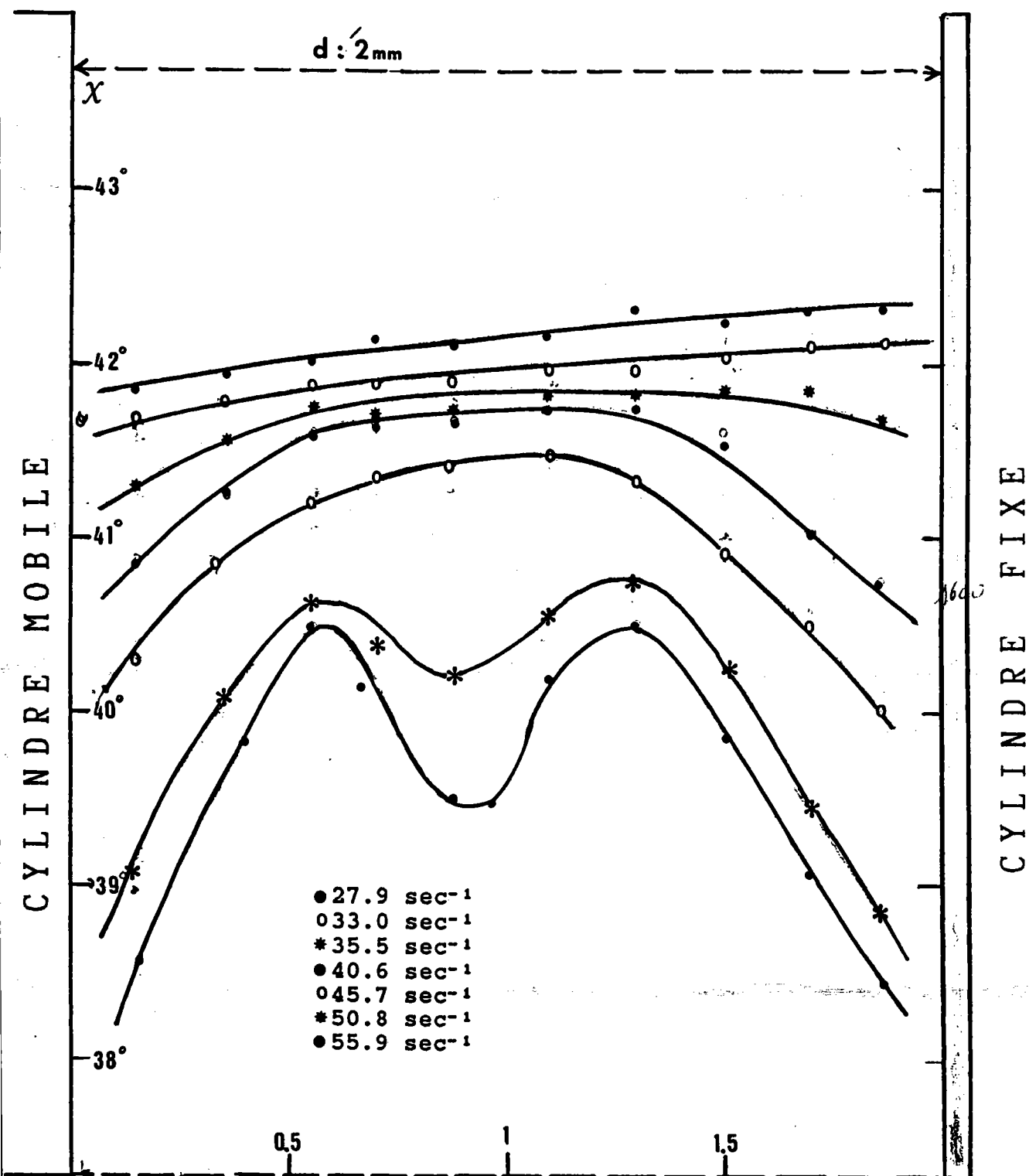


Fig. 3.17.a: Variation de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient. V.M.T.

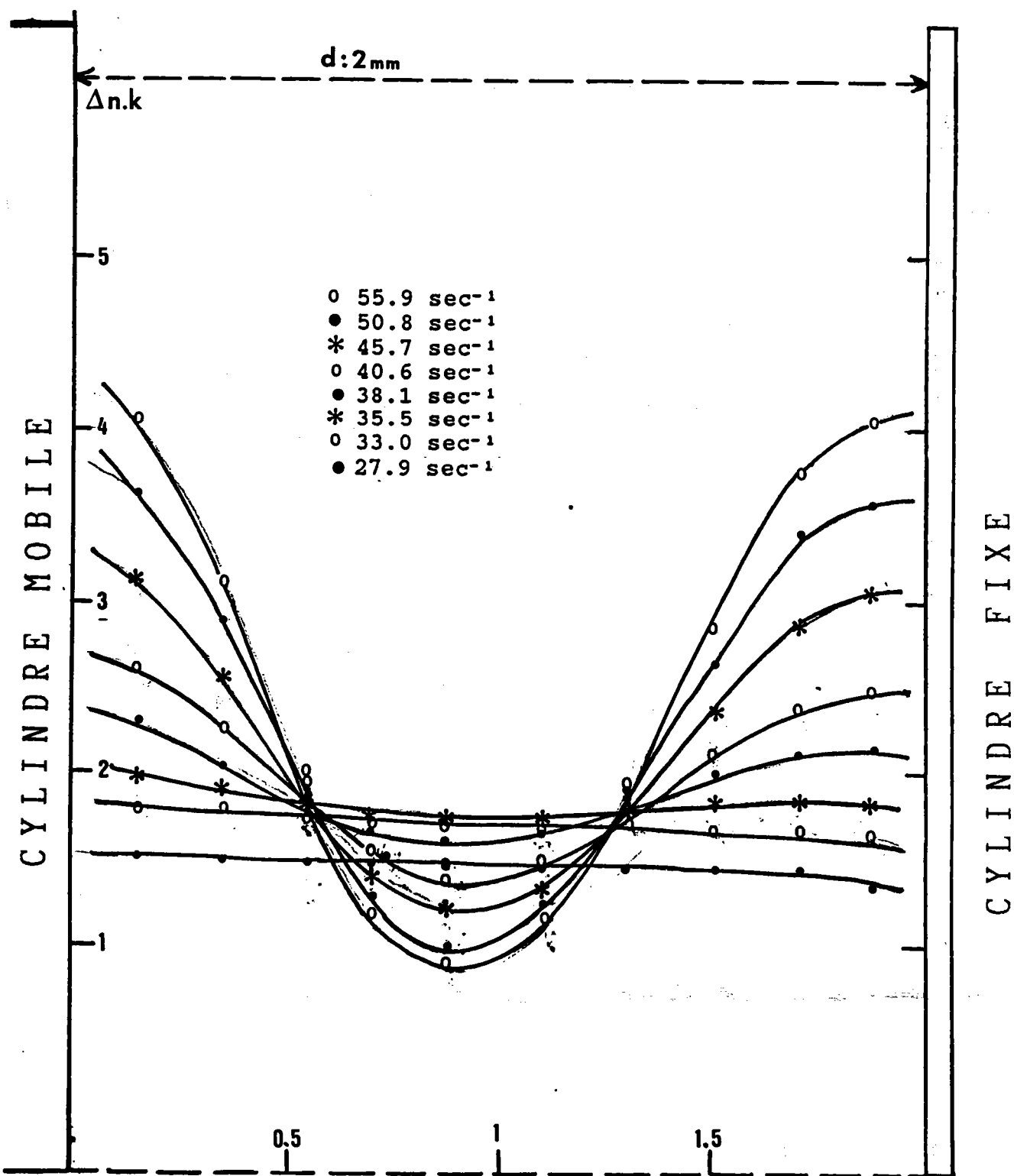


Fig. 3.17.b: Variation de l'intensité de la biréfringence en fonction de la position dans l'entrefer pour différentes valeurs du gradient. V.M.T.

CHAPITRE IV .

INTERPRETATION THEORIQUE DES COURBES EXPERIMENTALES

En solution dans un liquide en écoulement, des particules anisodiamétriques que l'on suppose rigides, sont soumises à deux actions antagonistes : l'action du champ hydrodynamique qui tend à orienter les particules dans le sens de l'écoulement et l'action du mouvement brownien qui tend à briser cet ordre .

Pour une vitesse d'écoulement suffisante, le premier effet est prépondérant et il en résulte une orientation moyenne des particules dans une direction donnée rendant ainsi la solution optiquement anisotrope . Les grandeurs optiques qui caractérisent ce milieu sont l'angle d'extinction χ et la biréfringence Δn .

χ et Δn sont directement reliés aux permittivités principales moyennes de la solution dont le calcul implique la connaissance des permittivités principales d'une particule et de F : fonction de distribution des orientations de la particule .

F est elle-même solution de l'équation générale

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \nabla \cdot (F \vec{\omega}) = D_r \Delta F$$

dans laquelle interviennent la vitesse angulaire ω de la particule due au champ hydrodynamique et le coefficient de diffusion de rotation D de la particule .

Après avoir déterminé le champ hydrodynamique en tout point de l'entrefer de la cellule de Couette, on calculera la vitesse angulaire $\vec{\omega}$ de la particule dans l'écoulement ; puis à l'aide de l'équation précédente on s'efforcera de déterminer F .

Les hypothèses simplificatrices suivantes seront nécessaires : le solvant est un milieu continu, ceci implique que les particules de solvant soient petites devant celles du soluté; les particules suivent exactement le mouvement du fluide; la concentration est suffisamment faible pour négliger les interactions .

En ce qui concerne le problème optique, on admettra la coïncidence entre les axes optiques et géométriques de la particule; la plus grande dimension de la particule doit être inférieure à la longueur d'onde de la lumière de sorte que l'action du champ électrique se traduise par l'apparition de dipôles et non de multipôles .

Le milieu est purement biréfringent (pas d'activité optique, ni d'absorption différentielle) .

Moyennant ces hypothèses, on calculera les permittivités principales d'une particule puis le tenseur moyen des permittivités du milieu .

Δn et $\text{tg} 2\chi$ en découleront naturellement .

4.1 CALCUL DU CHAMP DES VITESSES

4.1.1 Equations du mouvement .

En un point d'un fluide visqueux incompressible en écoulement, la vitesse $\vec{v}$ obéit l'équation de Navier-Stokes :

$$\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} = - \frac{1}{\rho} \nabla P + \nu \Delta \vec{v}$$

et à l'équation de continuité :

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0$$

avec P , ρ , ν respectivement, la pression au sein du liquide, la masse volumique et la viscosité cinématique du fluide .

A ces équations, s'ajoute la condition de non-glissement du liquide sur les parois de la cellule . Il s'ensuit que la vitesse $\vec{v}$ est nulle sur les parois fixes et sur une surface mobile, égale à la vitesse de cette surface .

Compte tenu de la symétrie cylindrique de la cellule de Couette les composantes de ces équations s'écrivent :

$$\frac{\partial v_r}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) v_r - \frac{v_\theta^2}{r} = - \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left(\Delta v_r - \frac{2v_\theta}{r^2} \frac{\partial v_r}{\partial \theta} - \frac{v_r}{r^2} \right)$$

$$\frac{\partial v_\theta}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) v_\theta + \frac{v_r v_\theta}{r} = - \frac{\partial p}{r \partial \theta} + \nu \left(\Delta v_\theta + \frac{2v_r}{r^2} \frac{\partial v_r}{\partial \theta} - \frac{v_\theta}{r^2} \right)$$

$$\frac{\partial v_z}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) v_z = - \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \Delta v_z$$

avec $\Delta = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{\partial}{r \partial r} + \frac{\partial^2}{r^2 \partial \theta^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$

Dans le même système de coordonnées l'équation de continuité devient :

$$\frac{\partial v_r}{\partial r} + \frac{v_r}{r} + \frac{\partial v_z}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_\theta}{\partial \theta} = 0$$

Une méthode de résolution de ces équations a été développée par Taylor [4] et plus tard par Chandrasekar [51] : la solution stationnaire d'un écoulement initial étant connue, on suppose que l'écoulement tridimensionnel qui apparaît lorsque la vitesse angulaire du cylindre mobile atteint la valeur critique, résulte de la superposition d'une petite perturbation à l'écoulement primitif sous-jacent .

A la composante tangentielle V de l'écoulement laminaire s'ajoute un petit incrément u_θ et, de même, les composantes radiales et axiales, nulles en écoulement laminaire deviennent u_r et u_z .

Ces incréments sont supposés suffisamment petits pour que les produits de ces incréments et de leurs dérivées ainsi que les puissances (supérieures à 1) puissent être négligés et l'on obtient ainsi le système d'équations linéaires suivant :

$$\frac{\partial u_r}{\partial t} - \frac{2V}{r} u_\theta = - \frac{\partial p}{\partial r} + \nu \left(\frac{\partial^2 u_r}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{\partial^2 u_r}{\partial z^2} - \frac{u_r}{r^2} \right)$$

$$\frac{\partial u_\theta}{\partial t} + \left(\frac{\partial V}{\partial r} + \frac{V}{r} \right) u_r = \nu \left(\frac{\partial^2 u_\theta}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_\theta}{\partial r} + \frac{\partial^2 u_\theta}{\partial z^2} - \frac{u_\theta}{r^2} \right)$$

$$\frac{\partial u_z}{\partial t} = - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \nu \left(\frac{\partial^2 u_z}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_z}{\partial r} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \right)$$

dont une solution analytique approchée peut être déterminée .

L'équation de continuité se réduit à :

$$\frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{u_r}{r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0$$

Les conditions aux limites auxquelles devront satisfaire les incréments de vitesse deviennent :

$$u_r = u_\theta = u_z = 0 \quad \text{en } r = R_1 \text{ et } r = R_2$$

Cherchons une solution de ces équations sous la forme d'un produit de fonctions d'une variable :

$$u_r = u(r) \exp(\sigma t) \cos kz$$

$$u_\theta = v(r) \exp(\sigma t) \cos kz$$

$$u_z = w(r) \exp(\sigma t) \sin kz$$

De même la pression s'écrira :

$$P = p(r) \exp(\sigma t) \cos kz$$

La périodicité en z des solutions est évidemment suggérée par l'expérience qui montre également que l'écoulement secondaire (ou marginal) correspond à un mouvement permanent du moins pour T voisin de T_c .

Il s'ensuit que $\sigma = 0$, en régime permanent, comme l'ont d'ailleurs montré théoriquement Meksyn [52], Pellew et Southwell [96].

En substituant dans les équations linéarisées et dans l'équation de continuité, on obtient :

$$-\frac{2V}{r} v(r) = \frac{1}{\rho} \frac{\partial p(r)}{\partial r} + \nu \left[\frac{\partial^2 u(r)}{\partial r^2} + \frac{\partial u(r)}{r \partial r} - k^2 u(r) - \frac{u(r)}{r^2} \right]$$

$$\left(\frac{\partial V}{\partial r} + \frac{V}{r} \right) u(r) = \nu \left[\frac{\partial^2 v(r)}{\partial r^2} + \frac{\partial v(r)}{r \partial r} - k^2 v(r) - \frac{v(r)}{r^2} \right]$$

$$p(r) = \frac{\nu \rho}{k} \left[\frac{\partial^2 w(r)}{\partial r^2} + \frac{\partial w}{r \partial r} - k^2 w(r) \right]$$

$$\frac{\partial u(r)}{\partial r} + u(r) + k w(r) = 0$$

Introduisons les opérateurs D^* et D afin de condenser les équations :

$$D^* = \frac{d}{dr} + \frac{1}{r} \quad D = \frac{d}{dr}$$

Le système prend alors la forme simple suivante :

$$-\frac{2V}{r} v(r) = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p(r)}{\partial r} + \nu (DD^* - k^2 - 1/r^2) u(r) \quad (4.1.1)$$

$$\left(\frac{\partial v}{\partial r} + \frac{v}{r} \right) u(r) = \nu (DD^* - k^2) v(r) \quad (4.1.2)$$

$$p(r) = -\frac{\nu \rho}{k} (D^* D - k^2) w(r) \quad (4.1.3)$$

$$D^* u(r) = -k w(r) \quad (4.1.4)$$

Portons (4.1.4) dans (4.1.3) ; puis, afin d'éliminer la pression, introduisons $p(r)$ dans (4.1.1) .

Après factorisation l'équation se réduit à :

$$-\frac{\nu}{k^2} (DD^* - k^2)^2 u(r) = -\frac{2V}{r} v(r) \quad (4.1.5)$$

avec :

$$\nu (DD^* - k^2) v(r) = (D^* v) u(r) \quad (4.1.6)$$

Examinons à présent les simplifications apportées dans les équations lorsque l'on tient compte de la géométrie de la cellule

Les rayons R_1 et R_2 des cylindres intérieurs et extérieurs sont tels que :

$$d = R_2 - R_1 \ll 1/2(R_1 + R_2)$$

Il en découle que le rapport V/r de l'écoulement laminaire devient :

$$\frac{V}{r} = Q = Q_1 \left[1 - (1 - \mu) \frac{r - R_1}{R_2 - R_1} \right]$$

où Ω_1 représente la vitesse angulaire du cylindre intérieur, et μ le rapport des vitesses angulaires Ω_1 et Ω_2 .

De même puisque l'on suppose que la perturbation de l'écoulement est petite les termes tels que u/r , v/r , ou w/r seront petits et l'opérateur D^* peut être confondu avec D .

Posons $x = (r - R_1)/d$ de manière à rendre le problème adimensionnel.

La partie radiale de la composante axiale u_z est obtenue à partir de l'équation :

$$w(x) = -\frac{1}{kd} Du(x) = -\frac{1}{a} Du(x)$$

tandis que $u(x)$ et $v(x)$ sont solutions du système :

$$(D^2 - a^2)^2 u(x) = \frac{2\Omega_1 a^2 d^2}{\nu} (1 + \alpha x) v(x)$$

$$(D^2 - a^2) v(x) = \frac{2A d^2}{\nu} u(x)$$

où $\alpha = -(1 - \mu)$

Lorsque l'on élimine u entre ces équations il apparaît que $v(x)$ sera solution d'une équation différentielle du sixième ordre

$$(D^2 - a^2)^3 v(x) = -Ta^2(1 + \alpha x)v(x)$$

avec les conditions aux limites suivantes :

$$v(x) = (D^2 - a^2)v(x) = D(D^2 - a^2)v(x) = 0$$

en $x = 0$ et $x = 1$

$$T = -\frac{4A \Omega_1 d^4}{\nu^2} \quad \text{est le nombre de Taylor dont la valeur}$$

critique T_c correspond à l'apparition du régime secondaire

et A une constante du mouvement laminaire :

$$A = - \Omega_1 \eta^2 \frac{1 - \mu / \eta^2}{1 - \eta^2} \quad \text{avec} \quad \eta = \frac{R_1}{R_2}$$

Plusieurs méthodes analytiques ou numériques, qui utilisent des fonctions d'essais, ont été employées pour le calcul de $v(x)$.
[51, 55, 58, 59, 97].

Mais la solution exacte des équations linéarisées n'est malheureusement pas exploitable analytiquement .

Pour la suite de nos calculs nous avons ainsi utilisé la méthode de la transformé de Laplace pour résoudre cette équation .

La partie radiale $v(x)$ de la composante tangentielle u_θ est obtenue par la méthode d'approximations successives déjà utilisée dans le passé [51] mais il ne sera fait aucune hypothèse préalable sur la forme des fonctions représentant les composantes de la vitesse .

La solution qui revêt une forme simple conduit à un nombre de Taylor critique en excellent accord avec la valeur généralement admise.

4.1.2 Intégration des équations .

Développons l'équation différentielle précédente sous la forme :

$$D^6 v(x) - 3a^2 . D^4 v(x) + 3a^4 D^2 v(x) = [a^6 - Ta^2 (1 + \alpha x)] v(x) \quad 4.1.7$$

et calculons la transformée de Laplace de 3.1.7 ; sachant que :

$$T.L. \frac{d^n}{dx^n} f(x) = p^n F(p) - \sum_{m=1}^n f^{(n-m)}(0) p^{n-m}$$

$$T.L. x v(x) = - \frac{d}{dp} F(p)$$

on obtient alors une équation différentielle du 1er ordre reliant l'image $V(p)$ et sa dérivée première:

$$V(p) = \frac{1}{\Delta^3} \left[A' (p^4 - 2a^2 p^2) + pB' + C' - Ta^2 V(p) + Ta^2 \alpha \frac{dV(p)}{dp} \right] \quad 4.1.8$$

avec $\Delta = p^2 - a^2$

et dans laquelle les constantes A' B' C' représentent respectivement les dérivées première, quatrième et cinquième de $v(x)$ en $x = 0$.

L'intégration de (3.1.8) conduit $V(p)$, mais la transformation inverse n'a pu être menée à terme de sorte que nous serons conduits à rechercher une solution approchée de (4.1.7).

$$\text{Posons alors } V_0(p) = \frac{A'(p^4 - 2a^2 p^2)}{\Delta^3} + \frac{pB'}{\Delta^3} + \frac{C'}{\Delta^3}$$

$$\text{et } V(p) = V_0(p) - \frac{Ta^2}{\Delta^3} [1 - \alpha \frac{d}{dp}] V(p)$$

L'original de cette expression s'écrit :

$$V(x) = V_0(x) - \frac{T}{8a^3} \int_0^x F(x,t) (1 + \alpha t) v(t) dt$$

avec $F(x,t) = a^2(x-t)^2 \text{sha}(x-t) - 3a(x-t) \text{cha}(x-t) + 3 \text{sha}(x-t)$

Une solution de l'équation intégrale peut s'écrire sous la forme

$$v(x) = \sum_{i=0}^{\alpha} (-1)^i \cdot T'^i v_i(x) \quad (4.1.9)$$

avec $T' = T/8a^3$

et dans laquelle les différents $v_i(x)$ satisfont à la relation de récurrence :

$$v_i(x) = \int_0^x F(x,t) (1 + \alpha t) v_{i-1}(t) dt$$

Retournons à présent à l'équation (4.1.8) pour noter la factorisation possible du terme $Ta^2 V(p)$ avec $V(p)$ du membre de gauche. Cette manière de regrouper les termes conduit à une solution $v(x)$ qui présente une discontinuité dans l'intervalle $[0,1]$ de variation de la variable et de ce fait ne peut représenter une solution satisfaisante au problème physique. Les différents termes de (4.1.9) sont plus facilement évalués en calculant d'abord les images des $v_1(x)$ à l'aide de (4.1.8). La solution $v(x)$ obtenue sera considérée comme satisfaisante si elle conduit à un Taylor critique en accord avec les valeurs proposées dans la littérature.

Dans la suite des calculs, nous poserons également $\alpha = -1$ puisque seul le cylindre intérieur de la cellule est mobile.

a). Nous conviendrons d'appeler approximation d'ordre zéro de $v(x)$ la fonction $v_0(x)$ dont l'image est :

$$V_0(P) = \frac{aA}{\Delta} + \frac{8a^3 pB}{\Delta^3} + C \left(\frac{8a^4}{\Delta^3} - \frac{3}{\Delta} \right)$$

Les constantes A, B, C sont reliées aux A', B', C' précédents par :

$$A = \frac{5A'}{8a} + \frac{3C'}{8a^5} \quad B = \frac{B'}{8a^3} \quad C = \frac{C'}{8a^4} - \frac{A'}{8}$$

Après transformation inverse, il vient

$$V_0(x) = A \operatorname{sh} x + B(ax^2 \operatorname{ch} x - x \operatorname{sh} x) + C(ax^2 \operatorname{sh} x - 3x \operatorname{ch} x)$$

Sous cette forme $v_0(x)$ apparaît comme la somme de trois solutions

linéairement indépendantes : $\overset{A}{v_0(x)}$; $\overset{B}{v_0(x)}$; $\overset{C}{v_0(x)}$

On constate alors immédiatement que $V_0(x)$ satisfait à la condition

$$V_0(0) = 0$$

La condition de nullité en $x=1$ sera exploitée par la suite lors du calcul du nombre de Taylor critique T_c .

b). Nous sommes à présent en mesure de calculer une première approximation $v_1(x)$ de $v(x)$

$$V(p) = V_0(p) - \frac{Ta^2}{\Delta^3} \left[1 + \frac{d}{dp} \right] V(p)$$

et posons :

$$V_1(p) = - \frac{Ta^2}{\Delta^3} \left[1 + \frac{d}{dp} \right] V_0(p)$$

Le premier terme $V_0(p)$ du développement s'écrit sous la forme :

$$V_0(p) = AV_0^A(p) + BV_0^B(p) + CV_0^C(p) \quad (4.1.10)$$

et puisque $V_1(p)$ apparait comme une expression linéaire de $V_0(p)$, il s'ensuit que $V_1(p)$ pourra s'écrire une la forme analogue:

$$V_1(p) = AV_1^A(p) + BV_1^B(p) + CV_1^C(p)$$

$$V_1^A(p) = - \frac{Ta^2}{\Delta^3} \left(1 + \frac{d}{dp} \right) V_0^A(p) \quad (4.1.11)$$

et des expressions similaires pour $V_1^B(p)$ et $V_1^C(p)$

$$V_1^A(p) = - Ta^3 \left(\frac{1}{\Delta^4} - \frac{2p}{\Delta^5} \right)$$

ou sous une autre forme :

$$V_1^A(p) = -Ta^3 \left[\frac{1}{3!} d^3 \left(\frac{1}{p^2 - a^2} \right) - \frac{2}{4!} d^4 \left(\frac{p}{p^2 - a^2} \right) \right]$$

où l'opérateur d^n représente une dérivation d'ordre n par rapport à a^2 ; a étant un paramètre indépendant de la variable, l'original $V_1^A(x)$ s'écrit immédiatement :

$$V_1^A(x) = T.L^{-1} V_1^A(p) = -Ta^3 \left[\frac{1}{3!} d^3 \left(\frac{\text{sh}ax}{a} \right) - \frac{2}{4!} d^4 (\text{ch}ax) \right]$$

On calcule de la même manière $V_1^B(x)$ et $V_1^C(x)$ après avoir

déterminé $V_1^B(p)$ et $V_1^C(p)$

$$V_1^B(p) = -8Ta^5 \left[\frac{1}{5!} d^5 \left(\frac{p}{p^2 - a^2} \right) + \frac{1}{5!} d^5 \left(\frac{1}{p^2 - a^2} \right) - \frac{1}{5!} d^6 \left(\frac{a^2}{p^2 - a^2} \right) \right]$$

$$V_1^C(p) = -Ta^2 \left[-\frac{1}{2} d^3 \left(\frac{1}{p^2 - a^2} \right) + \frac{1}{4} d^4 \left(\frac{p}{p^2 - a^2} \right) + \frac{1}{15} a^4 d^5 \left(\frac{1}{p^2 - a^2} \right) - \frac{1}{15} a^4 d^6 \left(\frac{p}{p^2 - a^2} \right) \right]$$

$$V_1^B(x) = -8Ta^5 \left[\frac{1}{5!} d^5 (\text{ch}ax) + \frac{1}{5!} d^5 \left(\frac{\text{sh}ax}{a} \right) - \frac{1}{5!} d^6 (\text{ash}ax) \right]$$

$$V_1^C(x) = -Ta^2 \left[-\frac{1}{2} d^3 \left(\frac{\text{sh}ax}{a} \right) + \frac{1}{4} d^4 (\text{ch}ax) + \frac{1}{15} a^4 d^5 \left(\frac{\text{sh}ax}{a} \right) - \frac{1}{15} a^4 d^6 (\text{ch}ax) \right]$$

En omettant le coefficient $-T/8a^3$, qui sera factorisé, les composantes de $V_1(x)$ s'écrivent sous la forme simple :

$$V_1^A(x) = \left(\frac{5x}{2} - \frac{5x^2}{8} + \frac{a^2 x^3}{6} - \frac{a^2 x^4}{24} \right) chax + \left(-\frac{5}{2a} + \frac{5x}{8a} - ax^2 + \dots \right. \\ \left. + \frac{ax^3}{4} \right) shax$$

$$V_1^B(x) = \left(\frac{63x}{8a^2} - \frac{7x^2}{4} + \frac{7x^3}{4} - \frac{a^2 x^4}{6} + \frac{11a^2 x^5}{120} \right) chax + \left(-\frac{63}{8a^3} + \frac{7x}{4a} \right. \\ \left. - \frac{35x^2}{8a} + \frac{3ax^3}{4} - \frac{ax^4}{2} + \frac{a^3 x^5}{60} - \frac{a^3 x^6}{120} \right) shax$$

$$V_1^C(x) = \left(\frac{33x}{4a} - \frac{6x^2}{a} + \frac{5ax^3}{4} - \frac{3ax^4}{4} + \frac{a^3 x^5}{60} - \frac{a^3 x^6}{120} \right) chax + \left(-\frac{33}{4a^2} + \frac{6x}{a^2} - 4x^2 + \frac{11x^3}{4} - \frac{a^2 x^4}{4} + \frac{a^2 x^5}{4} \right) shax$$

Les trois solutions précédentes satisfont indépendamment aux trois conditions aux limites en $x=0$, mais ne constituent pas une approximation satisfaisante de $v(x)$ comme nous le verrons dans le paragraphe suivant .

c). Approximation du second ordre .

Le calcul des termes v_2^i (avec $i=A, B$ ou C) est rigoureusement identique à celui décrit précédemment; ces termes seront solutions de l'équation

$$V_2^i(p) = -\frac{Ta^2}{\Delta^3} \left(1 + \frac{d}{dp} \right) V_1^i(p)$$

La forme générale de la solution s'écrit :

$$V_2^1(x) = P_1(x) \operatorname{ch} ax + Q_1(x) \operatorname{sh} ax$$

avec

$$P_A(x) = \left[\frac{33}{a^2} \left(7 + \frac{39}{8a^2} \right) - \frac{165x}{a^2} + 3x^2 \left(35 + \frac{253}{8a^2} \right) - 75x^3 + 2x^4 \left(\frac{7a^2}{3} + \frac{105}{16} \right) - \frac{10a^2x^5}{3} + \frac{a^2x^6}{5} \left(\frac{9}{4} + \frac{a^2}{9} \right) - \frac{a^4x^7}{63} + \frac{a^4x^8}{504} \right] \frac{1}{16}$$

$$Q_A(x) = \left[-\frac{33x}{a} \left(7 + \frac{39}{8a^2} \right) + \frac{165x^2}{a} - 4x^3 \left(7a + \frac{165}{16a} \right) + 20x^4 a - \frac{ax^5}{5} \left(\frac{59}{4} + \frac{7a^2}{3} \right) - \frac{a^3x^6}{3} + \frac{3a^3x^7}{70} \right] \frac{1}{16}$$

$$P_B(x) = \left[\frac{6435}{a^4} - \frac{429x}{a^2} \left(1 + \frac{19}{2a^2} \right) + \frac{3432x^2}{a^2} - 22x^3 \left(9 + \frac{91}{a^2} \right) + 363x^4 - 2x^5 \left(5a^2 + \frac{1507}{20} \right) + 12a^2x^6 - \frac{4a^2x^7}{5} \left(\frac{a^2}{9} + \frac{9}{2} \right) + \frac{29a^4x^8}{315} + \dots - \frac{43a^4x^9}{1890} \right] \frac{1}{64}$$

$$Q_B(x) = \left[-\frac{6435x}{a^3} + \frac{429x^2}{a} \left(1 + \frac{19}{2a^2} \right) - \frac{1287x^3}{a} + 11x^4 \left(5a + \frac{117}{2a} \right) - 77ax^5 + \frac{2}{5} ax^6 \left(3a^2 + \frac{803}{12} \right) - \frac{46a^3x^7}{35} + \frac{2a^3x^8}{105} \left(\frac{a^2}{6} + \frac{37}{2} \right) - \frac{a^5x^9}{315} + \frac{a^5x^{10}}{1350} \right] \frac{1}{64}$$

$$P_c(x) = \left[\frac{99}{a^3} \left(\frac{91}{a^2} + 37 \right) - \frac{4455x}{a^3} + \frac{x}{a} \left(\frac{5511}{a^2} + 1743 \right) - \frac{2103x^3}{a} + \right. \\ \left. + x^4 \left(109a + \frac{1687}{2a} \right) - 125ax^5 + 2x^6 \left(\frac{13a^3}{15} + \frac{75a}{4} \right) - \frac{38a^3x^7}{21} + \right. \\ \left. + \frac{x^8}{35} \left(16a^3 + \frac{a^5}{9} \right) - \frac{a^5x^9}{315} + \frac{a^5x^{10}}{1350} \right] \frac{1}{64}$$

$$Q_c(x) = \left[-\frac{99x}{a^2} \left(\frac{91}{a^2} + 37 \right) + \frac{4455x^2}{a^2} + x^3 \left(522 + \frac{2508}{a^2} \right) + \right. \\ \left. + 618x^4 - \frac{x^5}{5} \left(82a^2 + \frac{2077}{2} \right) + 18a^2x^6 - \frac{4x^7}{35} \left(a^4 + \frac{518a^2}{12} \right) \right. \\ \left. - \frac{4a^4x^8}{35} - \frac{17a^4x^9}{630} \right] \frac{1}{64}$$

On vérifie aisément que les trois composantes satisfont aux conditions aux limites en $x=0$.

4.1.3 Champ des vitesses dans l'entrefer .

Appliquons les conditions aux limites en $x=1$ aux trois composantes u, v, w ; ceci conduit à un système homogène de trois équations dont les trois inconnues sont A, B, C . Le système admet une solution non nulle lorsque le déterminant des coefficients est égal à zéro.

$$\begin{vmatrix} V_A(1) & V_B(1) & V_C(1) \\ D^2 V_A(1) & D^2 V_B(1) & D^2 V_C(1) \\ D(D^2 - a^2)V_A(1) & D(D^2 - a^2)V_B(1) & D(D^2 - a^2)V_C(1) \end{vmatrix} = 0$$

$$\text{où } V_i(1) = V_0^i(1) \quad \text{ou} \quad V_0^i(1) - T^i V_1^i(1) \quad \text{ou} \quad V_0^i(1) - T^i V_1^i(1) \\ + T^{i2} V_2^i(1) \quad \text{avec } i = A, B, C$$

suivant le degré d'approximation de $v(x)$ que l'on utilise.

Pour différentes valeurs de a , le déterminant est calculé en considérant T comme un paramètre . L'une des valeurs du paramètre conduit à un déterminant nul et l'on adopte pour a la valeur qui conduit à la valeur minimale de T qui est alors le nombre de Taylor critique ; ceci se produit pour :

$$a=3.12 \text{ et } T_c=3394.3$$

lorsque $v(x)$ inclut la seconde approximation .

Calculées à partir du nombre de Taylor critique, les valeurs du gradient critique sont : pour l'entrefer de 1.5 mm , $G_c = 73.6 \text{ s}^{-1}$ et pour l'entrefer de 2 mm , $G_c = 35.6 \text{ s}^{-1}$.

Ces valeurs théoriques sont à comparer aux valeurs expérimentales reportées dans le tableau page 111 du chapitre III.

L'excellent accord entre ces résultats montre en outre que l'hypothèse de l'entrefer petit est satisfaite dans la cellule utilisée .

Si l'on adopte pour expression de $v(x)$ la somme des deux premiers termes $V_0(x)$ et $V_1(x)$ le déterminant s'annule pour $T = 2539$ et de ce fait cette solution approchée est insuffisante .

Nous avons également vérifié que le fait d'ajouter un terme supplémentaire (approximation du troisième ordre) ne modifie pas de manière significative le Taylor critique .

Les parties radiales des trois composantes de la perturbation s'écrivent sous une forme générale de la manière suivante :

composante tangentielle

$$v(x) = V_0(x) - \frac{T}{8a^3} \sum_i v_1^i(x) + \left[\frac{T}{8a^3} \right]^2 \sum_i v_2^i(x)$$

où $i = A, B, C$

composante radiale

$$u(x) = \frac{v}{2Ad^2} (D^2 - a^2) v(x)$$

composante axiale

$$w(x) = -\frac{1}{a} Du(x) = -\frac{1}{a} (D^3 - a^2 D) v(x) \cdot \frac{v}{2Ad^2}$$

Ces expressions sont applicables au calcul des composantes de la vitesse dans l'approximation de l'entrefer petit et tant que l'écoulement reste dans son premier stade (absence d'onde azimuthale). Il faut néanmoins remarquer que cette approche, pas plus que l'étude de la croissance des tourbillons (58), ne permet d'atteindre les valeurs absolues des vitesses puisqu'elles découlent de la résolution d'un système homogène. De ce fait nous avons normé à 1 la valeur maximale de la fonction $v(x)$ de la composante tangentielle u_0 ; toutes les autres valeurs numériques de $u(x)$ et $w(x)$ étant également divisées par cette valeur maximale.

Les variations des fonctions $u(x)$, $v(x)$, $w(x)$ sont décrites dans les courbes (4.1) et (4.2). Les composantes tangentielles $v(x)$ et radiales $u(x)$ varient régulièrement avec x et présentent un maximum pour x voisin de 0.5

La raison du décalage des maxims est certainement à rechercher dans la dissymétrie de l'écoulement, due à la courbure du cylindre intérieur.

On constate également que $w(x)$ est nul lorsque $u(x)$ atteint sa valeur maximale conformément à la relation :

$$w(x) = -\frac{1}{a} Du(x)$$

Les amplitudes relatives des composantes $u(x)$ et $v(x)$ sont en accord étroit avec les valeurs fournies par d'autres auteurs (tableau 4.2).

4.1.4 Vitesse au delà de T_c .

Lorsque la vitesse angulaire du cylindre mobile croît au delà de sa valeur critique Ω_{c1} correspondant à T_c , l'écoulement reste stationnaire jusqu'à une seconde limite Ω_{c2} qui correspond à l'apparition de l'onde azimuthale .

La méthode de calcul des valeurs des trois composantes de la vitesse est identique à celle décrite en 4.3.1 .

La condition à la limite en $x=1$ fournit un système homogène

$$u(1) = v(1) = w(1) = 0$$

Pour une valeur de T donnée à laquelle correspond un Ω appartenant à l'intervalle $[\Omega_{c1} - \Omega_{c2}]$, l'on cherche la valeur de a qui annule le déterminant du système . Ensuite, connaissant a et T la vitesse est calculée en tout point de l'entrefer .

L'ensemble des couples (a, T) annulant le déterminant est reporté sur la figure (4.3) . La courbe est le lieu des points du plan (a, T) représentant les états d'équilibre marginaux de l'écoulement ($\sigma=0$) .

Il apparaît que pour un nombre de Taylor donné, deux valeurs de a (ou du nombre d'onde puisque $k = a/d$) satisfont au problème . Cependant, en s'appuyant sur les résultats expérimentaux de Donnelly et Schwartz [98], nous choisirons les valeurs de a inférieures à la valeur a_c (fig. 4.3) qui correspond à T_c .

Les valeurs numériques des trois composantes de la vitesse ne sont données qu'à une constante multiplicative près . Afin de pouvoir comparer entre elles les valeurs des vitesses obtenues pour différentes valeurs de T , il est nécessaire de choisir une référence commune.

Aussi poserons nous égale à l'unité, la valeur de la fonction $v(x)$ de la composante tangentielle u_θ en $x = 0.48$.

Rappelons que : $u_r = u(r)\cos kz$

$$u_\theta = v(r)\cos kz$$

$$u_z = w(z)\sin kz$$

les variations de ces fonctions sont rapportées sur les figures .

4.4-5-6.

D'autre part, Davey (58) a montré que le carré de l'amplitude d'équilibre A_e du mouvement varie comme $(1 - T_c/T)^{1/2}$ au voisinage de T_c et pour $T > T_c$.

Ainsi, les valeurs des trois composantes $u(r), v(r), w(r)$ obtenues après normation seront encore multipliées par A_e .

Par ordre d'importance elles se classent de la manière suivante:

composante tangentielle

composante axiale

composante radiale

cette dernière étant sensiblement dix fois plus petite que la composante tangentielle.

A ce point du calcul , la vitesse en tout point du champ hydrodynamique est connue à une constante multiplicative près que nous appellerons facteur d'échelle. En dernier ressort, c'est à dire après avoir établi les expressions théoriques des variations de l'angle d'extinction χ et de l'intensité de la biréfringence , il subsistera dans les équations un seul paramètre, en l'occurrence ce facteur de forme qui sera ajusté de sorte que les courbes $\chi(x)$ et $\Delta n(x)$ théoriques se superposent au mieux avec les résultats expérimentaux.

Tableau 4.1

Auteurs	Paramètre a	1ère approximation	2ème approximation	3ème approximation
nos résultats	3.12	2539	3394.3	3389.9
Chandra- sekar [51]	3.12	3429.9	3406.9	3390.3
Nsom [97]	3.12	Calcul numérique de la solution : 3389		
Davey [58]	3.12	Résolution numérique de l'équation : 3389.9		
Krueger et Co. [55]	3.12	Résolution numérique de l'équation : 3390.1		
Eagles [59]	3.127	Développement en série de la vitesse : 3390		

Tableau 4.2

Position dans l'entrefer	Composante tangentielle: v			composante radiale:u		composante axiale:w
	nos résultats	[58] Davey	[97] Nsom	nos résultats	[58] Davey	nos résultats
0	0	0	0	0.000	0	0
.1	0.287	0.288	0.288	0.151	0.151	-0.802
.2	0.568	0.569	0.568	0.461	0.463	-1
.3	0.805	0.806	0.808	0.764	0.767	-0.791
.4	0.957	0.958	0.957	0.957	0.960	-0.360
.48	1.000			1		
.5	0.999	1.000	0.999	0.994	0.998	+0.133
.6	0.926	0.927	0.926	0.877	0.881	0.559
.7	0.756	0.758	0.757	0.644	0.647	0.824
.8	0.523	0.524	0.523	0.360	0.362	0.858
.9	0.261	0.262	0.262	0.111	0.117	0.608
1	0	0	0.000	0	0	0

Composante radiale u, tangentielle v et axiale w à la transition régime laminaire-tourbillons de Taylor .

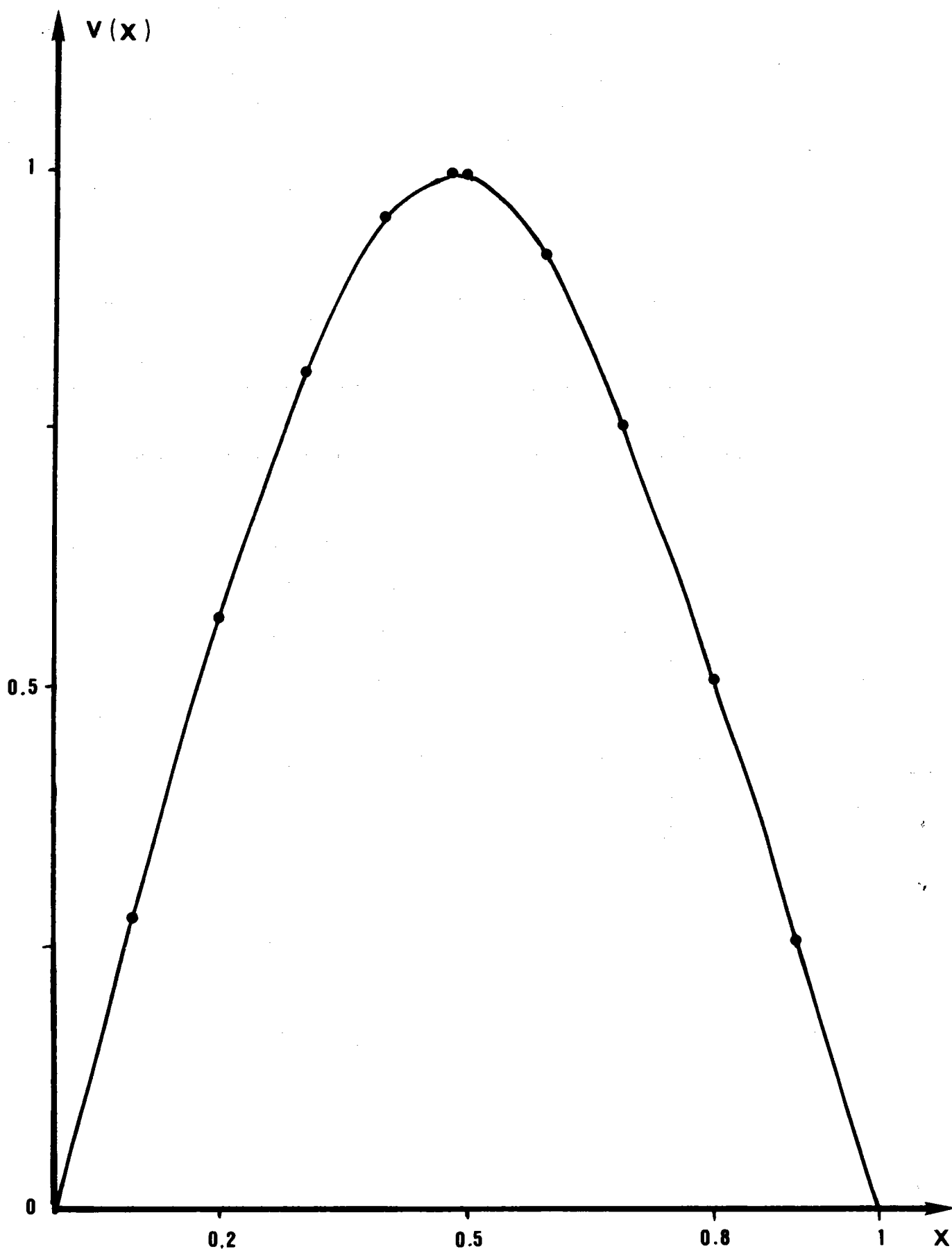
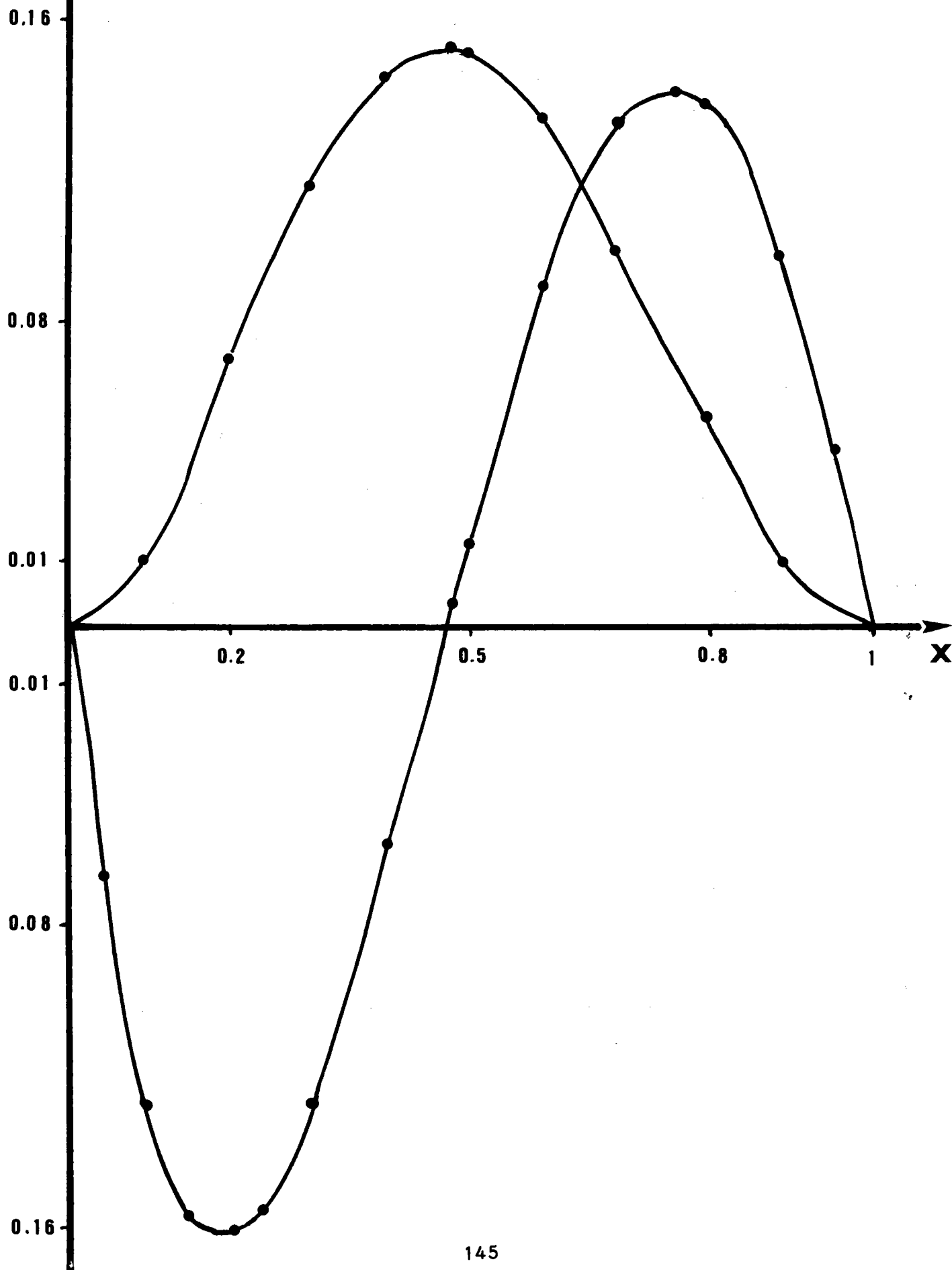


Fig. 4.1. : Composante tangentielle de la perturbation

$U(x)$

Fig. 4.2. : Composante radiale et axiale de la perturbation



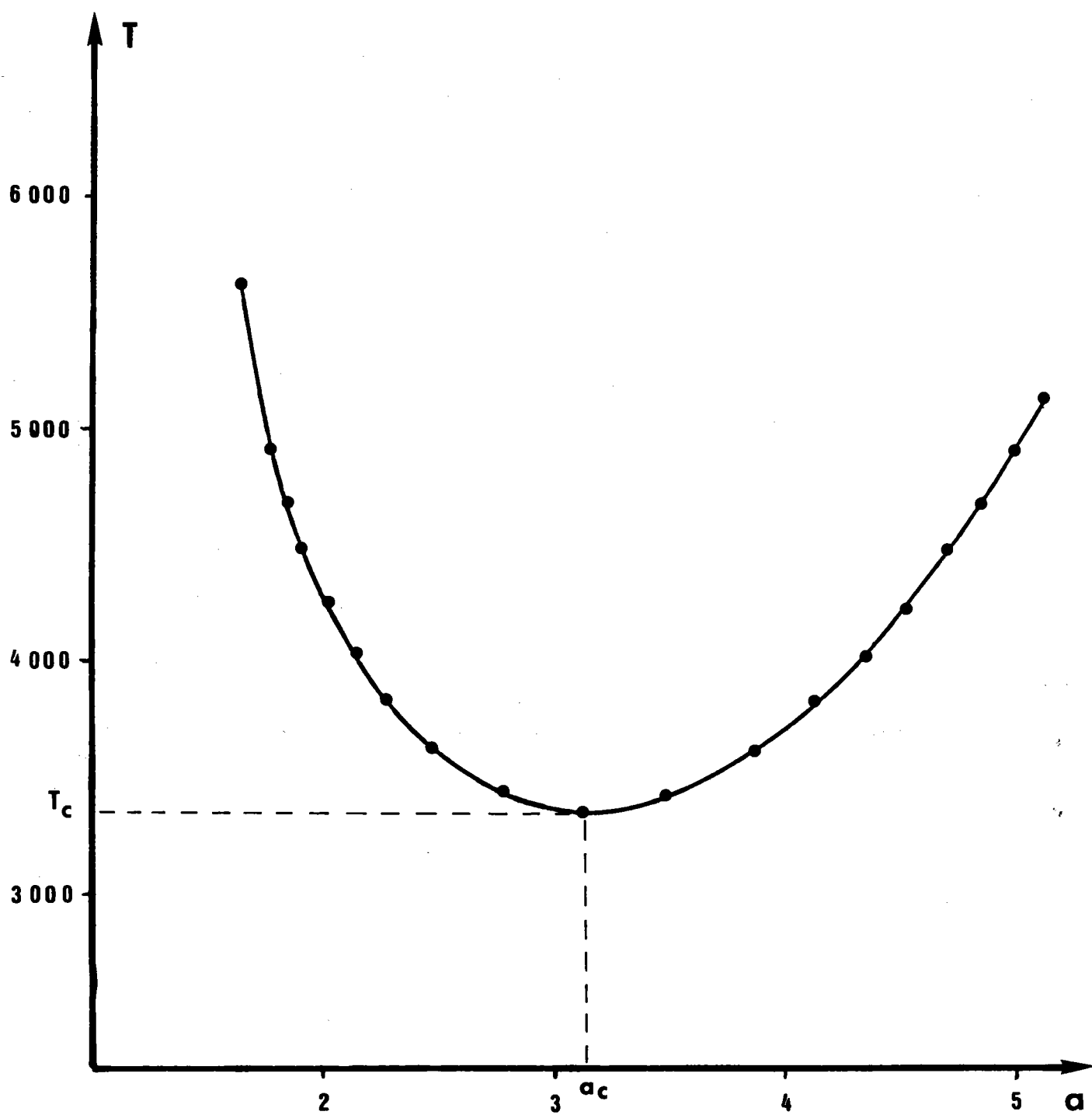


Fig. 4.3. : Courbe de stabilité marginale. $\sigma = 0$

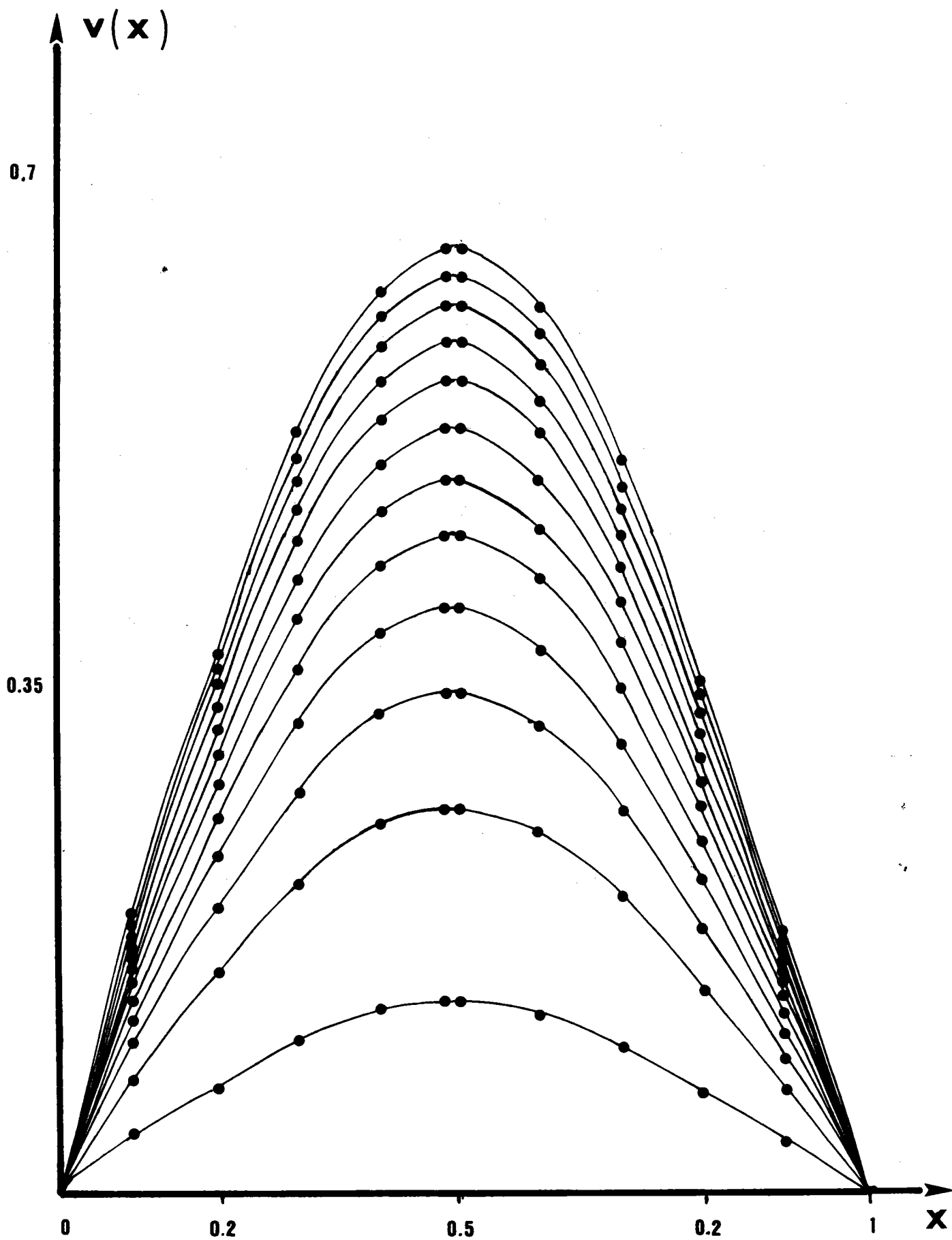


Fig. 4.4. : Composante tangentielle pour différentes valeurs d T

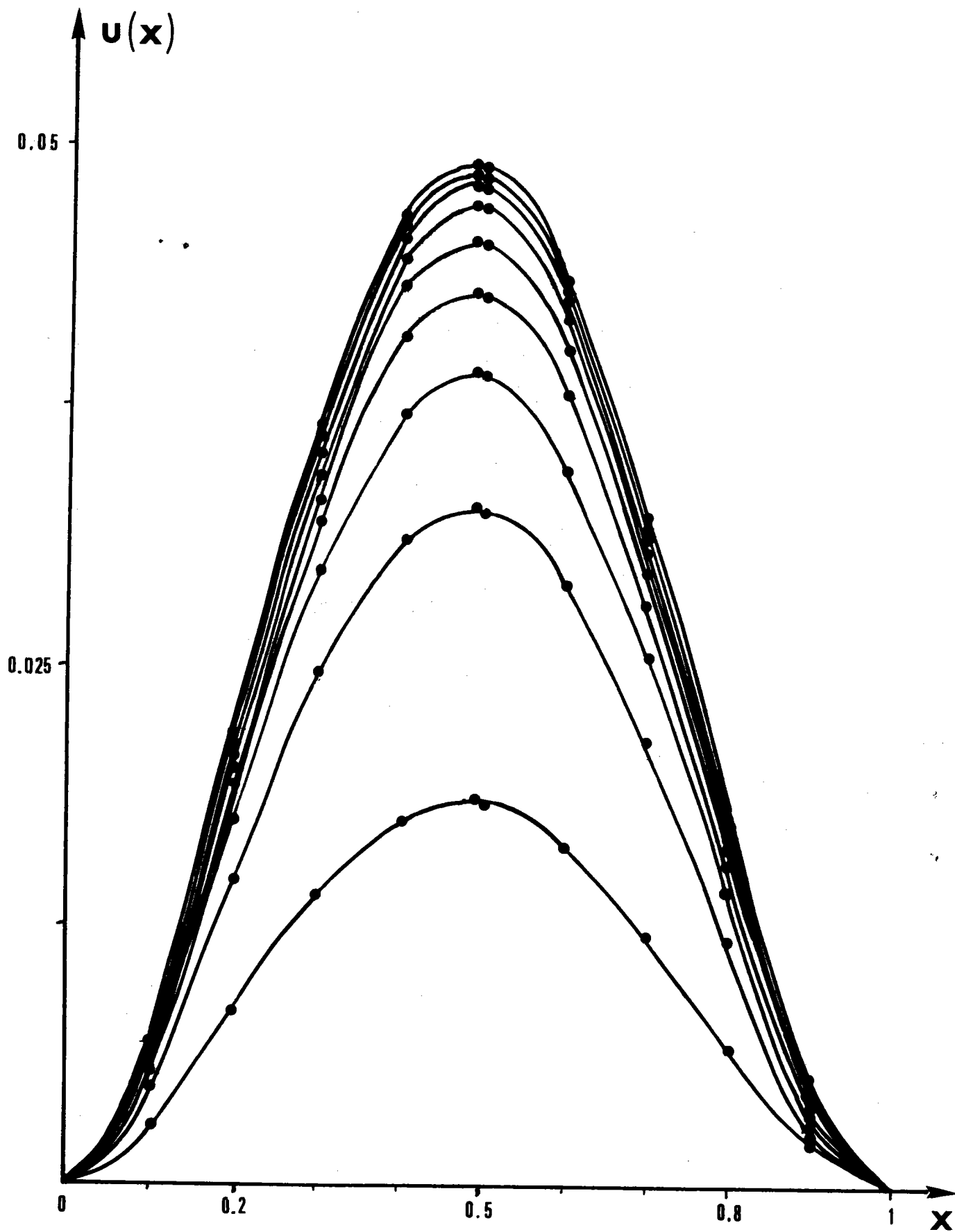


Fig. 4.5. : Composante radiale pour différentes valeurs de $T > T_c$

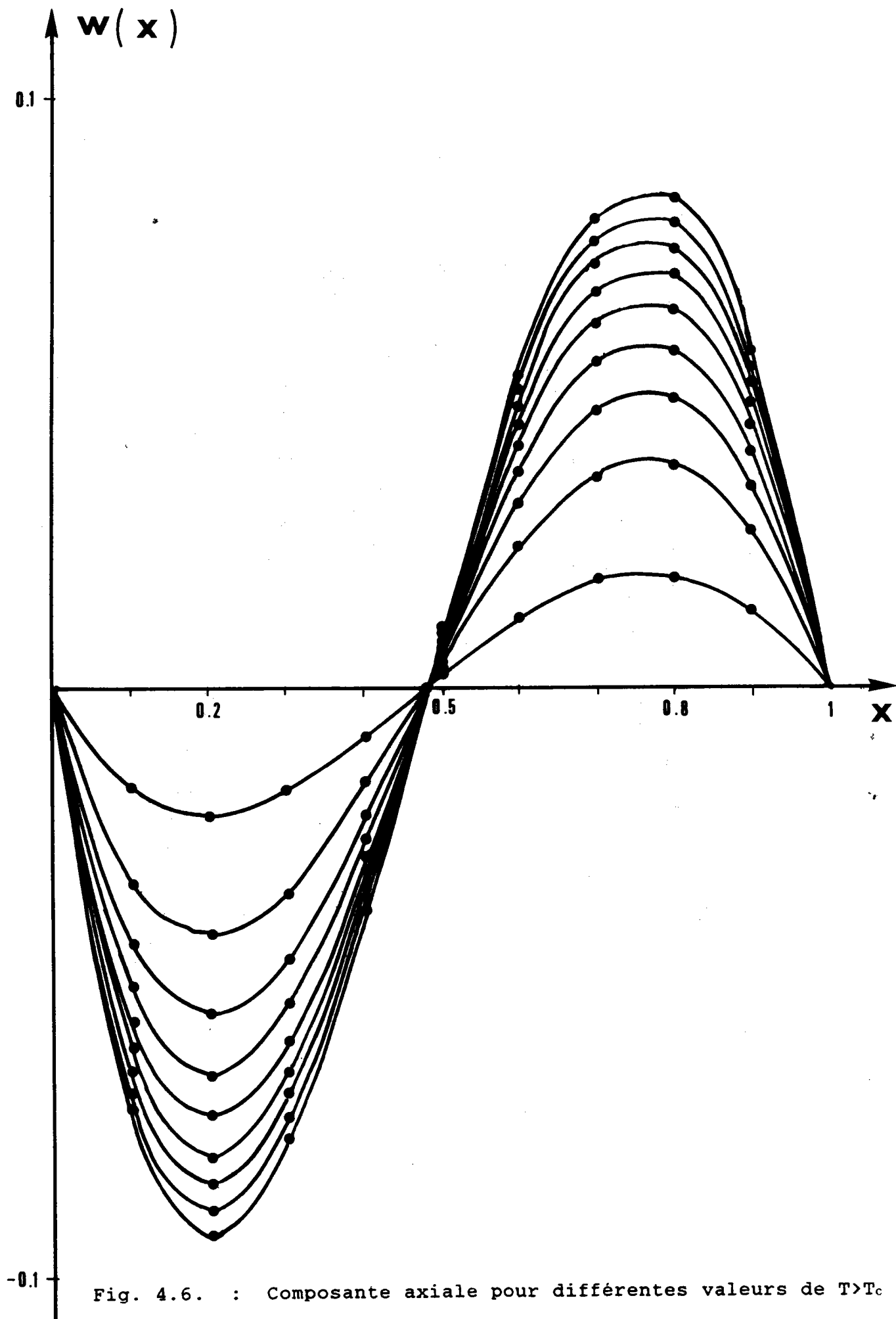


Fig. 4.6. : Composante axiale pour différentes valeurs de $T > T_c$

4.2 ORIENTATION STATISTIQUE DES PARTICULES .

4.2.1. Fonction de distribution des orientations d'une particule.

Sous l'action composée mais antagoniste du mouvement brownien et du champ hydrodynamique extérieur, les particules de la suspension ont tendance à s'orienter préférentiellement dans une direction (θ, φ) donnée .

On définit alors la densité de probabilité d'orientation de l'axe de révolution de la particule dans la direction précédente par la fonction $F(\theta, \varphi)$.

La probabilité élémentaire dP de trouver son axe dans un cône d'angle solide $d\Omega$ est :

$$dP = F(\theta, \varphi) d\Omega$$

avec la condition de normation suivante :

$$\int_{\text{espace}} dP = 1$$

Dans le cas d'un liquide au repos, toutes les orientations étant équiprobables, F est constante et vaut $1/4\pi$.

En régime permanent, F obéit à l'équation de diffusion classique

$$D_r \Delta F - \vec{\nabla} \cdot (F \vec{w}) = 0 \quad (4.2.1)$$

où D_r représente le coefficient de diffusion de rotation et $\vec{w}$ la vitesse angulaire de la particule due à l'action du champ hydrodynamique, en supposant l'absence de mouvement brownien .

Transposons l'équation 4.2.1 dans le système (θ, φ, Ψ) (Figure 4.7)

Oxyz : repère fixe lié à la cellule

O'XYZ : repère lié à la particule

O' : centre de gravité de la particule

O'a : trace de l'intersection du plan $(O'X, O'u)$ avec le plan $(O'X, O'Y)$

La fonction de distribution F étant indépendante de Ψ puisque la particule est de révolution autour de Z, (4.2.1) s'écrit:

$$D_r \left[\cotg \theta \frac{\partial F}{\partial \theta} + \frac{\partial^2 F}{\partial \theta^2} + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 F}{\partial \varphi^2} \right] = \frac{\partial F}{\partial \theta} \dot{\theta} + \frac{\partial F}{\partial \varphi} \dot{\varphi} + \theta F \frac{\cos \theta}{\sin \theta} + F \frac{\ddot{\theta}}{\partial \theta} + F \frac{\ddot{\varphi}}{\partial \varphi} \quad (4.2.2)$$

où $\dot{\theta}$ et $\dot{\varphi}$ sont les vitesses de rotation autour des axes OY et OZ .

4.2.2. Vitesse angulaire d'une particule .

Pour effectuer ce calcul , nous supposons que la particule est dépourvue d'inertie. Il s'ensuit que la vitesse de la particule s'identifie à celle du liquide et que ses variations sont instantanées. Nous admettrons de plus que le centre de gravité se déplace avec la vitesse du liquide au point où elle se trouve.

(Afin de conserver les lettres x,y,z pour désigner des systèmes de coordonnées nous noterons α la variable sans dimension introduite au paragraphe 4.1)

Les trois composantes de la vitesse deviennent :

$$v_x = u(\alpha) \cos(kz)$$

$$v_y = R_1 Q_1 (1 - \alpha) + v(\alpha) \cos(kz)$$

$$v_z = w(\alpha) \sin(kz)$$

avec $Du(\alpha) = -aw(\alpha)$ et $D = d/d\alpha$

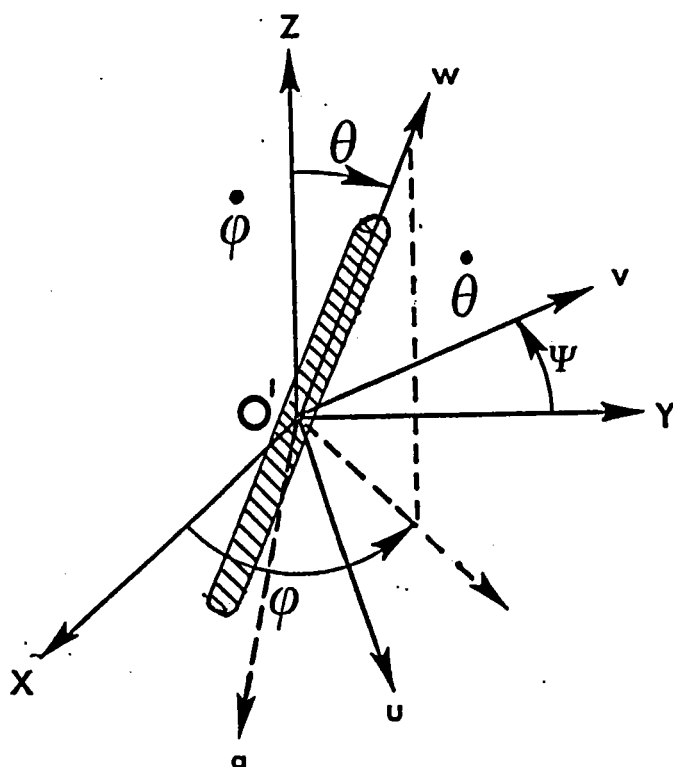


Fig. 4.7. : Repère fixe $O'XYZ$ et lié à la particule $O'uvw$

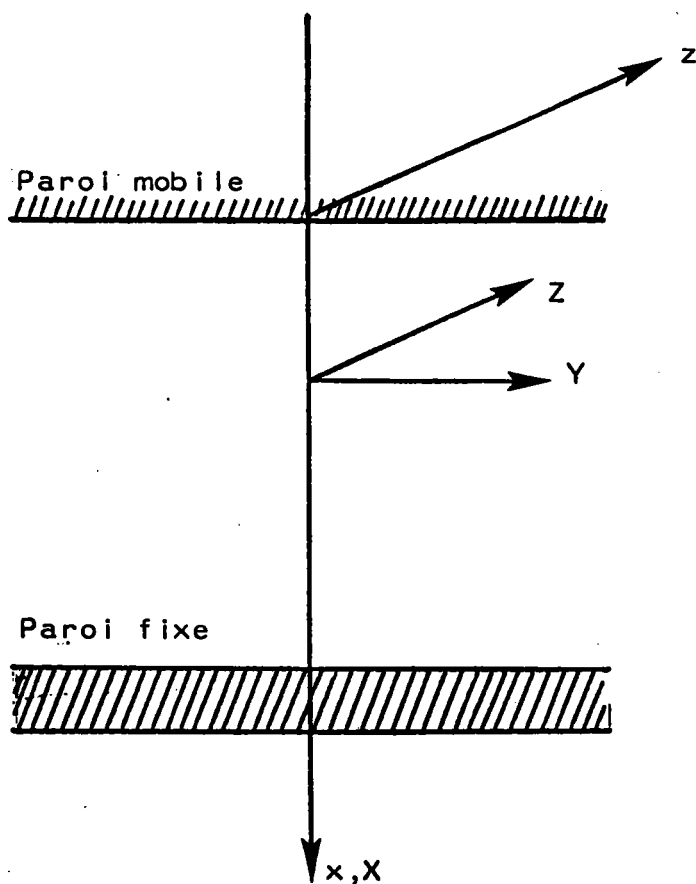


Fig. 4.8. : Repères liés à la cellule de Couette

Le champ hydrodynamique défini par ces trois composantes peut être considéré comme la superposition de six écoulements se produisant dans les trois plans de coordonnées : quatre écoulements à cisaillement et deux écoulements élongationnels

Les gradients associés sont respectivement pour les écoulements à cisaillement et pour les écoulements élongationnels :

$$\frac{\partial v_x}{\partial z}, \frac{\partial v_y}{\partial x}, \frac{\partial v_y}{\partial z}, \frac{\partial v_z}{\partial x}$$

$$\frac{\partial v_x}{\partial x}, \frac{\partial v_z}{\partial z}$$

Compte tenu des travaux de Jeffery [32] relatif à l'écoulement de Couette, la somme des contributions de chaque écoulement au spin de la particule conduit aux expressions suivantes :

$$\begin{aligned} \dot{\theta} &= \frac{1}{4} b \sin(2\varphi) \sin(2\theta) \frac{\partial v_y}{\partial x} - \cos\varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \cos^2 \theta \right] \frac{\partial v_x}{\partial z} \\ &\quad - \sin\varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \cos^2 \theta \right] \frac{\partial v_y}{\partial z} + \cos\varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \sin^2 \theta \right] \frac{\partial v_z}{\partial x} \\ &\quad + \frac{1}{4} b \cos(2\varphi) \sin(2\theta) \frac{\partial v_x}{\partial x} - \frac{3}{4} b \sin(2\theta) \frac{\partial v_z}{\partial z} \\ \dot{\varphi} &= \frac{1}{2} \left[b \cos(2\varphi) + 1 \right] \frac{\partial v_y}{\partial x} - \frac{1}{2} \cot\theta \sin\varphi (b+1) \frac{\partial v_x}{\partial z} - \frac{1}{2} \cot\theta \cos\varphi (b-1) \frac{\partial v_y}{\partial z} \\ &\quad + \frac{1}{2} \cot\theta \sin\varphi (1-b) \frac{\partial v_z}{\partial x} - \frac{1}{2} b \sin(2\varphi) \frac{\partial v_x}{\partial x} \end{aligned}$$

x, y, z désignant les coordonnées du centre de gravité de la particule dans un repère $Oxyz$ lié à la cellule (Figure 4.8).

(Une démonstration des relations précédentes pour le cas d'une particule allongée figure en annexe C).

Exprimons $\dot{\theta}$ et $\dot{\varphi}$ à l'aide des expressions adimensionnelles des composantes v_x , v_y et v_z ($\alpha = x/d$)

$$\begin{aligned}\dot{\theta} = & \frac{b}{4d} \sin(2\varphi) \sin(2\theta) \left[-\Omega_1 R_1 + \frac{\partial v(\alpha)}{\partial \alpha} \cos(kz) \right] \\ & + k \cos \varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - \cos^2 \theta \right] u(\alpha) \sin(kz) + k \sin \varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - \cos^2 \theta \right] v(\alpha) \sin(kz) \\ & + \frac{\cos \varphi}{d} \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \sin^2 \theta \right] \frac{\partial w(\alpha)}{\partial \alpha} \sin(kz) \\ & + \frac{b}{4d} \cos(2\varphi) \sin(2\theta) \frac{\partial u(\alpha)}{\partial \alpha} \cos(kz) - \frac{3}{4} b k \sin(2\theta) w(\alpha) \cos(kz)\end{aligned}$$

De même $\dot{\varphi}$ s'exprime

$$\begin{aligned}\dot{\varphi} = & \frac{1}{2d} \left[b \cos(2\varphi) + 1 \right] \left[-\Omega_1 R_1 + \frac{\partial v(\alpha)}{\partial \alpha} \cos(kz) \right] \\ & + \frac{k}{2} \cotg \theta \sin \varphi (b+1) u(\alpha) \sin(kz) - \frac{b}{2d} \sin(2\varphi) \frac{\partial u(\alpha)}{\partial \alpha} \cos(kz) \\ & + \frac{k}{2} \cotg \theta \cos \varphi (b-1) v(\alpha) \sin(kz) + \frac{1}{2d} \cotg \theta \sin \varphi (1-b) \frac{\partial w(\alpha)}{\partial \alpha} \sin(kz)\end{aligned}$$

Après le calcul des dérivées $\frac{\partial \dot{\theta}}{\partial \theta}$ et $\frac{\partial \dot{\varphi}}{\partial \varphi}$, tous les éléments de l'équation 4.2.2' sont alors connus et nous sommes en mesure d'en chercher une solution.

Remarquons également que les vitesses angulaires obtenues par cette méthode sont identiques aux résultats que l'on obtiendrait en écrivant l'égalité des couples auxquels est soumise une particule maintenue fixe dans le liquide en écoulement, puis en rotation dans un liquide au repos.

4.2.3. Résolution de l'équation de diffusion.

Reportons nous à présent à l'équation (4.2.2) que l'on écrira sous la forme :

$$\Delta F = \frac{1}{D_r} \left[\theta \frac{\partial F}{\partial \theta} + \varphi \frac{\partial F}{\partial \varphi} + F \left(\frac{\partial \theta}{\partial \theta} + \frac{\partial \varphi}{\partial \varphi} + \theta \cot \theta \right) \right] \quad (4.2.3)$$

Afin de simplifier l'expression finale de l'équation de diffusion-
posons :

$$A = \frac{k}{a D_r} \cos(kz) \frac{\partial v(\alpha)}{\partial \alpha}$$

$$B = \frac{k}{D_r} \sin(kz) v(\alpha)$$

$$C = \frac{k}{D_r} \sin(kz) u(\alpha)$$

$$D = \frac{k}{D_r} \cos(kz) w(\alpha)$$

$$E = \frac{k}{a D_r} \sin kz \frac{\partial w(\alpha)}{\partial \alpha}$$

$$F = \frac{k}{a D_r} \cos(kz) \frac{\partial u(\alpha)}{\partial \alpha}$$

remarquons que $F = -D$

Après développement, l'équation de diffusion devient:

$$\begin{aligned} \Delta F = & \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[\sin \theta \left[\frac{b}{4} \sin(2\varphi) \sin(2\theta) (A - \sigma) + \cos \varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \cos^2 \theta \right] C \right. \right. \\ & + \sin \varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \cos^2 \theta \right] B + \cos \varphi \left[\frac{1}{2} (b-1) - b \sin^2 \theta \right] E \\ & \left. \left. - \frac{b}{4} \cos(2\varphi) \sin(2\theta) D - \frac{3}{4} b \sin(2\theta) D \right] F \right] \\ & + \frac{\partial}{\partial \varphi} \left[\left[\frac{1}{2} [b \cos(2\varphi) + 1] (A - \sigma) + \frac{1}{2} \cot \theta \sin \varphi (b+1) C \right. \right. \\ & \left. \left. + \frac{1}{2} \cot \theta \cos \varphi (b-1) B + \frac{1}{2} \cot \theta \sin \varphi (1-b) E + \frac{b}{2} \sin(2\varphi) D \right] F \right] \end{aligned}$$

La solution de cette équation s'écrit sous la forme d'une série

$$F = \sum_{j=0}^{\alpha} b^j F_j \quad (4.2.4)$$

b : facteur de forme de la particule égal à +1 dans le cas des
particules allongées et -1 pour les disques infiniment minces.

L'équation de diffusion s'écrit formellement de la manière suivante:

$$\Delta F = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[\sin \theta [b C_1(\theta, \varphi) + C_2(\theta, \varphi)] F \right] \\ + \frac{\partial}{\partial \varphi} \left[[b C_1'(\theta, \varphi) + C_2'(\theta, \varphi)] F \right]$$

En reportant (4.2.4) dans cette dernière et en identifiant les termes de même puissances en b , on établit l'égalité suivante :

$$\Delta F = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[C_2(\theta, \varphi) F_J \right] - \frac{\partial}{\partial \varphi} \left[C_2'(\theta, \varphi) F_J \right] \\ = \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left[C_1(\theta, \varphi) F_{J-1} \right] + \frac{\partial}{\partial \varphi} \left[C_1'(\theta, \varphi) F_{J-1} \right]$$

Après avoir explicité les coefficients C_1 , C_1' , C_2 et C_2' on obtient l'expression finale de l'équation de diffusion qui s'écrit (équation 4.2.5):

$$\Delta F_J + \frac{\sigma - A}{2} \frac{\partial F_J}{\partial \varphi} + \frac{1}{2} B \sin \varphi \frac{\partial F_J}{\partial \theta} + \frac{1}{2} B \cot \theta \cos \varphi \frac{\partial F_J}{\partial \varphi} \\ + \frac{1}{2} (C + E) \left[\cos \varphi \frac{\partial F_J}{\partial \theta} - \cot \theta \sin \varphi \frac{\partial F_J}{\partial \varphi} \right] = \\ \left[\frac{1}{2} B \sin \varphi - B \sin \varphi \cos^2 \theta + \frac{1}{2} C \cos \varphi - C \cos \varphi \cos^2 \theta - \frac{3}{4} D \sin(2\theta) \right. \\ \left. + \frac{1}{2} E \cos \varphi - E \cos \varphi \sin^2 \theta + \frac{A - \sigma}{4} \sin(2\varphi) \sin(2\theta) + \frac{F}{4} \cos(2\varphi) \sin(2\theta) \right] \frac{\partial F_{J-1}}{\partial \theta} \\ + \left[-\frac{1}{2} B \cos \varphi \cot \theta - \frac{1}{2} E \cot \theta \sin \varphi + \frac{1}{2} C \sin \varphi \cot \theta \right. \\ \left. - \frac{A - \sigma}{2} \cos(2\varphi) - \frac{F}{2} \sin(2\varphi) \right] \frac{\partial F_{J-1}}{\partial \varphi} \\ + \left[\frac{3}{2} B \sin \varphi \sin(2\theta) + \frac{3}{2} (C - E) \sin(2\theta) \cos \varphi + \frac{3}{2} D (1 - 3 \cos^2 \theta) \right. \\ \left. + \frac{3}{2} (\sigma - A) \sin(2\varphi) \sin^2 \theta - \frac{3}{2} F \cos(2\varphi) \sin^2 \theta \right] F_{J-1}$$

$$\text{avec } \sigma = \frac{\Omega_1 R_1}{dD_r}$$

Compte tenu de la périodicité en θ et φ de la fonction de distribution, les F_j se développent sous forme d'harmoniques sphériques

$$F_j = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^n (a_{n,m,j} \cos m\varphi + b_{n,m,j} \sin m\varphi) P_n^m$$

avec

$$P_n^m = \sin^m \theta \frac{d^m P_n}{(d \cos \theta)^m}$$

En reportant l'expression de F_j dans (4.2.5) et après regroupement des termes de même ordre en m on obtient trois relations de récurrence entre les coefficients $a_{n,m,j}$ et $b_{n,m,j}$.

Première relation de récurrence :

$$\begin{aligned} & -n(n+1)a_{n,m,j} + m\left(\frac{\sigma - A}{2}\right)b_{n,m,j} - \frac{1}{4}B(n-m)(n+m+1)b_{n,m+1,j} \\ & - \frac{1}{4}Bb_{n,m-1,j} - \frac{1}{4}(C+E)(n-m)(n+m+1)a_{n,m+1,j} + \frac{1}{4}(C+E)a_{n,m-1,j} = \\ & -\left(\frac{A - \sigma}{4}\right) \left[\frac{n}{(2n+3)(2n+5)} b_{n+2,m-2,j-1} - \frac{n+1}{(2n-1)(2n-3)} b_{n-2,m-2,j-1} \right. \\ & + \frac{3}{(2n-1)(2n+3)} b_{n,m-2,j-1} + \dots \\ & + \frac{(n+1)(n-m)(n-m-1)(n-m-2)(n-m-3)}{(2n-1)(2n+3)} b_{n-2,m+2,j-1} \\ & - \frac{n(n+m+1)(n+m+2)(n+m+3)(n+m+4)}{(2n+3)(2n+5)} b_{n+2,m+2,j-1} \\ & \left. - \frac{3(n-m)(n-m-1)(n+m+1)(n+m+2)}{(2n-1)(2n+3)} b_{n,m+2,j-1} \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{B}{2} \left[\frac{n(n+m+1)}{(2n+3)(2n+5)} b_{n+2, m-1, j-1} + \frac{(n+1)(n-m)}{(2n-1)(2n-3)} b_{n-2, m-1, j-1} + \right. \\
& \quad \frac{2n^2 + 2n + 3m - 3}{(2n-1)(2n+3)} b_{n, m, j-1} - \frac{1}{2} (n-m)(n+m+1) b_{n, m+1, j-1} \\
& \quad + \frac{(n+1)(n-m)(n-m-1)(n-m-2)}{(2n-1)(2n-3)} b_{n-2, m+1, j-1} - \frac{1}{2} b_{n, m-1, j-1} \\
& \quad + \frac{n(n+m+1)(n+m+2)(n+m+3)}{(2n+3)(2n+5)} b_{n+2, m+1, j-1} \\
& \quad \left. + \frac{(2n^2+2n-3m-3)(n-m)(n+m+1)}{(2n+3)(2n-1)} b_{n, m+1, j-1} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{C}{2} \left[- \frac{(2n^2+2n+3m-3)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n, m-1, j-1} - \frac{(n+1)(n-m)}{(2n-1)(2n-3)} a_{n-2, m-1, j-1} \right. \\
& - \frac{n(n+m+1)}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2, m-1, j-1} - \frac{1}{2} (n-m)(n+m+1) a_{n, m+1, j-1} \\
& + \frac{(n+1)(n-m)(n-m-1)(n-m-2)}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2, m+1, j-1} + \frac{1}{2} a_{n, m-1, j-1} \\
& + \frac{(n+m+2)(n+m+1)(n+m+3)(n)}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2, m+1, j-1} \\
& \left. + \frac{(n+m+1)(n-m)(2n^2-3m+2n-3)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n, m+1, j-1} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& - \frac{D}{2} \left[- \frac{3(n-m-1)(n-m)(n+1)}{(2n-1)(2n-3)} a_{n-2, m, j-1} + \frac{3(n^2-3m^2+n)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n, m, j-1} \right. \\
& \left. - \frac{3(n+m+2)(n+m+1)n}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2, m, j-1} \right]
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{E}{2} \left[- \frac{(2n^2+2n-3m)}{(2n-1)(2n+3)} a_{n,m-1,j-1} + \frac{(n-m)(n+1)}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2,m-1,j-1} + \right. \\
& \quad \frac{n(m+n+1)}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2,m-1,j-1} - \frac{1}{2} (n-m)(n+m+1) a_{n,m+1,j-1} \\
& \quad + \frac{(n+m+1)(n-m)(2n^2+3m+2n)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,m+1,j-1} + \frac{1}{2} a_{n,m-1,j-1} \\
& \quad - \frac{(n-m-1)(n-m)(n-m-2)(n+1)}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2,m+1,j-1} \\
& \quad \left. - \frac{n(n+m+2)(n+m+3)(n+m+1)}{(2n+5)((2n+3))} a_{n+2,m+1,j-1} \right] \\
& + \frac{F}{4} \left[\frac{n}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2,m-2,j-1} - \frac{(n+1)}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2,m-2,j-1} \right. \\
& \quad + \frac{3}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,m-2,j-1} \\
& \quad - \frac{(n+1)(n-m-3)(n-m-2)(n-m-1)(n-m)}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2,m+2,j-1} + \dots \\
& \quad + \frac{n(n+m+1)(n+m+2)(n+m+3)(n+m+4)}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2,m+2,j-1} \\
& \quad \left. + \frac{3(n-m-1)(n-m)(n+m+1)(n+m+2)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,m+2,j-1} \right]
\end{aligned}$$

La seconde relation est obtenue directement à partir de la première en effectuant dans celle-ci, les substitutions adéquates :

$$\begin{aligned}
& - n(n+1)b_{n,m,j} - m\left(\frac{\sigma-A}{2}\right)a_{n,m,j} + \frac{1}{4}B(n-m)(n+m+1)a_{n,m+1,j} \\
& + \frac{1}{4}Ba_{n,m-1,j} - \frac{1}{4}(C+E)(n-m)(n+m+1)b_{n,m+1,j} + \frac{1}{4}(C+E)b_{n,m-1,j} =
\end{aligned}$$

$$- \frac{A - \sigma}{4} \quad [\text{terme identique mais } b \text{ remplacé par } a]$$

$$+ \frac{B}{2} \quad [\text{terme identique mais } b \text{ remplacé par } a]$$

$$+ \frac{C}{2} \quad [\text{terme identique mais } a \text{ remplacé par } b]$$

$$- \frac{D}{2} \quad [\text{terme identique mais } a \text{ remplacé par } b]$$

$$+ \frac{E}{2} \quad [\text{terme identique mais } a \text{ remplacé par } b]$$

$$+ \frac{F}{4} \quad [\text{terme identique mais } a \text{ remplacé par } b]$$

Le cas particulier $m = 0$ conduit à la troisième relation

$$- \frac{n}{2} (n+1) a_{n,0,j} - \frac{1}{4} B n(n+1) b_{n,1,j} - \frac{1}{4} (C+E) n(n+1) a_{n,1,j} =$$

$$\frac{C}{2} \left[\frac{(n+1)n(n-1)(n-2)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n-2,1,j-1} + \frac{(n+2)(n+1)(n+3)n}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2,1,j-1} \right.$$

$$\left. + \frac{(n+1)n(2n^2+2n-3)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,1,j-1} - \frac{1}{4} n(n+1) a_{n,1,j-1} \right]$$

$$+ \frac{E}{2} \left[\frac{(n+1)n(2n^2+2n)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,1,j-1} - \frac{1}{4} n(n+1) a_{n,1,j-1} \right.$$

$$\left. - \frac{(n-1)n(n-2)(n+1)}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2,1,j-1} - \frac{n(n+2)(n+3)(n+1)}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2,1,j-1} \right]$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{F}{4} \left[- \frac{(n+1)(n-3)(n-2)(n-1)n}{(2n-3)(2n-1)} a_{n-2,2,j-1} + \dots \right. \\
& + \frac{n(n+1)(n+2)(n+3)(n+4)}{(2n+5)(2n+5)} a_{n+2,2,j-1} \\
& \left. + \frac{3(n-1)n(n+1)(n+2)}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,2,j-1} \right] \\
& + \frac{B}{2} \left[\frac{n(n+1)(n-1)(n-2)}{(2n-1)(2n-3)} b_{n-2,1,j-1} + \frac{n(n+1)(n+2)(n+3)}{(2n+3)(2n+5)} b_{n+2,1,j-1} \right. \\
& + \frac{(2n^2+2n-3)n(n+1)}{(2n+3)(2n-1)} b_{n,1,j-1} - \frac{1}{4} n(n+1) b_{n,1,j-1} \left. \right] \\
& - \left(\frac{A-\sigma}{4} \right) \left[\frac{n(n+1)(n-1)(n-2)(n-3)}{(2n-1)(2n-3)} b_{n-2,2,j-1} - \frac{n(n+1)(n+2)(n+3)(n+4)}{(2n+3)(2n+5)} \right. \\
& \left. - \frac{3n(n-1)(n+1)(n+2)}{(2n-1)(2n+3)} b_{n,2,j-1} \right] \\
& - \frac{D}{4} \left[\frac{3(n-1)n(n+1)}{(2n-1)(2n-3)} a_{n-2,0,j-1} + \frac{3(n+1)n}{(2n+3)(2n-1)} a_{n,0,j-1} \right. \\
& \left. - \frac{3(n+2)(n+1)n}{(2n+5)(2n+3)} a_{n+2,0,j-1} \right]
\end{aligned}$$

La condition de normation sur une sphère de rayon 1 de la fonction F conduit, compte tenu des relations d'orthogonalité entre les polynômes ou les fonctions associées de Legendre, à :

$$\sum_{j=0}^{\infty} a_{0,0,j} = \frac{1}{2\pi}$$

Mais les trois relations de récurrence ne permettent pas de déterminer tous les $a_{0,0,j}$, de ce fait nous poserons :

$$a_{0,0,0} = 1/2\pi$$

et la première approximation de la fonction de distribution F est $F_0 = 1/4\pi$.

Les $a_{n,m,j}$ et $b_{n,m,j}$ du développement de F qui dépendent de la coordonnée z et de la position X dans l'entrefer de la cellule de Couette seront calculées numériquement sur ordinateur et jusqu'à un ordre j suffisant pour assurer la convergence de séries intervenants dans l'expression de $\text{tg}2\chi$ et de Δn comme il sera développé dans le chapitre suivant .

4.3 Calculs de $T_g(2\chi)$ et Δn

Les calculs de la tangente de l'angle d'extinction χ et de l'intensité de la biréfringence Δn seront effectués dans le cadre des approximations habituellement formulées : la plus grande dimension des particules est inférieure à la longueur d'onde de la lumière utilisée et la concentration suffisamment faible pour que l'on puisse négliger leurs interactions .

La forme d'une particule sera idéalisée par un ellipsoïde de révolution et l'on supposera que les axes géométriques coïncident avec les axes de symétrie électrique de la particule . La solution est également monodisperse .

Il apparaîtra au cours du calcul que ces deux grandeurs sont fonction à la fois de la position radiale et axiale du point considéré dans l'entrefer . Si l'on admet que le faisceau lumineux utilisé pour les mesures est infiniment mince, il sera néanmoins nécessaire d'intégrer la valeur ponctuelle sur la hauteur de la couche de liquide étudié .

Les constantes diélectriques principales du milieu seront déterminées en calculant le moment dipolaire total induit dans un certain volume de liquide .

4.3.1 Tenseur des permittivités

Considérons alors la solution étudiée comme une suspension de particules de permittivité ϵ , placées dans un milieu continu homogène et isotrope de permittivité ϵ_1 .

Dans cet ensemble, isolons une particule de volume v baignant complètement dans un volume V de solvant et écrivons que la polarisation de cet ensemble est identique à celle d'un volume égal d'un milieu équivalent de constante diélectrique ϵ' .

Nous savons d'autre part [99] que la solution du problème de la polarisation d'un corps de permittivité $[\varepsilon]$, soumis à un champ $\vec{E}_0$ placé dans un milieu ε_1 est identique à celui du corps de permittivité $\varepsilon\varepsilon_0/\varepsilon_1$ placé dans le vide [Fig.(4.9)].

Supposons alors que le champ électrique extérieur $\vec{E}$ soit parallèle à l'axe de révolution de la particule et soit $\varepsilon_{||}$ et $\varepsilon'_{||}$ les permittivités principales de la particule et du milieu équivalent. A l'intérieur de l'ellipsoïde, la polarisation s'écrit :

$$p = \left(\frac{\varepsilon_{||} \varepsilon_0}{\varepsilon_1} - \varepsilon_0 \right) E$$

Or le champ E électrique à l'intérieur de l'ellipsoïde [100] est de la forme :

$$\frac{E_0}{1 + \frac{\varepsilon_{||} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A_1(0)}$$

avec $A_1(0)$ définit en annexe (C) .

$$\text{Il s'ensuit que } p = \frac{(\varepsilon_{||} \varepsilon_0 / \varepsilon_1 - \varepsilon_0)}{1 + \frac{\varepsilon_{||} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A_1(0)}$$

La composante dans cette direction du moment dipolaire total s'écrit :

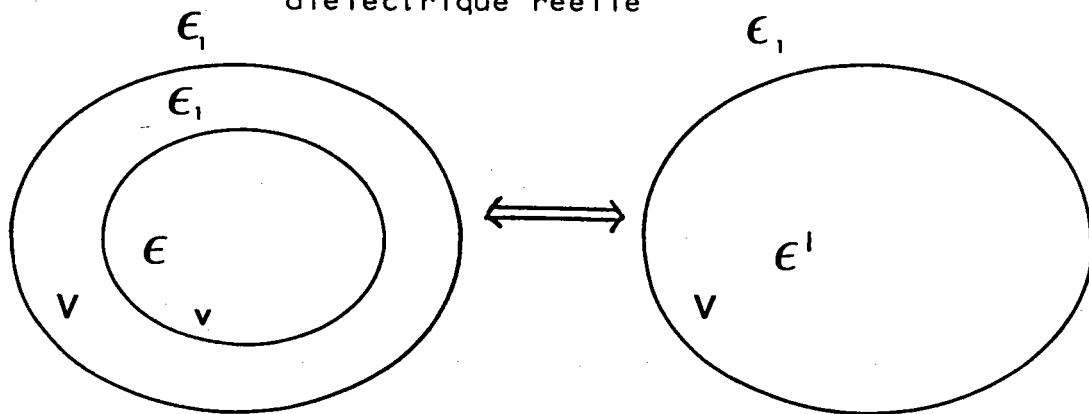
$$\mathcal{P}_{||} = \int_V p dV = \int_v p dv$$

puisque p est nul en dehors de v .

$$\mathcal{P}_{||} = \frac{(\varepsilon_{||} \varepsilon_0 / \varepsilon_1 - \varepsilon_0)}{1 + \frac{\varepsilon_{||} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A_1(0)} v E_0$$

Représentation schématique de la solution

diélectrique réelle



$\vec{E}_0$

Champ extérieur

Problème équivalent

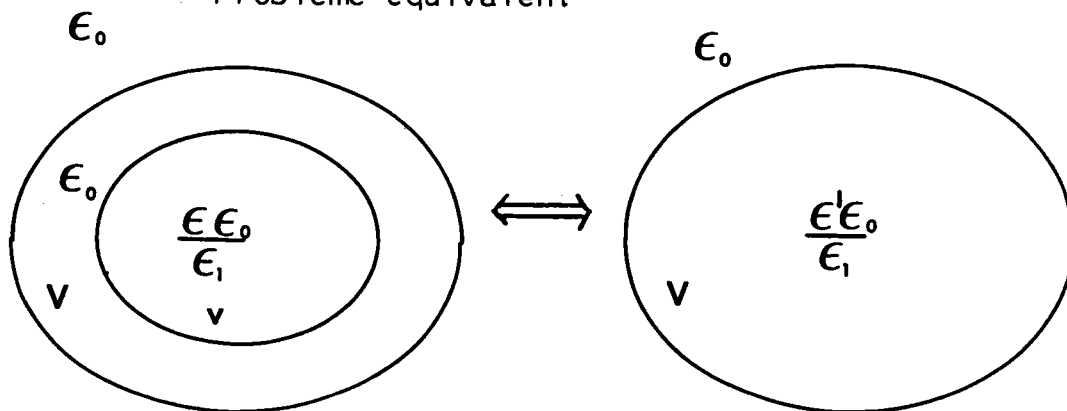


Fig. 4.9. : Milieu diélectrique équivalent au milieu réel

De la même manière, la polarisation du diélectrique équivalent s'écrira :

$$P_{\parallel} = \left(\frac{\varepsilon'_{\parallel} \varepsilon_0}{\varepsilon_1} - \varepsilon_0 \right) E$$

$$\text{avec } E = \frac{E_0}{1 + \frac{\varepsilon'_{\parallel} - \varepsilon_0}{\varepsilon_0} A'_{11}(0)}$$

Le volume entourant la particule étant également un ellipsoïde et $A'_{11}(0)$ définit en annexe (C) .

Le moment dipolaire total induit dans V est :

$$P = \frac{E}{1 + \frac{\varepsilon'_{\parallel} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A'_{11}(0)} V$$

Les deux expressions du moment dipolaire sont égales; il s'ensuit que :

$$\frac{(\varepsilon_{\parallel} \varepsilon_0 / \varepsilon_1 - \varepsilon_0) V}{1 + \frac{\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A_1(0)} = \frac{(\varepsilon'_{\parallel} \varepsilon_0 / \varepsilon_1 - \varepsilon_0) V}{1 + \frac{\varepsilon'_{\parallel} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A'_{11}(0)}$$

ou encore :

$$\frac{(\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1) V}{1 + \frac{\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A_1(0)} = \frac{(\varepsilon'_{\parallel} - \varepsilon_1) V}{1 + \frac{\varepsilon'_{\parallel} - \varepsilon_1}{\varepsilon_1} A'_{11}(0)}$$

La permittivité parallèle du milieu équivalent $\varepsilon'_{\parallel}$ s'écrit :

$$\varepsilon'_{\parallel} = \frac{\varepsilon_1 [\varepsilon_1 + (\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1) A_1(0) + \Phi (\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1) (1 - A'_{11}(0))]}{\varepsilon_1 + (\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1) A_1(0) - (\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_1) A'_{11}(0)}$$

$$\text{avec } \Phi = \frac{V}{V}$$

Orientant le champ influençant perpendiculairement à l'axe de révolution de la particule, la permittivité $\varepsilon'_\perp$ est obtenue en remplaçant $\varepsilon_\parallel$ par $\varepsilon_\perp$, $A_1(0)$ par $A_2(0)$ et $A'_1(0)$ par $A'_2(0)$

$$\varepsilon'_\perp = \frac{\varepsilon_1 [\varepsilon_1 + (\varepsilon_\perp - \varepsilon_1) A_2(0) + \Phi(\varepsilon_\perp - \varepsilon_1)(1 - A'_2(0))]}{\varepsilon_1 + (\varepsilon_\perp - \varepsilon_1) A_2(0) - (\varepsilon_\perp - \varepsilon_1) A'_2(0)}$$

La solution est suffisamment diluée pour qu'un développement limité au 1er ordre en Φ soit justifié; il s'ensuit que :

$$\varepsilon'_\parallel = \varepsilon_1 \left[1 + \frac{\Phi(\varepsilon_\parallel - \varepsilon_1)}{\varepsilon_1 + A_1(0)(\varepsilon_\parallel - \varepsilon_1)} \right]$$

$$\varepsilon'_\perp = \varepsilon_1 \left[1 + \frac{\Phi(\varepsilon_\perp - \varepsilon_1)}{\varepsilon_1 + A_2(0)(\varepsilon_\perp - \varepsilon_1)} \right]$$

On remarque que la forme du volume V entourant la particule ellipsoïdale n'intervient pas dans le calcul des permittivités principales équivalentes $\varepsilon'_\parallel$ et $\varepsilon'_\perp$ si on se limite à la première approximation.

Des résultats identiques ont été obtenus [64] en prenant pour V une forme sphérique.

Dans les axes propres de la particule le tenseur des permittivités s'écrit (axe oz suivant le grand axe) :

$$[\varepsilon'] = \begin{vmatrix} \varepsilon'_\perp & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon'_\perp & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon'_\parallel \end{vmatrix}$$

Les grandeurs mesurées (et reliées aux permittivités) à savoir χ et l'angle de phase le sont par rapport à un repère fixe à la cellule, dans ce système fixe et déduit du repère OXYZ lié à la particule par les rotations (θ, φ) . [Fig.(4.7)].

Dans le repère fixe les composantes du vecteur $\vec{D}$ s'écrivent :

$$D_k = \sum_l \varepsilon_{kl} E_l \quad \text{avec} \quad k = X, Y, Z$$

et $\varepsilon_{kl} = \varepsilon_{lk}$

Pour la suite des calculs le tenseur inverse $[\varepsilon]^{-1}$ sera désigné par $[a]$.

4.3.2. Angle d'extinction et birefringence .

Des équations de Maxwell relatives à la propagation d'ondes planes dans un diélectrique, on établit la relation entre $\vec{D}$ et $\vec{E}$

$$\vec{D} = \frac{1}{\mu_0 \omega^2} [\sigma^2 \vec{E} - \sigma (\vec{E} \cdot \vec{\sigma}) \vec{\sigma}]$$

en posant $\vec{\sigma} = \sigma \vec{n}_0$ où $\vec{n}_0$ est un vecteur unitaire dans la direction de propagation

et $\sigma = \frac{\omega}{v}$

$$\vec{D} = \frac{1}{\mu_0 \omega^2} \left[\frac{\omega^2}{v^2} \vec{E} - \frac{\omega^2}{v^2} n_0 (\vec{E} \cdot \vec{n}_0) \vec{n}_0 \right]$$

$$\vec{D} = \frac{1}{\mu_0 v^2} [\vec{E} - n_0 (\vec{E} \cdot \vec{n}_0) \vec{n}_0] = \varepsilon [\vec{E} - n_0 (\vec{E} \cdot \vec{n}_0) \vec{n}_0]$$

$$\vec{D} = \varepsilon [\vec{E} - n_0 (\vec{E} \cdot \vec{n}_0) \vec{n}_0]$$

Projetée sur les axes du repère Oxyz, on obtient trois relations :

$$D_k = \varepsilon [E_k - \alpha_k (\vec{E} \cdot \vec{n}_0)]$$

où $k = x, y, z$ et α_k sont les cosinus directeurs de $\vec{n}_0$.

En introduisant le tenseur inverse $[\varepsilon]^{-1} = [a]$ ces composantes deviennent :

$$D_k = \varepsilon \left[\sum_1 a_{k1} D_1 - \alpha_k (\vec{E} \cdot \vec{n}_0) \right]$$

Cherchons à partir de ces trois relations à établir l'ellipsoïde des indices de ce milieu dont l'intersection par le plan d'onde définira une ellipse dont les axes sont les directions des lignes neutres du milieu .

$$\alpha_k = \frac{1}{\vec{E} \cdot \vec{n}_0} \left[- \frac{D_k}{\varepsilon} + \sum_1 a_{k1} D_1 \right]$$

Multiplions chacune des relations par la composante correspondante de $\vec{D}$.

$$\alpha_k D_k = \frac{1}{\vec{E} \cdot \vec{n}_0} \left[- \frac{D_k^2}{\varepsilon} + D \sum_1 a_{k1} D_1 \right]$$

Mais puisque $\vec{D}$ est perpendiculaire à $\vec{n}_0$, on a :

$$\sum_1 \alpha_k D_k = 0 ;$$

et l'équation devient alors :

$$\sum_k \left[- \frac{D_k^2}{\varepsilon} + D_k \sum_1 a_{k1} D_1 \right] = 0 \quad \text{ou encore :}$$

$$\frac{D^2}{\varepsilon} = \frac{\sum D_k^2}{\varepsilon} = \sum_k D_k \sum_1 a_{k1} D_1$$

$$\frac{D^2}{\varepsilon} = a_{xx} D_x^2 + a_{yy} D_y^2 + a_{zz} D_z^2 + 2a_{xy} D_x D_y + 2a_{xz} D_x D_z + 2a_{yz} D_y D_z$$

$$\frac{1}{\varepsilon} = \sum_k \frac{D_k}{D^2} \sum_1 a_{k1} D_1$$

Comme $D^2 = D_x^2 + D_y^2 + D_z^2$ et $n^2 = x^2 + y^2 + z^2$

on obtient finalement l'équation suivante :

$$1 = \epsilon_0 [a_{xx} x^2 + a_{yy} y^2 + a_{zz} z^2 + 2a_{xy} xy + 2a_{xz} xz + 2a_{yz} yz]$$

L'intersection par le plan de coordonnée $z=0$ conduit à une ellipse que l'on rapporte à ces axes par une rotation d'angle χ .

$$1 = \epsilon_0 [a_{xx} x^2 + a_{yy} y^2 + 2a_{xy} xy]$$

On détermine ainsi la tangente de l'angle d'extinction :

$$\operatorname{tg} 2\chi = \frac{2a_{xy}}{a_{xx} - a_{yy}}$$

Dans ces axes l'ellipse prend la forme simple :

$$[Ax^2 + By^2] = 1$$

où les coefficients A,B sont identifiables respectivement aux permittivités principales ϵ_1 et ϵ_2 .

Après réduction on montre que :

$$\epsilon_{1,2} = \frac{(a_{xx} + a_{yy}) \pm \sqrt{(a_{xx} - a_{yy})^2 + 4a_{xy}^2}}{2(a_{xx}a_{yy} - a_{xy}^2)}$$

Calculons à présent la biréfringence de la particule :

$$n_1^2 - n_2^2 = (n_1 + n_2)(n_1 - n_2) = 2n_m \Delta n$$

où n_m est l'indice moyen du milieu.

$$\Delta n = \frac{1}{n_m} (n_1^2 - n_2^2) = \frac{1}{\epsilon_0 n_m} [\epsilon_1 - \epsilon_2]$$

$$\Delta n = \frac{1}{2\varepsilon_0 n_m} \cdot \frac{\sqrt{(a_{xx} - a_{yy})^2 + 4a_{xy}^2}}{(a_{xx} a_{yy} - a_{xy}^2)}$$

L'échantillon nul était un ensemble de particules d'orientations les expressions de $\text{tg}2\chi$ et Δn devront faire intervenir les valeurs moyennes pondérées par la fonction de distribution des orientations, des éléments du tenseur des permittivités .

$$[\bar{\varepsilon}] = \langle [\varepsilon] \rangle = \iint [\varepsilon] F(\theta, \varphi) \sin\theta d\theta d\varphi$$

4.4 Valeur moyenne de l'angle d'extinction et de l'intensité de la biréfringence

L'équation de l'ellipsoïde des indices établie au paragraphe précédent montre que l'orientation des lignes neutres du milieu est fonction de la cote z du point d'observation. Si l'on admet que le milieu en écoulement peut être considéré comme une superposition de milieux biréfringents identiques d'épaisseur infiniment petite et d'orientation continuellement variable, on utilisera les formules de composition des biréfringents faibles établies par J.Leray [101] et que nous avons généralisées au cas de variation continue.

Auparavant il nous aura fallu exprimer le tenseur des permittivités $[\varepsilon]$ dans le repère fixe OXYZ puisque l'angle d'extinction est repère par rapport à la direction fixe OY parallèle à la tangente à la ligne de courant au point considéré. (La matrice de passage figure en annexe E).

4.4.1 Composition des biréfringents faibles -----

Rappelons brièvement les résultats établis par J.Leray sur la composition des milieux biréfringents faiblement anisotropes.

Soit β_i et δ_i respectivement l'azimut et l'angle de phase du milieu i , le biréfringent résultant de la composition de n milieux est caractérisé par un angle de phase ϕ tels que :

$$\phi^2 = \sum_i (\delta_i \sin(2\beta_i))^2 + \sum_i (\delta_i \cos(2\beta_i))^2$$

$$\text{Tg}2\chi = \frac{\sum_i \delta_i \sin(2\beta_i)}{\sum_i \delta_i \cos(2\beta_i)}$$

où les sommations sont étendues à tous les i variant de 1 à n .

Nous supposerons les variations de δ_i et β_i continues en z de manière à remplacer la sommation discrète par une intégrale étendue à une période axiale du mouvement.

$$\phi^2 = \left[\int_0^T \delta(z) \sin 2\beta(z) dz \right]^2 + \left[\int_0^T \delta(z) \cos 2\beta(z) dz \right]^2$$

$$\text{Tg} 2\chi = \frac{\int_0^T \delta(z) \sin 2\beta(z) dz}{\int_0^T \delta(z) \cos 2\beta(z) dz}$$

Rappelons que la coordonnée z intervient dans les coefficients $a_{n,m,j}$ et $b_{n,m,j}$ de la fonction de distribution F par l'intermédiaire des facteurs A, B, C, D, E définis au paragraphe 4.2.3.

La composition des biréfringents faibles est en fait équivalente à une juxtaposition d'un milieu purement biréfringent et d'un milieu doué de pouvoir rotatoire : nous supposerons cette dernière propriété suffisamment faible pour la négliger dans les calculs.

4.4.2 Angle d'extinction de la solution

Reportons-nous à l'expression de l'angle d'extinction établie au paragraphe 4.3. L'angle χ qui y est défini, s'identifie avec β des formules

précédentes. On calcule ainsi aisément $\sin 2\beta(z)$ et $\cos 2\beta(z)$.

En introduisant les valeurs moyennes des éléments du tenseur des permittivités exprimés dans le repère OXYZ on obtient l'expression théorique de $\text{Tg} 2\chi$.

$$\text{Tg} 2\chi = \frac{2 \int_0^T (\langle \epsilon_{23} \rangle \langle \epsilon_{13} \rangle - \langle \epsilon_{12} \rangle \langle \epsilon_{33} \rangle) / \langle \epsilon_{33} \rangle dz}{\int_0^T (\langle \epsilon_{33} \rangle [\langle \epsilon_{22} \rangle - \langle \epsilon_{11} \rangle] - \langle \epsilon_{23} \rangle^2 + \langle \epsilon_{13} \rangle^2) / \langle \epsilon_{33} \rangle dz}$$

avec

$$\begin{aligned}
\langle \varepsilon_{13} \rangle &= (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \langle \cos \varphi \sin \theta \cos \theta \rangle \\
\langle \varepsilon_{23} \rangle &= (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \langle \sin \varphi \sin \theta \cos \theta \rangle \\
\langle \varepsilon_{12} \rangle &= (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \langle \cos \varphi \sin \varphi \sin^2 \theta \rangle \\
\langle \varepsilon_{33} \rangle &= \varepsilon'_{\parallel} + (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \langle \cos^2 \theta \rangle \\
\langle \varepsilon_{22} \rangle &= (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \langle \sin^2 \varphi \sin^2 \theta \rangle \\
\langle \varepsilon_{11} \rangle &= (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \langle \cos^2 \varphi \sin^2 \theta \rangle
\end{aligned}$$

Les différentes intégrales sont évaluées et on obtient :

$$\begin{aligned}
\langle \varepsilon_{13} \rangle &= - \frac{2\pi}{5} (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \sum_j b^j a_{2,1,j} \\
\langle \varepsilon_{23} \rangle &= - \frac{2\pi}{5} (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \sum_j b^j b_{2,1,j} \\
\langle \varepsilon_{12} \rangle &= - \frac{8\pi}{5} (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \sum_j b^j b_{2,2,j} \\
\langle \varepsilon_{33} \rangle &= \varepsilon'_{\parallel} + \frac{1}{3} (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) + \frac{8\pi}{15} (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \sum_j b^j a_{2,0,j} \\
\langle \varepsilon_{22} \rangle - \langle \varepsilon_{11} \rangle &= - \frac{16\pi}{5} (\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}) \sum_j b^j a_{2,2,j}
\end{aligned}$$

Evaluons l'importance des différents termes apparaissant dans l'expression de $Tg2\chi$.

L'intensité de la biréfringence présentée par les solutions étudiées est faible, il s'ensuit que la différence $\varepsilon'_{\perp} - \varepsilon'_{\parallel}$ est petite devant l'une ou l'autre des permittivités. Un terme tel que $\langle \varepsilon_{33} \rangle$ est donc très voisin de $\varepsilon'_{\parallel}$, d'autant plus que $\sum a_{2,0,j} < 1$.

D'autre part les expériences ont lieu en régime dilué, la concentration en particules est faible donc également la fraction volumique ϕ .

Ces considérations permettent de supposer que:

$$\frac{\langle \varepsilon_{23} \rangle \langle \varepsilon_{13} \rangle}{\langle \varepsilon_{33} \rangle} \ll \langle \varepsilon_{12} \rangle$$

et $\langle \epsilon_{22} \rangle - \langle \epsilon_{11} \rangle < \langle \epsilon_{23} \rangle^2$ ou $\langle \epsilon_{13} \rangle^2$

Nous obtenons ainsi une expression approchée de l'angle d'extinction:

$$\text{Tg}2\chi = \frac{2 \int_0^T \langle \epsilon_{12} \rangle dz}{\int_0^T [\langle \epsilon_{11} \rangle - \langle \epsilon_{22} \rangle] dz}$$

$$\text{Tg}2\chi = \frac{\int_0^T \sum b^j b_{2,2,j} dz}{\int_0^T \sum b^j a_{2,2,j} dz}$$

Par comparaison avec le résultat obtenu en écoulement de Couette classique, on constate que l'angle d'extinction correspondant à l'écoulement de Taylor est obtenu par intégration le long de l'axe vertical z du résultat classique.

4.4.3 Intensité de la biréfringence

L'angle de phase du milieu s'écrit d'après 4.4.1

$$\phi^2 = \left[\int_0^T \delta(z) \sin 2\beta(z) dz \right]^2 + \left[\int_0^T \delta(z) \cos 2\beta(z) dz \right]^2$$

Par une méthode analogue à celle développée pour le calcul de l'angle d'extinction, on montre que :

$$\Delta n = \frac{1}{2L\epsilon_0 N_M} \left[\left[\int_0^T \frac{2(\langle \epsilon_{13} \rangle \langle \epsilon_{23} \rangle - \langle \epsilon_{12} \rangle \langle \epsilon_{33} \rangle)}{\langle \epsilon_{33} \rangle} dz \right]^2 + \left[\int_0^T \frac{\langle \epsilon_{33} \rangle [\langle \epsilon_{22} \rangle - \langle \epsilon_{11} \rangle] + \langle \epsilon_{13} \rangle^2 - \langle \epsilon_{23} \rangle^2}{\langle \epsilon_{33} \rangle} dz \right]^2 \right]^{1/2}$$

En ne conservant que les termes du 1^{ère} ordre en Φ on obtient

$$\Delta n = \frac{1}{2L\epsilon_0 n_m} \left[\left[\int_0^T 4\langle \epsilon_{12} \rangle dz \right]^2 + \left[\int_0^T [\langle \epsilon_{22} \rangle - \langle \epsilon_{11} \rangle] dz \right]^2 \right]^{1/2}$$

$$\Delta n = \text{const.} \left[\left[\int_0^T \Sigma b_{2,2,j} dz \right]^2 + \left[\int_0^T \Sigma a_{2,2,j} dz \right]^2 \right]^{1/2}$$

$$\text{où const} = \frac{1}{2L\epsilon_0 n_m} \left[\frac{16\pi}{5} \right] (\epsilon'_\perp - \epsilon'_\parallel)$$

A nouveau Δn revêt une forme similaire à celle correspondant au régime laminaire de Couette.

Examinons à nouveau les expressions complètes de $Tg2\chi$ et Δn . La valeur moyenne $\langle \epsilon_{33} \rangle$ contient la permittivité perpendiculaire $\epsilon'_\perp$ ainsi que la différence $\epsilon'_\perp - \epsilon'_\parallel$. La théorie, établie en écoulement de Couette, conduit à la différence des permittivités principales $\epsilon'_\perp - \epsilon'_\parallel$. Il apparaît donc que les mesures de l'angle d'extinction et l'intensité de la biréfringence effectuées en écoulement de Taylor permettent d'atteindre, du moins en théorie, les permittivités principales de la particule en solution.

En fait, comme nous l'avons vu, la concentration des solutions en particules est très faible et, dans les expressions de $Tg2\chi$ et Δn la valeur moyenne $\langle \epsilon_{33} \rangle$ n'apparaît que dans des termes d'importance négligeable.

4.5 Confrontation avec les résultats expérimentaux

La complexité des expressions de $Tg2\chi$ et Δn établies précédemment enlève tout espoir d'obtenir une forme analytique simple à manipuler pour l'une ou l'autre des deux grandeurs.

Aussi, afin d'être en mesure de tracer les courbes théoriques de l'angle d'extinction et de Δn procéderons-nous de la manière suivante. Le champ des vitesses est déterminé au-delà de la transition écoulement de Couette-tourbillons de Taylor en supposant que les équations linéaires restent applicables dans ce domaine. Pour ce faire, on impose les valeurs du gradients de cisaillement G (en fait ce sont les valeurs utilisées au cours des mesures); à chacune de ces valeurs correspond un nombre de Taylor déterminé. On calcule alors à l'aide de la courbe de stabilité marginale [figure (4.3)] les valeurs correspondantes de a .

En fait, à chaque valeur de T correspondent deux valeurs de a (de part et d'autre de a_c) qui annule le déterminant du système homogène obtenu en appliquant les conditions aux limites en $x = 1$ [paragraphe 4.1] .Le choix de $a > a_c$ ou $a < a_c$ reste à discuter bien que Donnelly [98] opte plutôt pour la solution $a < a_c$.

Pour chaque couple (a, T) donné, on calcule ensuite les composantes u, v, w ainsi que leur dérivée première en tout point de l'espace annulaire. Les trois relations de récurrence sont alors utilisées pour calculer les coefficients a_{ij} et b_{ij} . Le nombre de termes inclus dans les séries figurant dans les expressions de $Tg2\chi$ et Δn dépend du critère de convergence choisi : on vérifie en fait que l'ajout d'un $(j + 1)^{ième}$ terme n'entraîne pas de variation de la somme supérieure à une limite imposée.

Une intégration sur z est ensuite effectuée pour tenir compte de la variation continue des propriétés optiques dans la direction axiale. Pour ce calcul, douze points d'intégration sont suffisants pour assurer une intégration numérique satisfaisante.

Nous avons vu que les composantes de la perturbation u , v , w sont définies à une constante multiplicative près. Nous disposons donc d'un paramètre que l'on nommera facteur d'échelle c et qui nous permettra d'ajuster au mieux les résultats théoriques aux valeurs expérimentales. Enfin le coefficient de diffusion de rotation D_r a la valeur déterminée expérimentalement.

Des mesures expérimentales ont été effectuées avec des solutions de xanthane qui présentent un comportement non-newtonien dans le domaine de gradient utilisé. Nous ne tenterons donc pas de comparer ces résultats expérimentaux avec les courbes théoriques obtenues pour des solutions newtoniennes de particules allongées.

L'étude expérimentale n'en reste pas moins intéressante puisqu'elle laisse apparaître un comportement semblables des propriétés optiques des deux types de liquide.

Nous examinerons successivement le comportement des grandeurs dynamo-optiques au centre de l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et du facteur d'échelle, puis l'évolution de ces mêmes grandeurs en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différents gradients et facteur d'échelle.

4.5.1 Solution de bentonite : courbes théoriques

Le facteur de forme b de la particule vaut ~ 1 et le coefficient de diffusion $D_r = 1.4$.

Pour les solutions de bentonite, le choix $a < a_c$ conduit à des résultats en accord qualitatif avec les courbes expérimentales.

Examinons en premier lieu, l'évolution de l'angle d'extinction et du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ au centre de l'espace annulaire en fonction du gradient G [Figures (4.10.a) et (4.10.b)].

En donnant au facteur d'échelle différentes valeurs voisines de 0.05, on obtient un faisceau de courbes dont l'une concorde de manière étonnante avec la courbe expérimentale correspondante [cf. fig(3.12.a)].

On retrouve , à partir du calcul théorique de l'angle d'extinction la forme en " dos d'ane " de la courbe $\chi(G)$ avec une amplitude qui est fonction du facteur d'échelle choisi.

De la même manière l'allure des courbes du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de G est en étroit accord qualitatif avec les courbes expérimentales (3.12.b) pour les facteurs d'échelle $c = 0.05$.

L'amplitude du "dos d'ane" théorique est de l'ordre de 1 à 2° , valeur tout à fait comparable au résultat expérimental. L'élargissement (c.a.d. la distance en sec^{-1} entre les intersections avec la courbe théorique) est sensiblement plus faible que la valeur expérimentale qui vaut environ 15 sec^{-1} pour un entrefer de 2 mm ..

Les mêmes courbes tracées pour $a > a_c$ conduisent à des résultats en désaccord avec les courbes expérimentales (Courbes en traits discontinus sur les figures 4.10.a et b correspondant au facteur d'échelle $c = 0.05$).

Examinons à présent l'évolution de χ et de $F(\sigma, b)$ dans l'espace annulaire pour différents gradients et facteurs d'échelle.

La première étude concernera le cas $a < a_c$ et les courbes correspondantes sont représentées sur les figures (4.11.a.b.c.d) et (4.12.a.b).

Au fur et à mesure que G croît , l'importance des composantes u, v, w de la perturbation croît et l'on assiste à une déformation des courbes $\chi(x)$ de la forme parabolique correspondant aux valeurs de G proches de G_c vers une forme plus tourmentée présentant un maximum de part et d'autre du minimum approximativement central.

On remarque également que cette déformation apparaît pour un gradient d'autant plus faible que le facteur d'échelle est grand (C croît de 4.11.a vers 4.11.d).

L'accord qualitatif avec les courbes expérimentales est tout à fait satisfaisant et les abscisses des maxima ($- 0.5$ et 1.5 sec^{-1}) se

retrouvent sensiblement sur les deux courbes 4.11b et 3.15.a.

Nous remarquons également et principalement sur les figures 4.11.b.c.d , qu'au voisinage de ces maxima , l'angle χ varie peu quel que soit la valeur du gradient [hormis peut être pour les deux dernières valeurs de G lorsque le facteur d'échelle vaut 0.04 cf. figure (4.11.b)] ; nous en concluons que dans ces deux régions de l'entrefer l'orientation moyenne des particules est voisine de celle qu'elles acquièrent en écoulement de Couette classique.

Les variations du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ pour les mêmes valeurs du gradient sont reportées sur les figures 4.12.a et b.

L'allure générale présentée par ces courbes s'apparente assez bien aux résultats expérimentaux [Fig (3.15.b)] au voisinage du centre de l'entrefer où les courbes présentent un minimum , mais s'en écarte notablement près des parois. En effet , les mesures expérimentales prévoient un accroissement sensible de la biréfringence près des parois alors que les résultats théoriques montrent tout au plus des valeurs égales du facteur d'orientation au voisinage des parois et ceci, lorsque le facteur d'échelle vaut 0.04 [Fig(4.12.a)].

Si l'on se reporte à nouveau aux courbes (4.11.c) qui correspondent au facteur d'échelle 0.05 , on constate qu'aux domaines dans lesquels les maxima centraux sont voisins correspondent , sur les courbes (4.12.b) deux domaines similaires dans lesquels le facteur d'orientation varie peu, tandis qu'au centre de l'entrefer où $F(\sigma, b)$ varie notablement , on retrouve les mêmes variations importantes de χ . Ces résultats sont conformes à l'hypothèse d'orientation des particules par le champ hydrodynamique.

4.5.2 Solutions de V.M.T. : courbes théoriques

Des tracés tout à fait similaire à ceux effectués pour la bentonite ont été réalisés pour le V.M.T.

Le facteur de forme de la particule vaut + 1 (particule très allon-

gée) et le coefficient de diffusion D_r , déterminé expérimentalement vaut 16 sec^{-1} .

Le choix de $a < a_c$ ou $a > a_c$ est arbitraire et nous examinerons les résultats obtenus pour les solutions.

Les variations de l'angle d'extinction au centre de l'entrefer en fonction du gradient et pour différentes valeurs du facteurs d'échelle sont reportées sur la figure (4.13.a). Les résultats expérimentaux correspondants figurent sur les courbes (3.14.a).

Dans l'hypothèse $a > a_c$ on remarque à nouveau une similitude de comportement assez remarquable entre la théorie et l'expérience : au delà de G_c , l'angle χ décroît pour toutes les valeurs du facteur d'échelle, évolution identique à celle de la courbe expérimentale. Les résultats obtenus dans l'hypothèse $a < a_c$ (courbes en pointillés) ne sont pas fondamentalement différent des autres, examinons de fait l'évolution de $F(\sigma, b)$ [Fig (4.13.b) et (3.14.b)].

Si l'on adopte la solution $a < a_c$, pour toutes les valeurs du facteur de forme c , $F(\sigma, b)$ conserve pratiquement la même valeur que la valeur correspondante du régime de Couette représentée par les symboles $\circ$ (courbe en pointillé). Ces résultats sont en désaccord avec les résultats expérimentaux.

En ce qui concerne l'évolution en fonction de la position dans l'espace annulaire, la comparaison avec les courbes expérimentales est plutôt décevante.

Les figures (4.14.a et b) ainsi que (4.16) se rapportent aux variations de l'angle d'extinction respectivement pour $a > a_c$ et $a < a_c$. Pour la première série, on assiste, à mesure que G croît à une déformation des courbes $\chi(x)$ vers une forme présentant un minimum central ainsi que le montrent les courbes expérimentales (3.17.a). Par contre, si l'on choisit l'option $a > a_c$ [Fig(4.16)] la forme des courbes $\chi(x)$ reproduit bien celle des courbes expérimentales, mais

le maximum central disparaît pour toutes les valeurs du gradient et du facteur d'échelle choisies.

La figure (4.16) représentent les variations de χ pour $c = 0.05$ jusqu'à des valeurs de $G = 60 \text{ sec}^{-1}$: la forme des courbes théoriques restent parabolique alors qu'expérimentalement on constate l'apparition du minimum vers 50 sec^{-1} .

Si l'on modifie le facteur c (courbe en traits discontinus ---- pour $c = 0.04$,en discontinus alternés - - - pour 0.02 et en pointillés pour 0.07), l'allure générale est conservée pour tous les gradients. De la même manière ,lorsque l'on diminue le coefficient de diffusion D_r [Fig(4.17)] , la déformation progressive vers la forme à minimum central apparaît ,à gradient égal ,d'autant plus rapidement que D_r est petit. La même constatation se dégage de l'étude des courbes obtenues en jouant sur le facteur d'échelle pour D_r donné (10 sec^{-1}) : une augmentation du facteur d'échelle conduit à l'apparition du minimum central pour un gradient plus faible.

Les variations du facteur d'orientation $F(\sigma,b)$ s'accordent assez mal avec les courbes expérimentales (3.17.b).

Lorsque l'on choisit $a > a_c$ les courbes (4.15.a) et (4.15.b) ne confirment les résultats expérimentaux qu'au voisinage des parois près desquelles $F(\sigma,b)$ croît lorsque G croît .Au centre les résultats sont contradictoires .

Pour l'autre hypothèse $a < a_c$ [Fig(4.17)] la théorie prévoit l'opposé de ce qu'avance l'expérience et ceci quel que soit le coefficient de diffusion et le facteur d'échelle c choisis.

Nous avons vu que la théorie linéaire propose deux valeurs du facteur a qui est lié à la périodicité en z de l'écoulement de Taylor et il est possible que le choix de l'une ou l'autre des deux valeurs pour l'étude théorique soit conditionné par la forme des particules en solution.

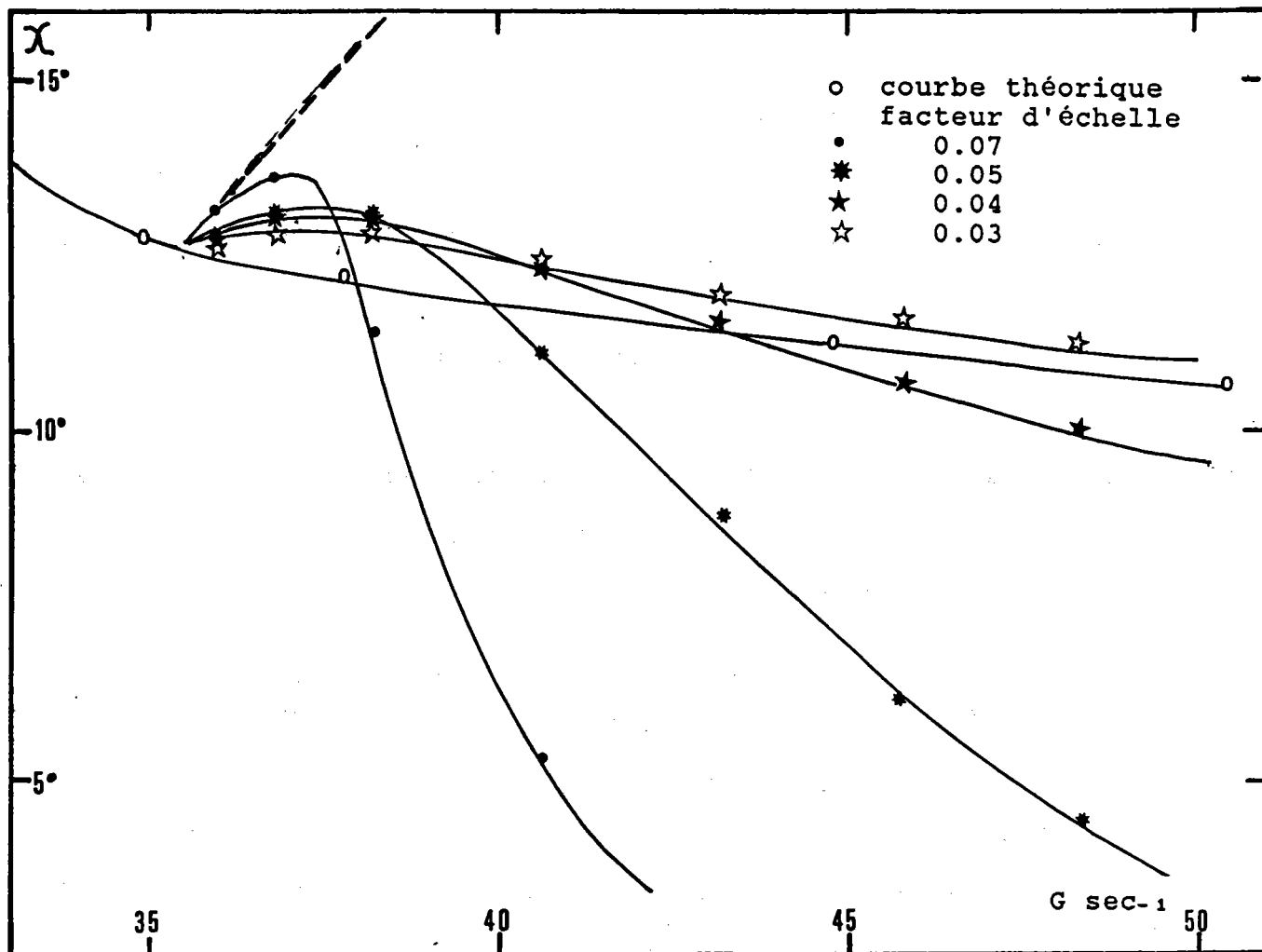


Fig. 4.10.a: Solution de bentonite .Centre de l'espace annulaire
 Variation de l'angle d'extinction en fonction
 du gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle.
 ($a < a_c$ en traits pleins ; $a > a_c$ en pointillés)

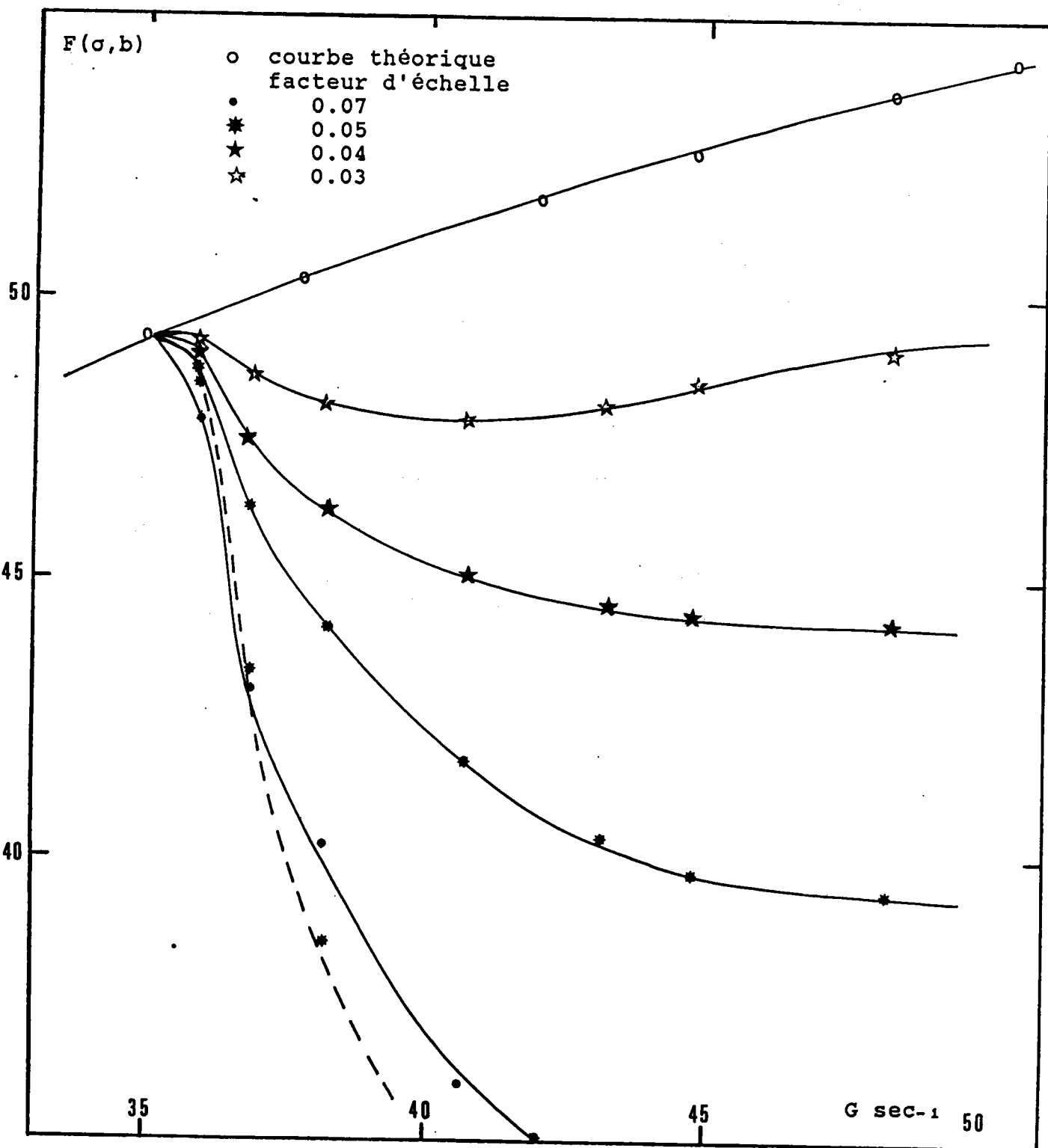


Fig.4.10.b : Solution de bentonite .Centre de l'espace annulaire
 Variation du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction du
 gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle.
 ($a < a_c$ en traits pleins , $a > a_c$ en pointillés)

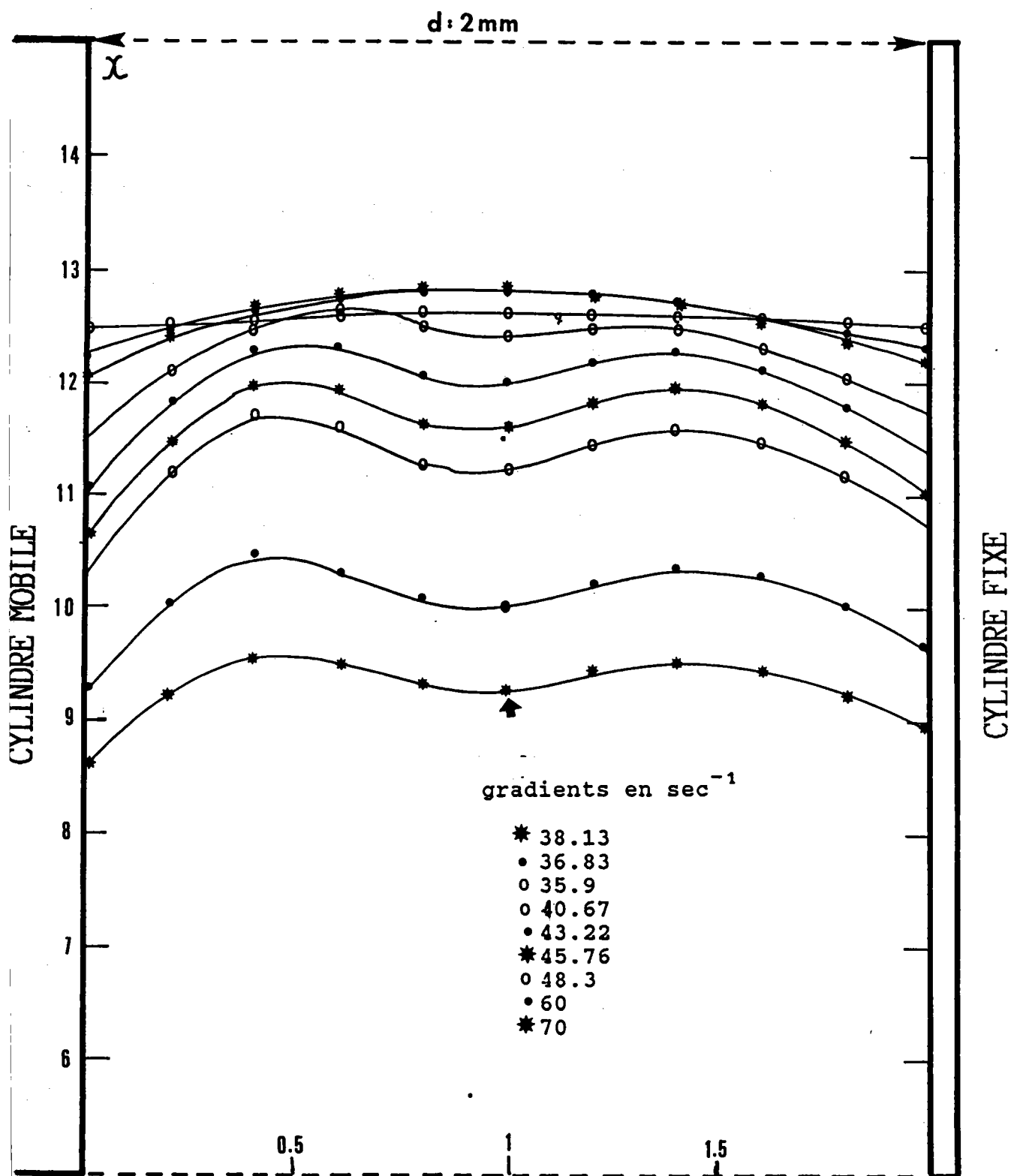


Fig.4.11.a : Solution de bentonite
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .03

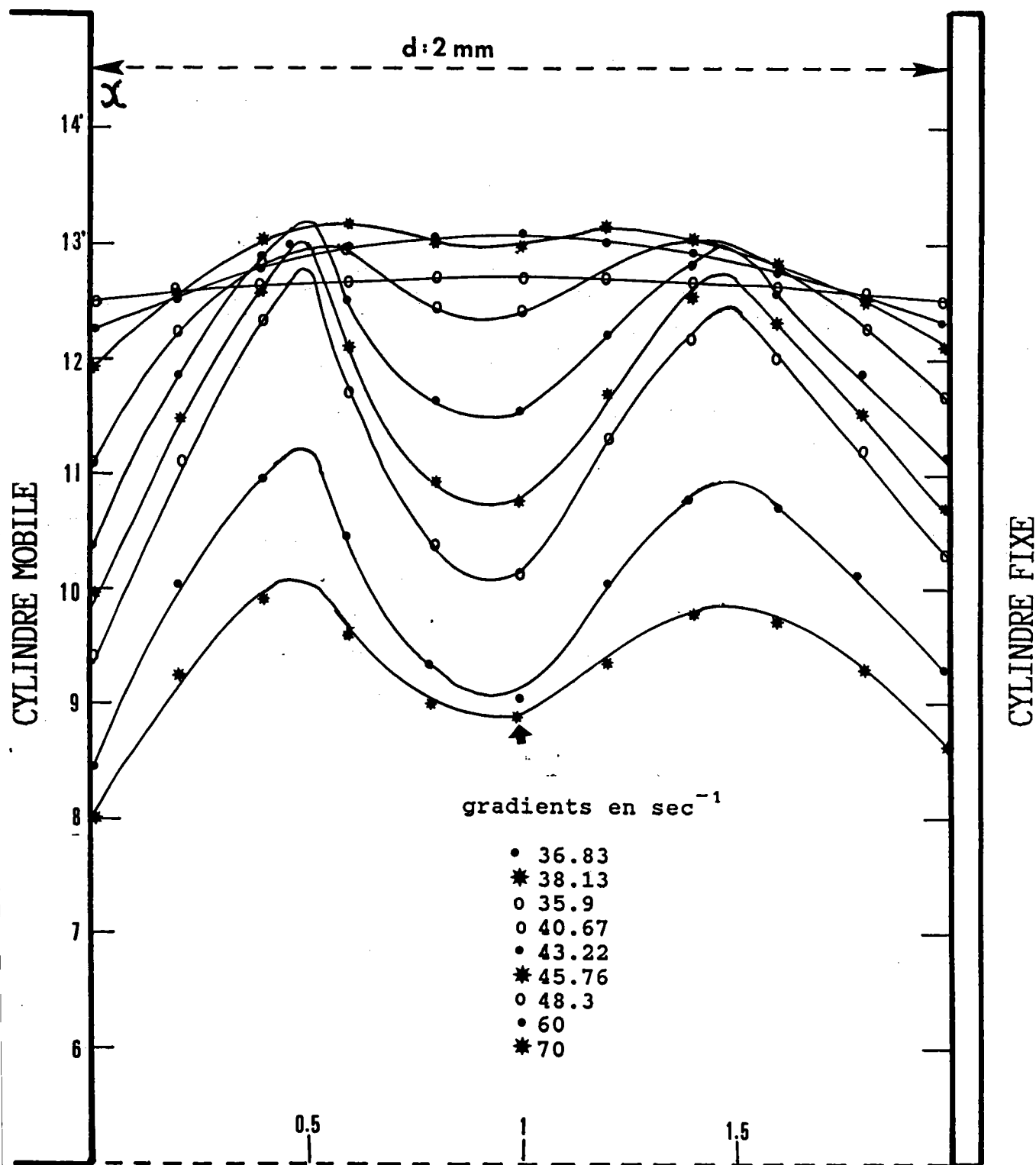


Fig.4.11.b : Solution de bentonite
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .04

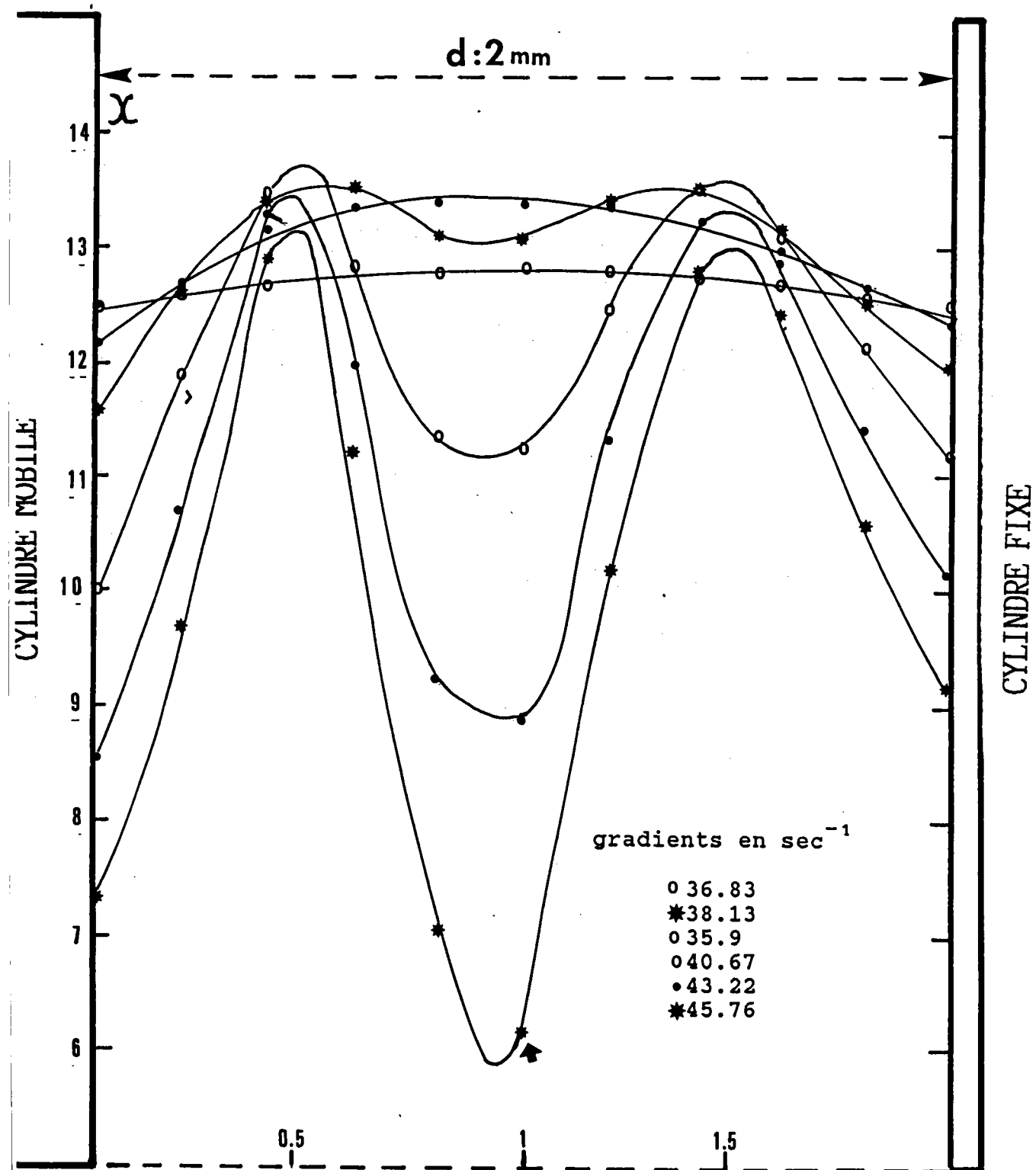


Fig.4.11.c : Solution de bentonite

Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05

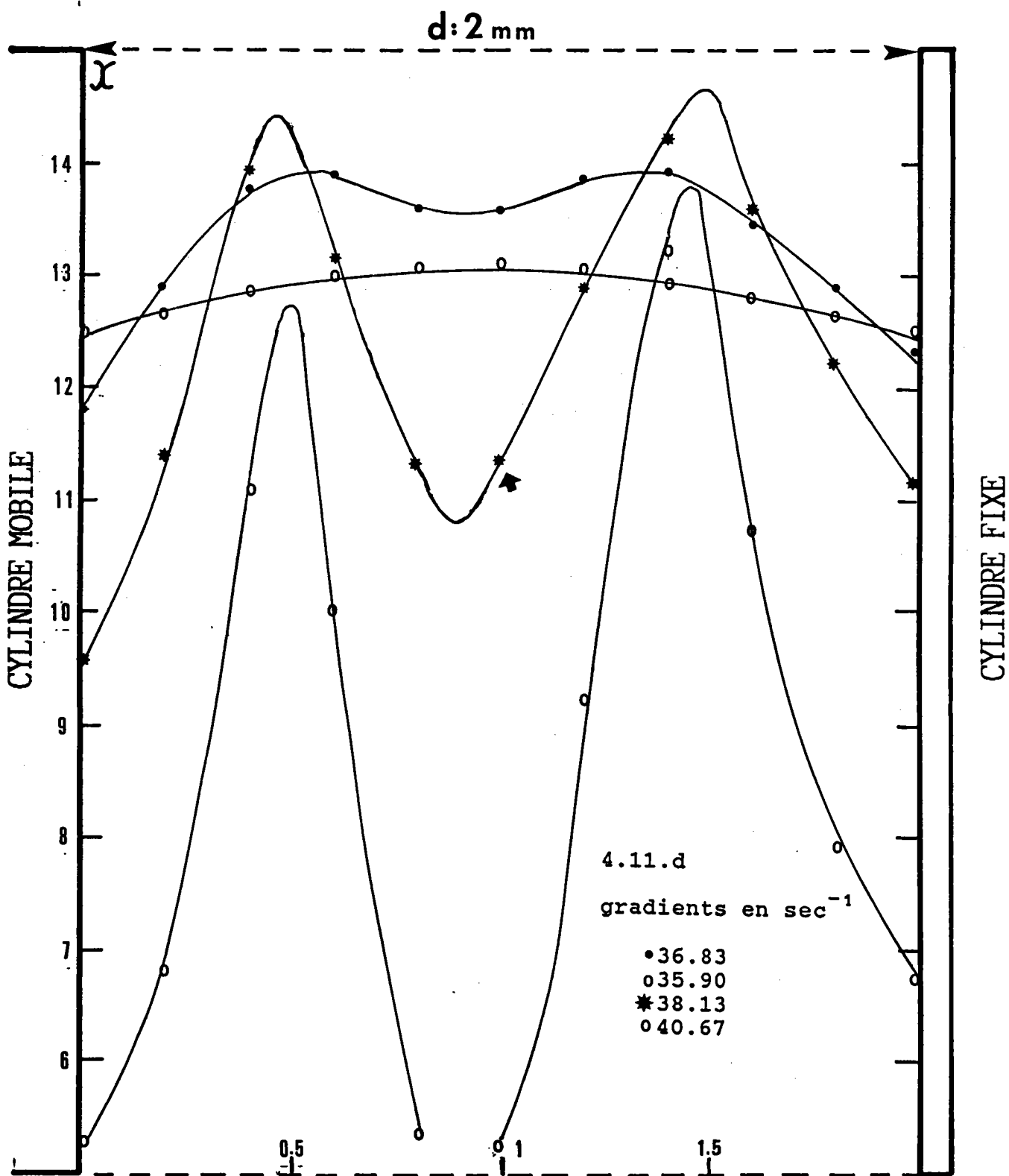


Fig.4.11.d : Solution de bentonite

Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .07

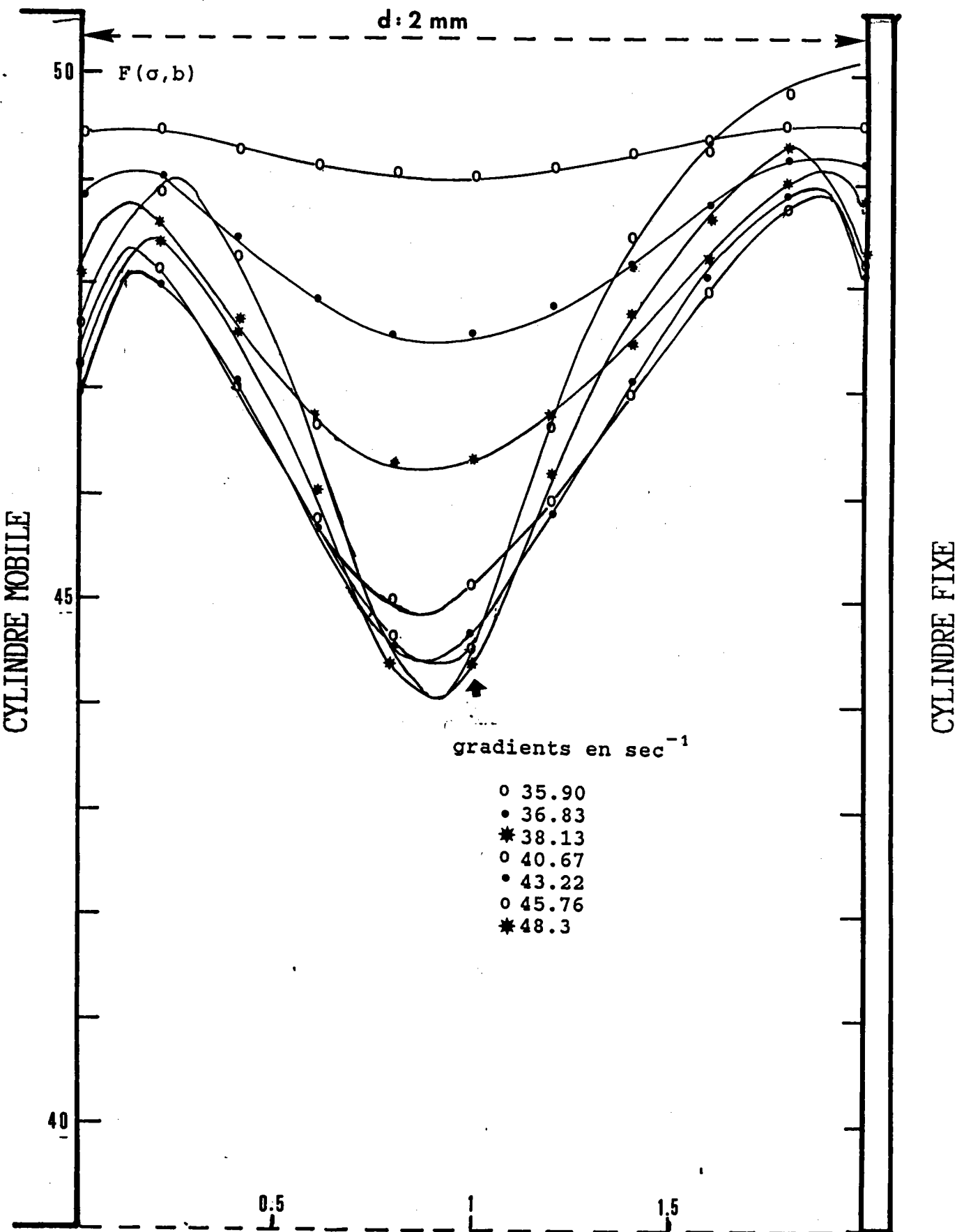


Fig.4.12.a : Solution de bentonite
 Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .04

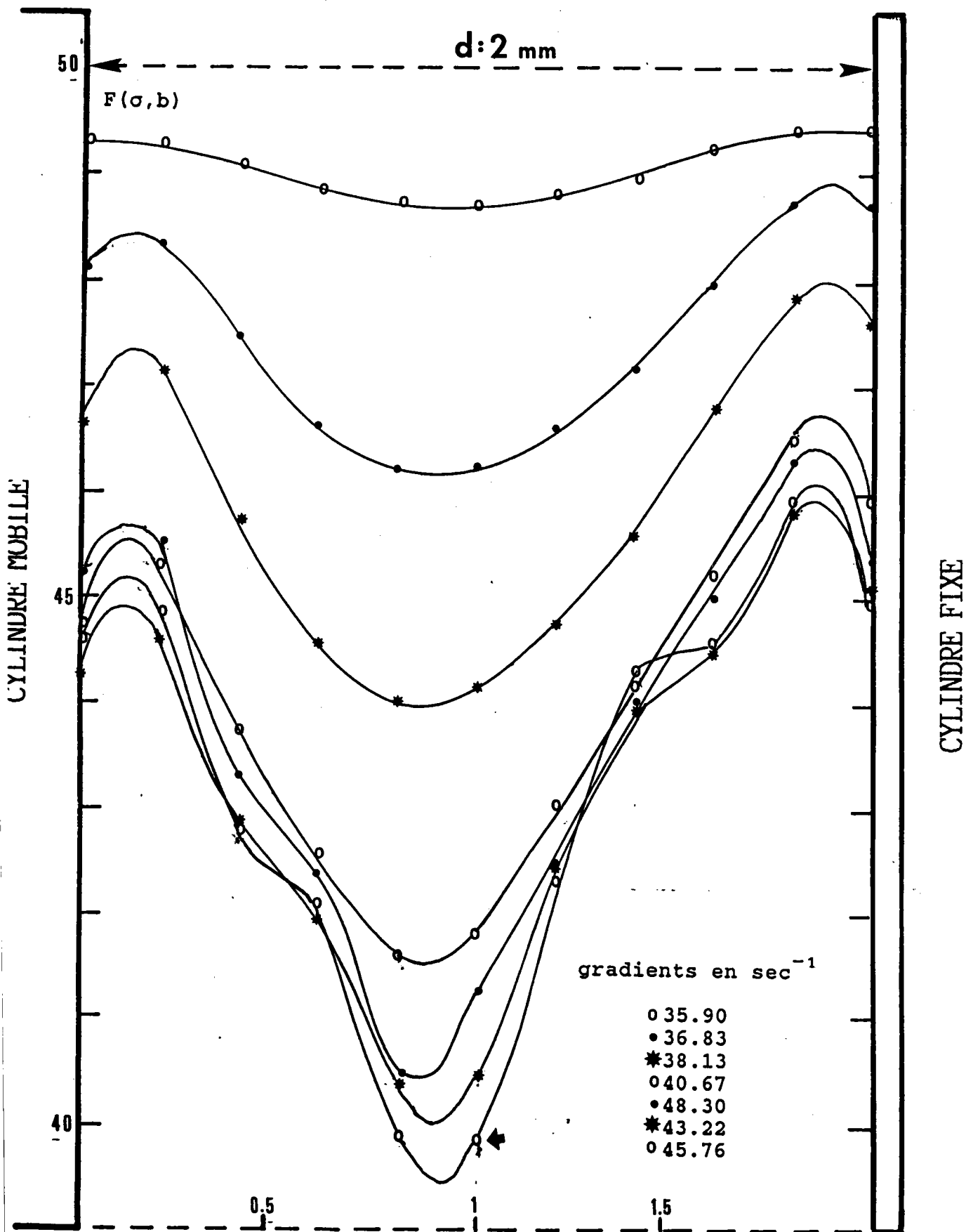


Fig.4.12.b : Solution de bentonite

Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05

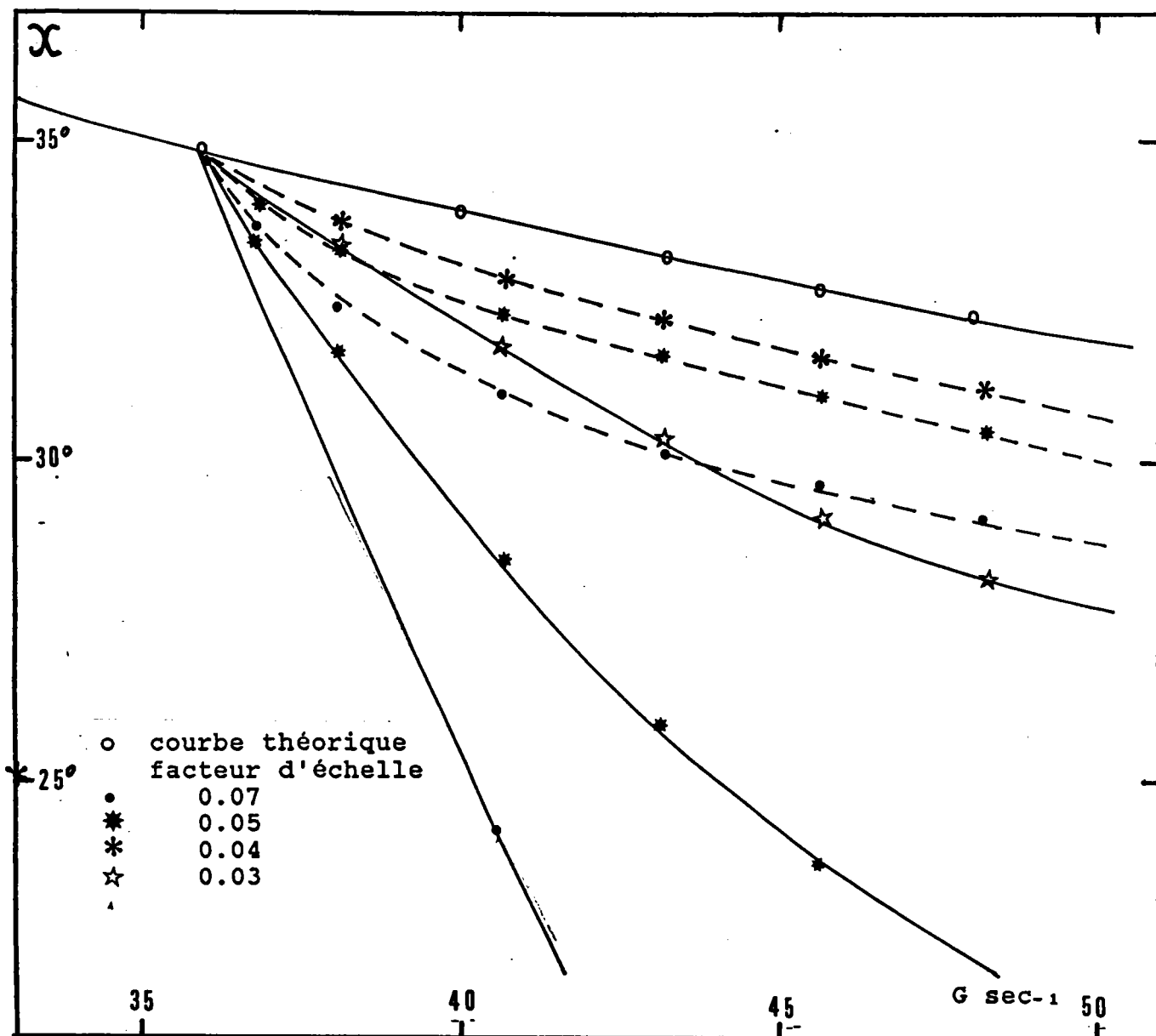


Fig. 4.13.a: Solution de V.M.T. Centre de l'espace annulaire
 Variation de l'angle d'extinction en fonction
 du gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle.
 ($a > a_c$ en traits pleins, $a < a_c$ en pointillés)

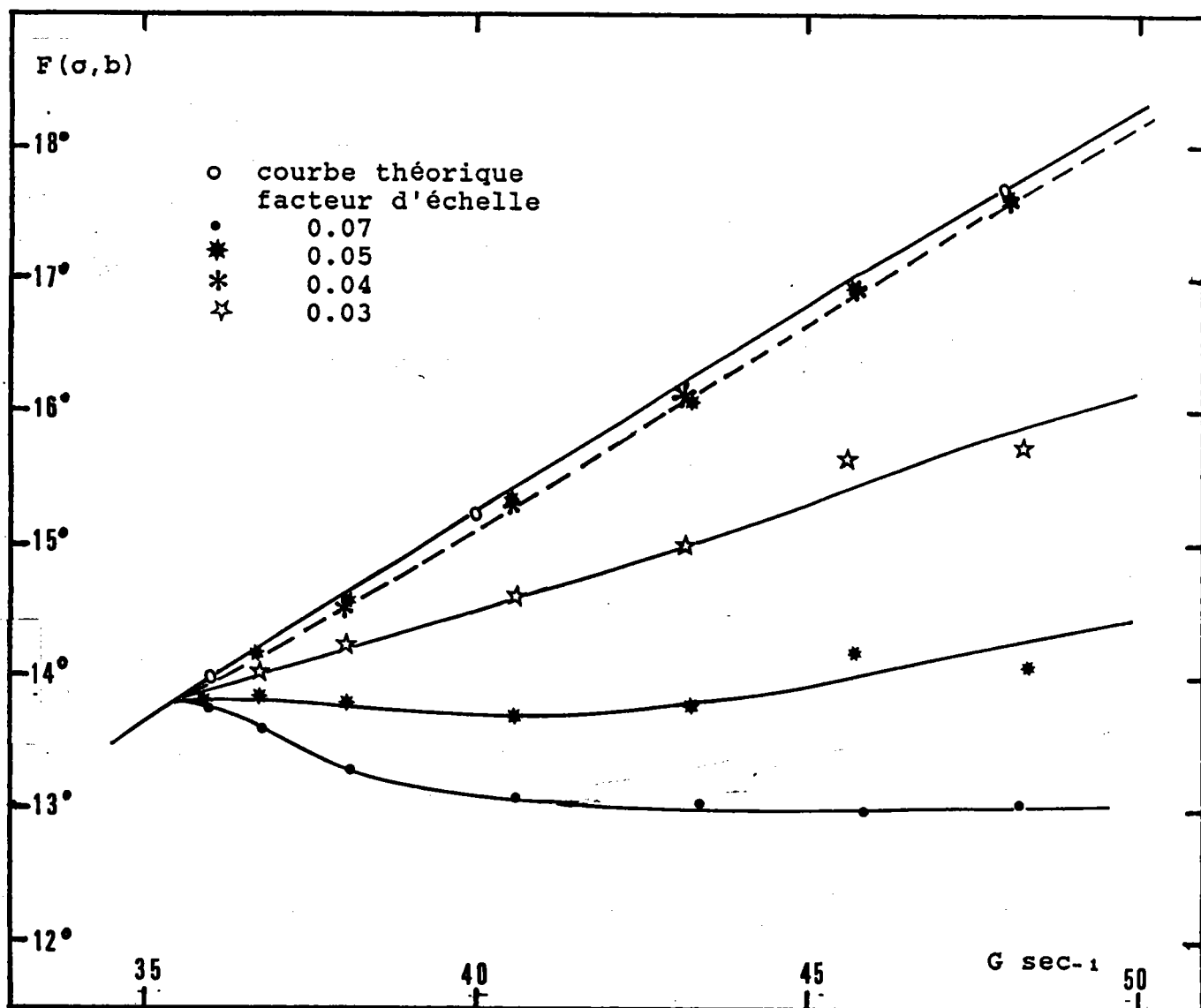


Fig.4.13.b : Solution de V.M.T Centre de l'espace annulaire
Variation du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction du
gradient pour différentes valeurs du facteur d'échelle.
($a > a_c$ en traits pleins , $a < a_c$ en pointillés)

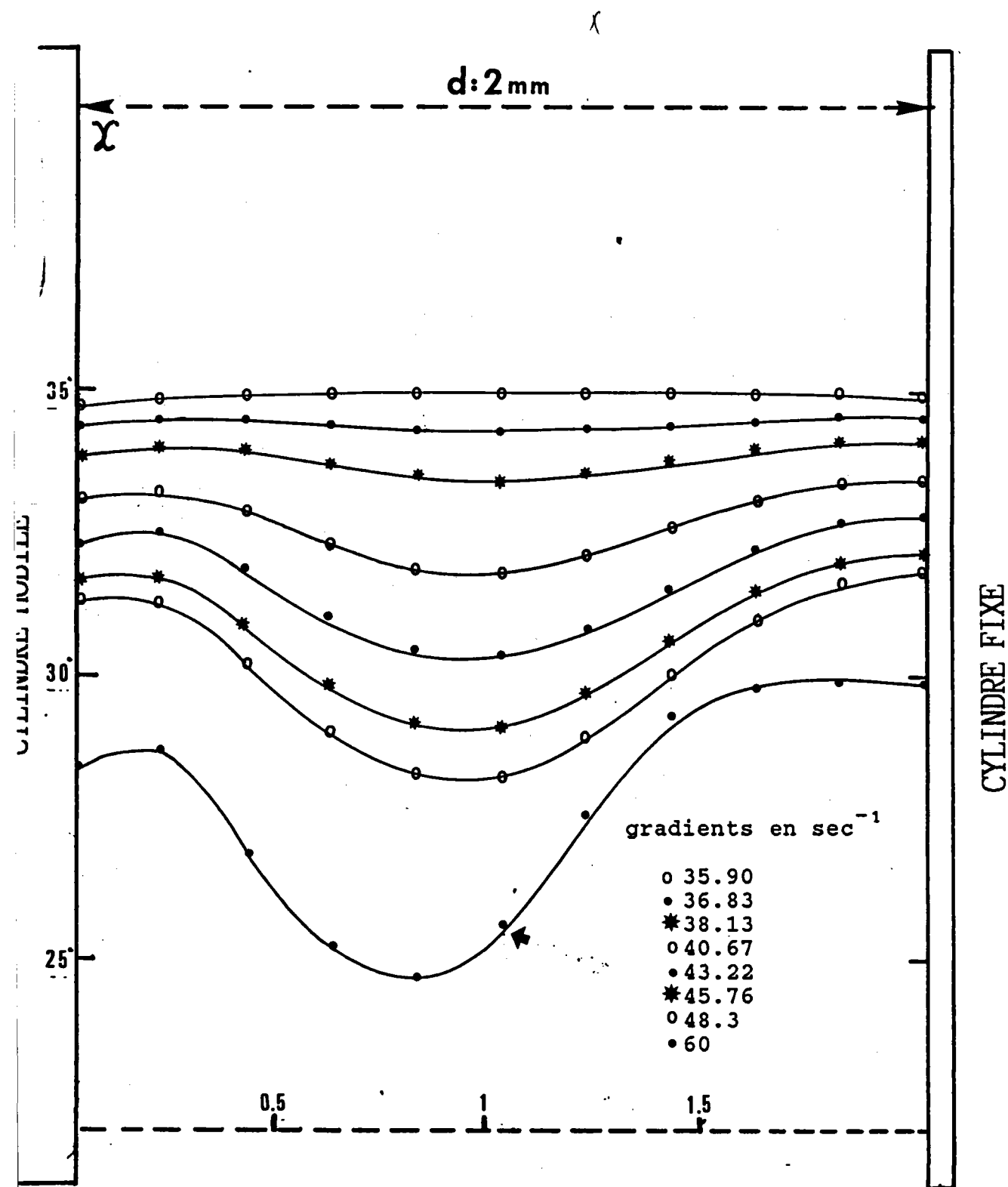


Fig.4.14.a : Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .03

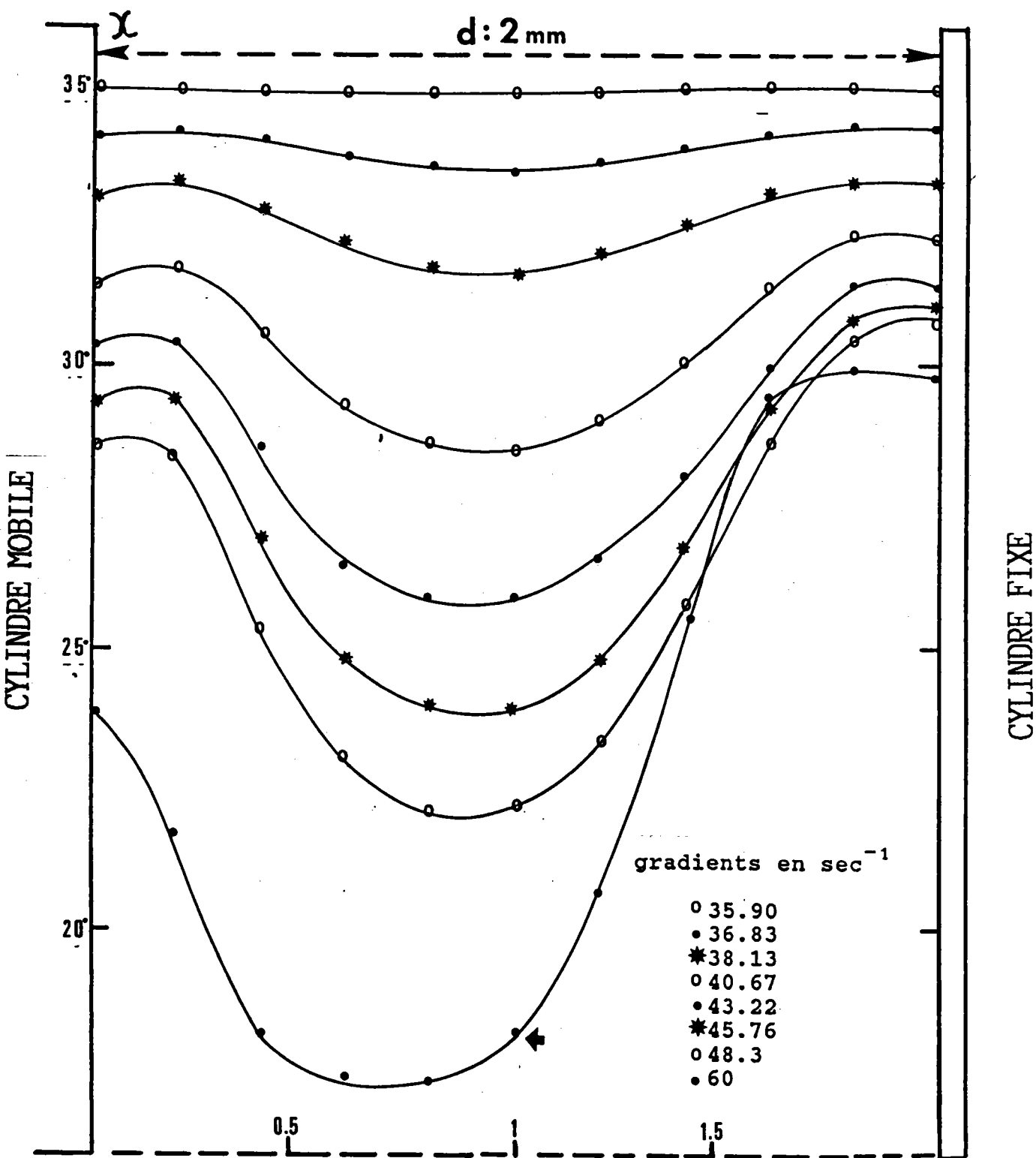


Fig.4.14.b : Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05

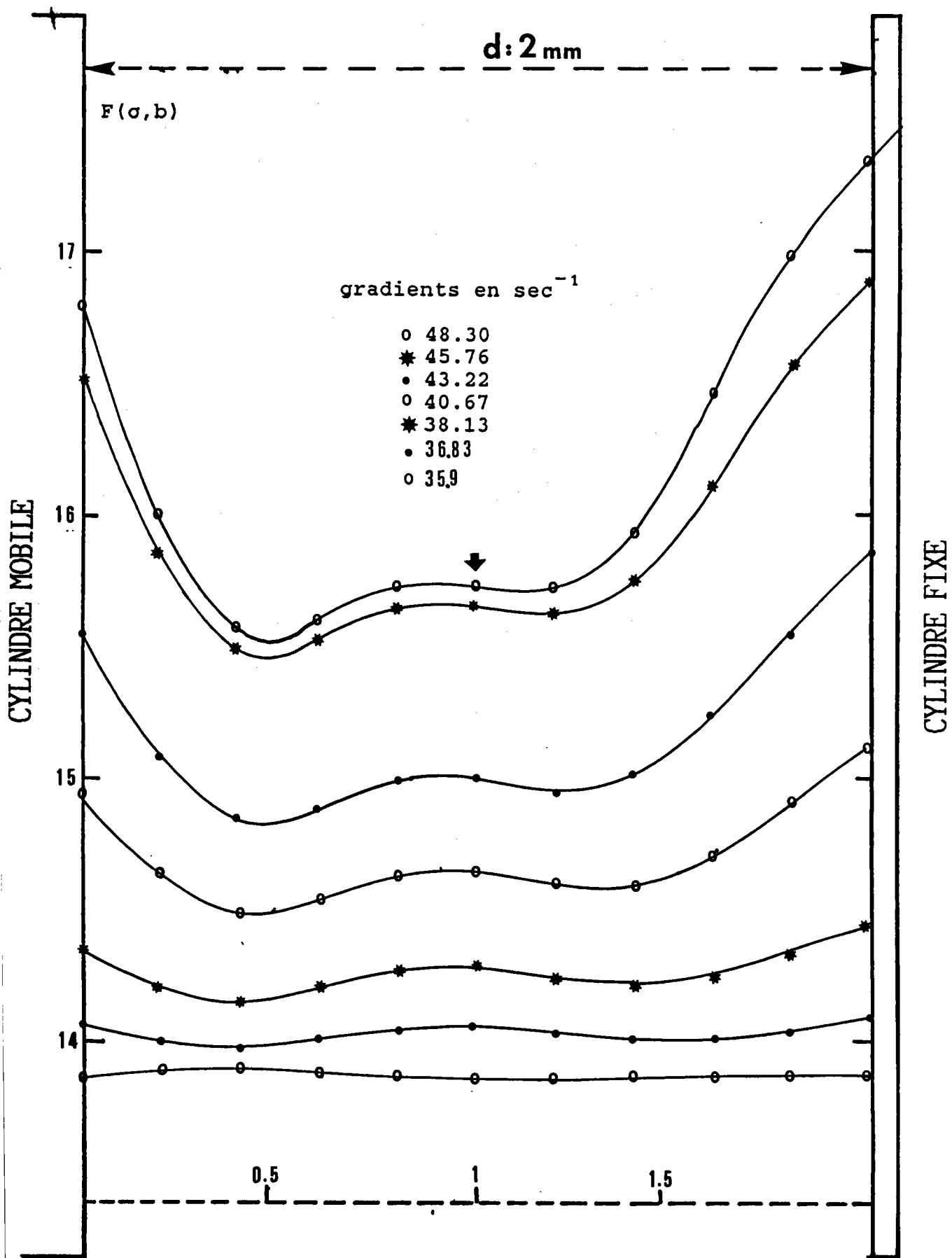


Fig.4.15.a : Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$
 Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .03

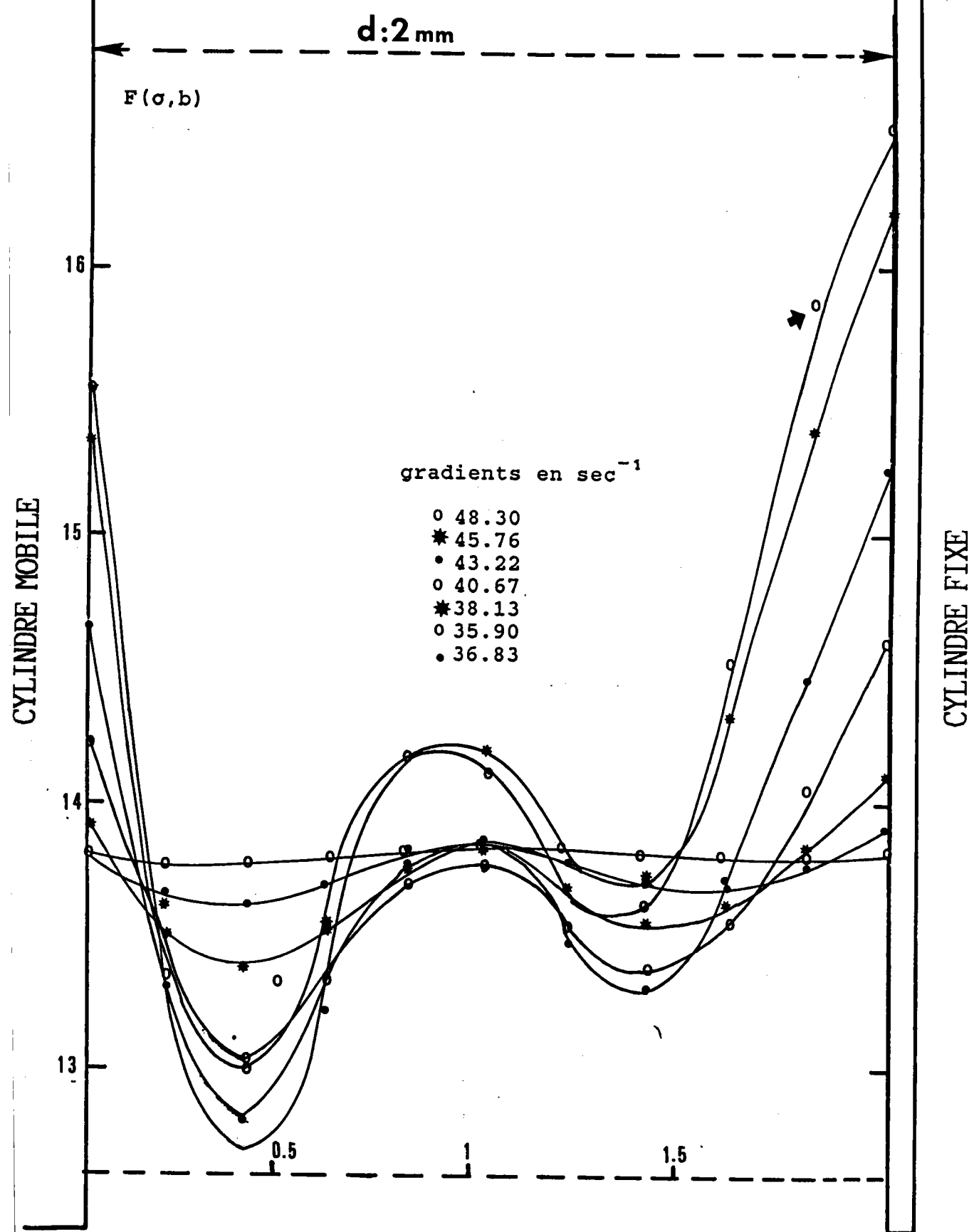


Fig.4.15.b : Solution de V.M.T. Cas : $a > a_c$
 Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour un facteur d'échelle = .05

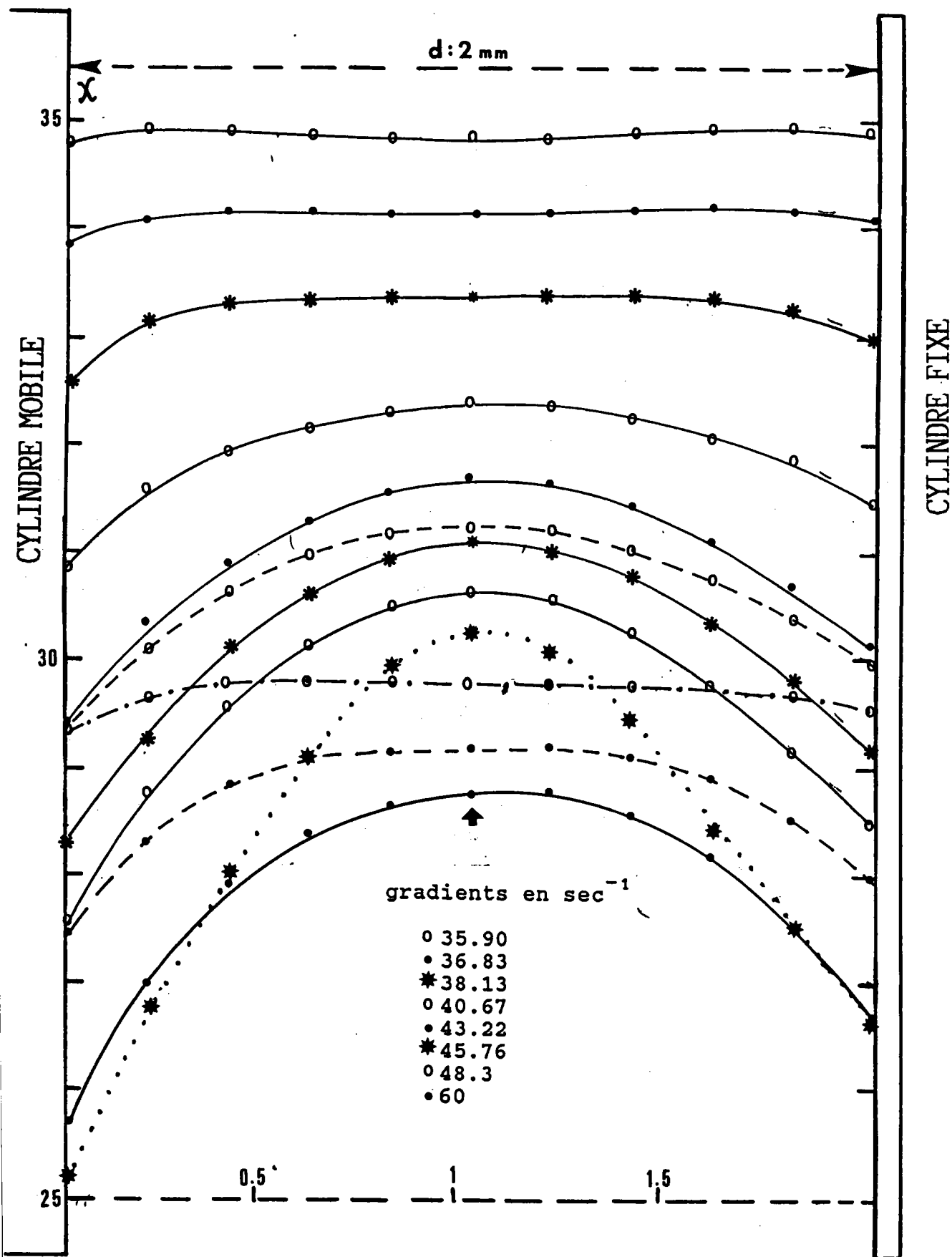


Fig.4.16 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différents facteurs d'échelle .
 : 0.07 ; — : 0.05 ; ---- : 0.04 ; -.-.- : 0.02

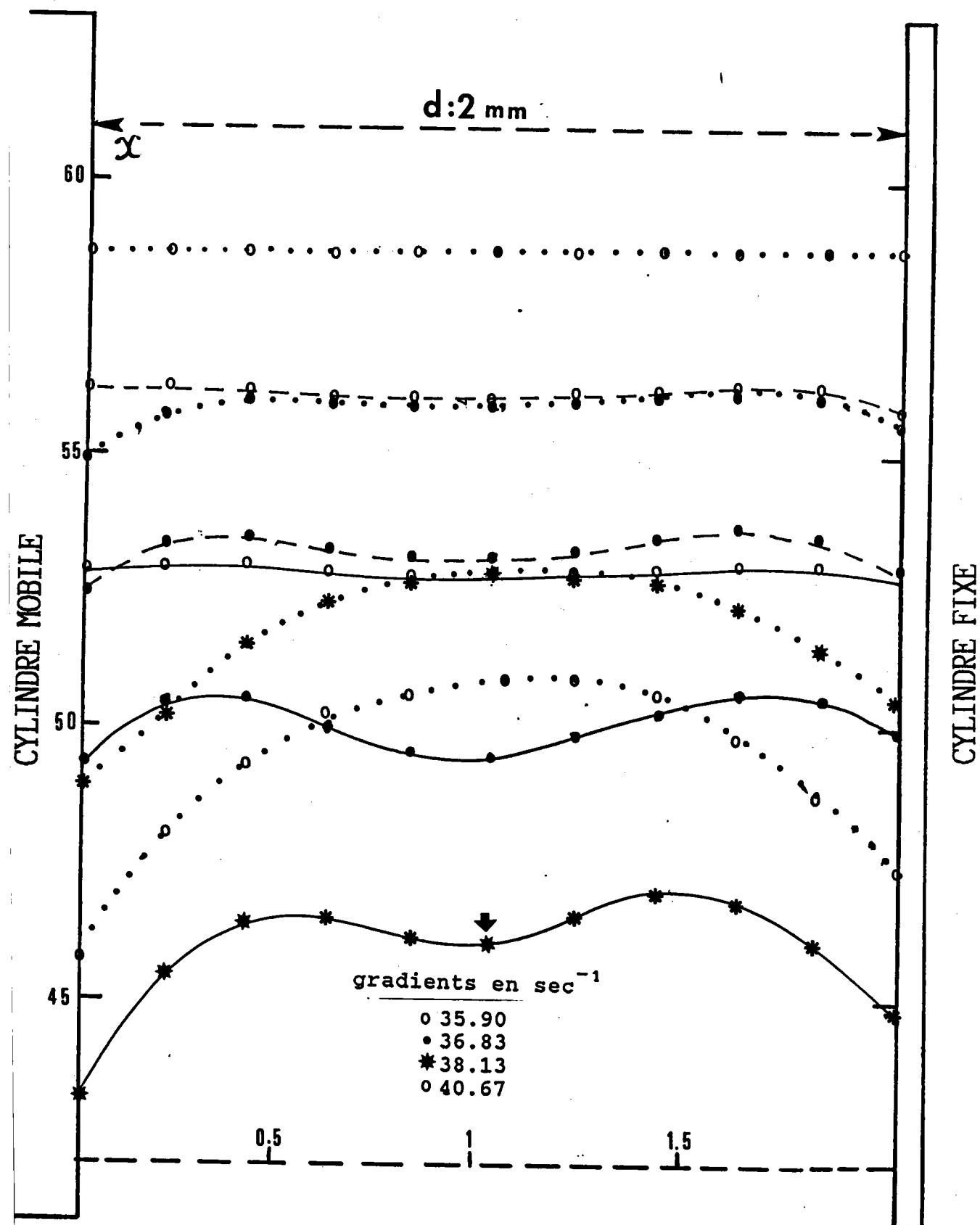


Fig.4.17 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différentes valeurs du coefficient de diffusion D_r
 : $D_r = 14$; ---- : $D_r = 12$; — : $D_r = 10$

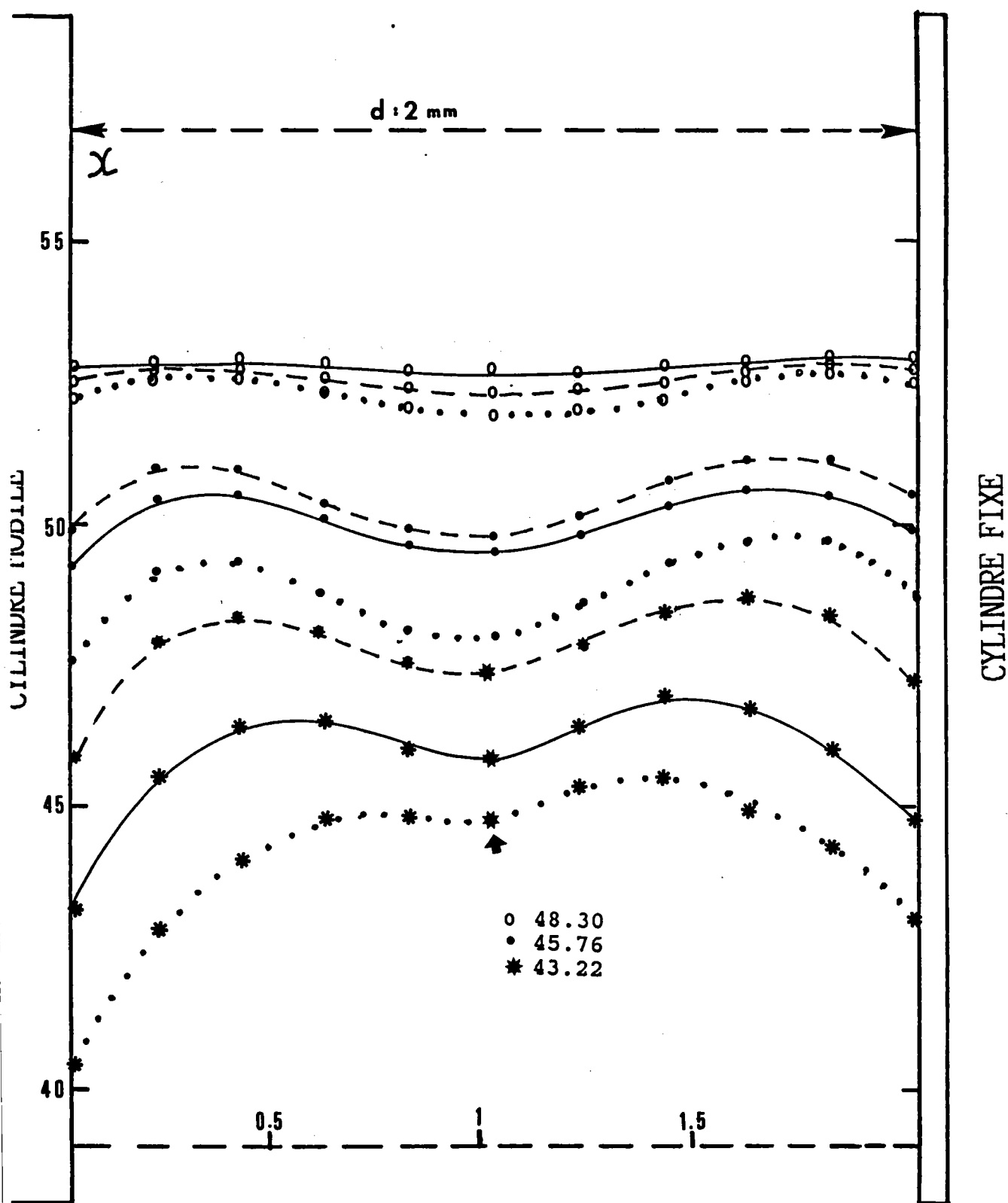


Fig.4.18 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$
 Evolution de l'angle d'extinction en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différents facteurs d'échelle .
 Coefficient de diffusion = 10
 : 0.09 ; ----- : 0.07 ; — : 0.05

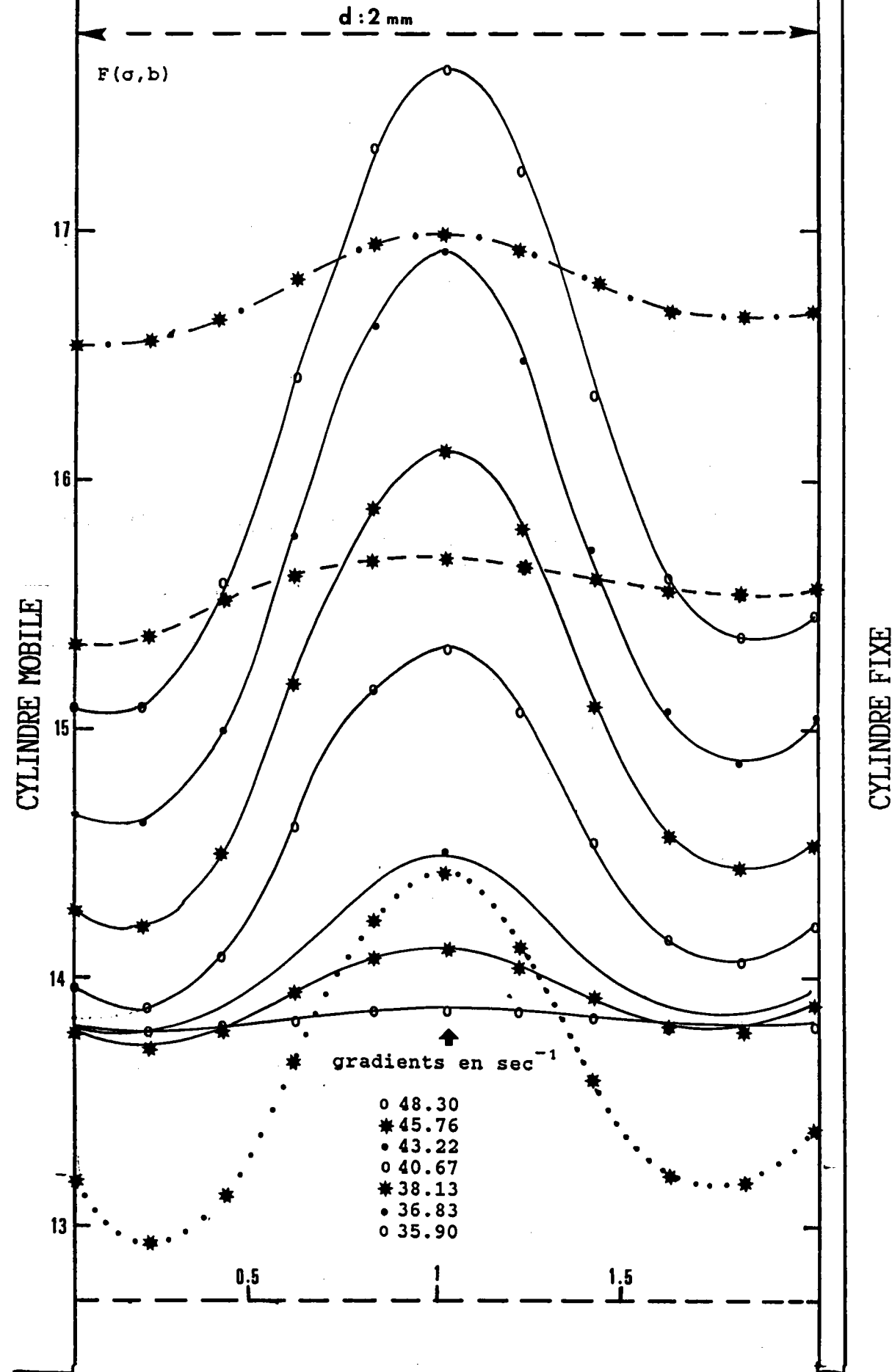


Fig.4.19 : Solution de V.M.T. Cas : $a < a_c$
 Evolution du facteur d'orientation $F(\sigma, b)$ en fonction de la position dans l'espace annulaire pour différentes valeurs du gradient et pour différents facteurs d'échelle .
 : 0.07 ; — : 0.05 ; ---- : 0.04 ; - - - : 0.02

CONCLUSION

Par ce travail orienté d'une part vers l'étude expérimentale des variations des propriétés dynamo-optiques de solutions de particules rigides au voisinage de la transition "écoulement de Couette-tourbillons de Taylor" et d'autre part vers l'interprétation théorique des résultats de cette étude, nous espérons pouvoir apporter des renseignements complémentaires à ceux de la théorie établie en écoulement de Couette sur les propriétés intrinsèques des particules en solutions.

Pour ces recherches expérimentales, nous avons dû, au préalable construire un ellipsomètre permettant l'étude de la lumière transmise par le milieu. Au cours de la phase de mise au point, nous avons pu en apprécier les performances mais également les limitations dues à la qualité limitée des composants optiques de la chaîne des mesures. La prise en compte de tous les facteurs d'erreurs rend le problème du calcul de l'ellipticité de la lumière émergente fort complexe, nous en avons donné un aperçu au chapitre II.

Bien que notre principal intérêt fût l'étude de la transition d'écoulement, des mesures de l'angle d'extinction aux faibles gradients ont été réalisés afin de déterminer le coefficient de diffusion de rotation D_r des particules en solution ; ces mesures, bien que très classiques sont nécessaires puisque ce coefficient intervient dans le calcul $\text{tg}2\chi$ et Δn .

Ces mesures ont également révélé le problème important de la modification dans le temps des suspensions de particules : gonflement par absorption d'eau de la bentonite, agrégation des particules de V.M.T., phénomènes qui entraînent tous deux une modification du D_r . C'est au gradient critique G_c et au-delà que s'est principalement

portée notre attention.

L'examen des courbes $\chi(G)$ et $\Delta n(G)$ tracées pour les mesures effectuées au centre de la cellule montre clairement et sans équivoque l'apparition de la première transition d'écoulement; par contre nous n'avons observé aucune rupture de pente significative à la seconde transition qui correspond à l'apparition de l'onde azimutale pour l'un ou l'autre type de particule et pour les deux valeurs de l'espace annulaire. Il semble donc, que ce second mouvement ait peu d'influence sur les propriétés optiques mesurées dans la direction axiale ; il n'en est probablement pas de même dans la direction transversale perpendiculaire aux oscillations du liquide. Ces mesures pourraient constituer une première prolongation de ce travail.

Il apparait également clairement que la forme des courbes $\chi(G)$ au-delà de G_c soit fortement influencée par la forme de la particule en solution : les disques tels que la bentonite conduisent à cet aspect en "dos d'ane", tandis que les cylindres représentant le V.M.T. provoquent une rupture de pente moins abrupte. Ce fait sera confirmé par les calculs théoriques de $\chi(G)$ au centre de l'espace annulaire.

En ce qui concerne l'évolution de ces mêmes propriétés en fonction de la position radiale dans l'entrefer, on retrouve globalement des comportements similaires pour les deux types de particules, avec cependant une déformation plus lente des courbes de l'angle χ dans le cas des particules allongées.

A une augmentation importante de Δn le long des parois correspond une diminution de χ au-delà de G_c ; en examinant les courbes 4,4 et 4,5 des composantes tangentielles et radiales de la perturbation, on constate effectivement que les gradients sont plus importants au voisinage des parois qu'au centre conduisant ainsi à une meilleure orientation au voisinage des parois. Cette interprétation qualitative n'est bien entendu que partielle puisque ce sont en fait les vitesses

et leur dérivée première qui interviennent dans la fonction de distribution.

Dans la dernière partie du travail, nous avons tenté de développer le calcul analytique de l'angle d'extinction ainsi que de l'intensité de la biréfringence Δn à l'aide d'une théorie linéaire valable, en toute rigueur, au voisinage supérieur immédiat de la transition : la valeur du nombre de Taylor critique T_c calculé dans ce cadre est en parfait accord avec d'autres valeurs expérimentales ou théoriques. Néanmoins deux indéterminations importantes en découlent :

- * le champ des vitesses n'est pas déterminé de manière absolue.
- * pour des gradients $G > G_c$ et pour un G donné le paramètre a (relié à la longueur d'onde axiale du mouvement) admet deux valeurs situées de part et d'autres de a_c .

Dans le cas des particules aplaties (bentonite) l'indétermination sur la valeur de a à choisir semble levée puisque l'on constate un accord remarquable entre théorie et expérience. En ce qui concerne le V.M.T. le choix est moins certain, mais la théorie confirme la forme différente des courbes $\chi(G)$ au centre de l'espace annulaire pour les solutions des deux types de particules subissant la transition.

Nous savons, de l'observation visuelle que la seconde transition correspondant à l'apparition de l'onde azimutale a lieu dans le domaine de gradient couvert par nos mesures. Mais lorsque l'on compare l'évolution de χ ou de Δn dans l'entrefer pour différents gradients, les résultats théoriques et expérimentaux sont en accord dans tout le domaine de gradient ; ceci nous montre que l'onde azimutale a peu d'influence sur les propriétés optiques mesurées axialement et que la théorie linéaire que l'on croyait restreinte au

voisinage immédiat de la transition conduit à des résultats satisfaisants bien au-delà de G_c dans le domaine de l'écoulement périodique.

Une seconde prolongation possible de ce travail qui permettrait sans aucun doute de lever l'indétermination concernant l'amplitude de la perturbation serait d'utiliser l'anémométrie lazer afin de déterminer les trois composantes de l'écoulement de Taylor. Cette même technique appliquée aux solutions des deux types de particules devrait également permettre l'étude de l'influence sur l'écoulement de la forme des particules en solutions et de conclure quand à la valeur de a ($>$ ou $<$ que a_c) pour chaque type de particules.

Bibliographie

- [1] J.C. MAXWELL , Proc. Roy. Soc. (London)
Ser. A 22 , 46 (1873)
- [2] M.E. MACH , Optische-Akustische Versuche
CALVE , PRAGUE (1873)
- [3] Lord RAYLEIGH , Scientific Papers
6, 447-53 Cambridge , England (1920)
- [4] G.I. TAYLOR , Phil. Trans. Roy. Soc. (London)
A,223, 289-343 (1923)
- [5] D. VORLANDER and R. WALTER , Z. Physik. Chem.
[A] 118, 1 (1925)
- [6] D. VORLANDER and J. FISCHER, Ber.65B, 1756 (1932)
- [7] C. SADRON , J. Phys. Radium,(7),7, 263 (1936)
- [8] O. SNELLMANN and G. WIDSTROM , Arkiv. Kemi. Min.
Geol. 19 A, n°31 (1945)
- [9] E. WINKLER and W. KAST , Z. Physik.,118,232-9 (1941)
- [10] H. WAYLAND , J. Appl. Phys., 26,1197 (1955)
- [11] J.V. CHAMPION , A. SUDDABY , Proc. Phys. Soc.
75, 799 (1960)
- [12] R. SIGNER , Z. Physik. Chem., (A)150,247,257 (1930)
- [13] V.N. TSVETKOV and A. PETROVA , J. Tech. Phys.
(U.R.S.S) 12,423-63 (1942)
- [14] R. SIGNER , Schweiz. Brau. Rundschau,54,1-7 (1943)
- [15] A.L. Von MURALT and J.T. EDSALL , J. Biol. Chem.
89, 315, 351 (1930)
- [16] W.N. TAKAHASHI and T.E. RAWLINGS ,
Proc. Soc. Exptl. Biol. Med.,30,155 (1932)
- [17] J. LERAY , Thèse (1959)
- [18] H. WAYLAND , J. Appl. Phys.,Vol.26,n°10 (1955)

- [19] R. CRESSELY , Thèse d'Etat (1982)
- [20] A. ONUKI and K. KAWASAKI , Phys. Lett., 78A.354 (1980)
- [21] D. BEYSENS , R. GASTAUD and J.P. DECRUPPE ,
Phys. Rev. A., Vol.30 n°2 (1984)
- [22] A. KUNDT, Ann. Physik., 13, 110 (1881)
- [23] H. ZOCHER, Z. Physik. Chem. [A], 98, 293 (1921)
- [24] C.V. RAMAN and K.S. KRISHNAN Phil. Mag., 5, 769 (1928)
- [25] A. PETERLIN and H.A. STUART Z. Physik.
113, 663 (1939)
- [26] J.V. CHAMPION Proc. Phys. Soc. (London)
72, 711 (1958)
- [27] H.G. JERRARD Chem. Rv., 59, 345 (1959)
- [28] P. BOEDER Z. Physik., 75, 258 (1932)
- [29] W. HALLER Kolloid Z., 61, 26 (1932)
- [30] W. KUHN Z. Physik. Chem., 161A, 1, 427 (1932)
- [31] C. SADRON J. Phys. Radium 8, 481 (1937)
C. SADRON J. Phys. Radium 9, 381 (1938)
- [32] G.B. JEFFREY Proc. Roy. Soc. (London)
A102, 161 (1922)
- [33] A. PETERLIN and H.A. STUART Z. Physik
112.1, 129 (1939)
- [34] M.M. COUETTE Ann. Chim. Phys., 21, 433-510 (1890)
- [35] D. COLES J. Fluid Mech.,
Vol. 21 part 3, pp.385-425 (1965)
- [36] T. MULLIN J. Fluid Mech., Vol.121, pp.207-218 (1982)
- [37] T.B. BENJAMIN and T. MULLIN J. Fluid Mech.
Vol. 121, pp.219-230 (1982)
- [38] T.B. BENJAMIN Proc. R. Soc. Lond.
A. 359, 27-43 (1978)
- [39] T.B. BENJAMIN and T. MULLIN Proc. R. Soc. Lond.
A. 377, 221-249

- [40] S. KOGELMAN and R.C. DIPRIMA Phys. Fluids,13A (1970)
- [41] J.E. BURKHALTER and E.L. KOSCHMIEDER J. Fluid Mech.
58, 547 (1973)
- [42] K. KIRCHGASSNER and P. SORGER
Quart. J. Mech. Appl. Math., 22,183 (1963)
- [43] J.F. BURKHALTER and E.L. KOSCHMIEDER Phys. Fluids
Vol. 17, n° 11, November 1974
- [44] A. LORENZEN, G. PFISTER and T. MULLIN Phys. Fluids
26(1), pp.10-13 (Jan. 83)
- [45] J.A. COLE J. Fluid Mech.,Vol.75,part 1,pp 1-15 (1976)
- [46] H.A. SNYDER J. Fluid Mech.
Vol. 35, part 2, pp.337-352 (1969)
- [47] G.P. SMITH and A.A. TOWNSEND J. Fluid Mech.
Vol. 123, pp.187-271 (1982)
- [48] R.J. DONNELLY and D.J. TANNER Proc. Roy. Soc.
A 283, pp.520-530, Part V (1965)
R.J. DONNELLY Proc. Roy. Soc.
A 283, pp.509-519, Part IV (1965)
- [49] M. LEBUCHE et G. COGNET
La polarographie, moyen d'étude du mouvement des
liquides (Industrie Génie Chimique)
97, n°12 pp.2002-2009 (1967)
- [50] J. SERRIN On the stability of viscous fluid motions
Arch. Ration. Mech. Anal. 3, pp. 1-13 (1959)
- [51] S. CHANDRASEKHAR Hydrodynamic and Hydromagnetic
Stability, Oxford University Press (1961)
- [52] D. MEKSYN Proc. Roy. Soc., London A187,115-28 (1946)
D. MEKSYN Proc. Roy. Soc., London A187,492-504 (1946)
- [53] R.C. DIPRIMA Quart. Appl. Math.
Vol. 18, n°4 375 (1961)
- [54] P.H. ROBERTS Proc. Roy. Soc.,A203,pp.550 (1965)

- [55] E.R. KRUEGER, A. GROSS and R.C. DIPRIMA
J. Fluid Mech., Vol.24, Part 3, pp.521-538
- [56] H.A. SNYDER and S.K.F. KARISSEN
Bull. Amer. Phys. Soc., 10,24 (1965)
- [57] J.T. STUART J. Fluid Mech., Vol.4, pp.1-21 (1958)
- [58] A. DAVEY J. Fluid Mech., Vol.14, pp.336-368 (1962)
- [59] P.M. EAGLES J. Fluid Mech.
Vol. 49, Part 3, pp.529-550 (1971)
- [60] A. DAVEY, R.C. DIPRIMA and J.T. STUART
J. Fluid Mech., Vol.31, Part 1, pp.17-52 (1968)
- [61] KOGELMAN and DIPRIMA
Phys.Fluids 13.1-11 (1970)
- [62] T.B. BENJAMIN Proc. Roy. Soc. Lond.
A. 359, 1-26 (1978)
- [63] G. IOOSS Jour. Méca., 8,477 (1969)
G. IOOSS Arch. Rat. Anal., 40,166 (1971)
- [64] K. KIRCHGASSNER and P. SORGER
Quart. Journ. Mech. and Applied Math.
Vol. XXII, pt.2, 183 (1969)
- [65] J.P. GUIRAUD et G. IOOSS Compt. rend. Acad. Sci.
266 A, 1283 (1968)
- [66] J. LERRAY et G. SCHEIBLING, C.R. Acad. Sci.
1960, 251, 349
- [67] P. GRAMAIN, Thèse d'Etat
Université de Strasbourg, 5 Janv. 1966
- [68] B. JOUHIER, Thèse 3^{ème} cycle
Université Pierre et Marie Curie, 15 Déc. 1983
- [69] W.A. SHURCLIFF, Polarized Light
(Harvard : University Press) 1962
- [70] A. PETERLIN, H.A. STUART, Z. Physik.
112, 1, 129 (1939)

- [71] F. PERRIN , J. Phys. Radium, 5,497 (1934)
- [72] H.A. SCHERAGA , J.T. EDSALL and J.O. GADD ,
J. Chem. Phys., 19,1101 (1951)
- [73] C.A. HOLLINGS WORTH., J. OPT. SOC. AM.
Vol.58, n°12, p.1581-1585 (Déc. 68)
- [74] C.A. HOLLINGS WORTH,W.E. KAISER and T. GRANQUIST
J. OPT. SOC. AM., VOL.54,N)15,P.633-637 (May 64)
- [75] M.P. KOTHIYAL , OPTICS COMMUNICATIONS
Vol.18, n°3, p.310-313 (Aug.76)
- [76] M.P. KOTHIAL , J. OPT. SOC. AM.
Vol.65, n°3, p.352-353 (March 75)
- [77] H. JANESCHITZ-KRIEGL
Laboratory Practice p.802-808 (Nov.61)
- [78] H.G. JERRARD , Surface Science, Vol.16,p.67-73 (1969)
- [79] H. HURWITZ,JR and R. CLARK JONES ,
J. OPT. SOC. AM.,Vol.31,p.493-499 (July 41)
- [80] P. GRAMAIN , Thèse Doctorat-es-Sciences
Janvier 1966
- [81] FREY-WYSSLING A. et WEBER E.
Helv. Chim. Acta, Vol.24,p.278 (1941)
- [82] R. SIGNER et H. GROSS , Z. Phys. Chem. A.
Vol. 165, 1933, p.161
- [83] S. PANCHARATNAM , Proc. Ind. Acad. Sci.
A 43, pp.247 (1956)
- [84] G.N. RAMACHANDRAN and S. RAMASESHAN
J.Opt.Soc.Am., 42 . 49 (1952)
- [85] J.H.FRYDLANDER
Rev.prod.chim. et Act.Sc. 32, pp. 325 (1929)
- [86] R.E.GRIM
J.Geol.,50,pp. 225-275 (1942)

- [87] P.E.JANSSON, L.KENNE , B.LINDBERG
Carbohydr.Res.45,275 (1975)
- [88] A.JEANES, J.E.PITTSLEY, F.R. SENTI,
J.Appl.Polym.Sci.,5,pp.519 (1961)
- [89] R.MOORHOUSE ,M.D.WALKINSHAW, S.ARNOTT
Extracellular Micro. Polysac. A.C.S Symp. (1976)
- [90] G.HOLZWARTH , F.G.PRESTRIDGE
Sciences ,197 pp.757-759 (1977)
- [91] FRANKLIN, KLUG and HOLMES
Congr.Inter.Biochem.Brussels (1953)
- [92] M.A.LAUFFER
J.Phys.Chem., 42,935 (1938)
- [93] S.PROCOPIU ,M.TIBU
C.R.Acad.Sc.Paris , t.267,pp.1369-1372 (1968)
- [94] W.T.GRANQUIST and C.A.HOLLINGSWORTH
J of Colloid Science 18, pp.538-554 (1963)
- [95] J.B.DONNET
C.R.Acad.Sci.,229,189 (1949)
- [96] A.PELLEW and R.V.SOUTHWELL
Proc.Roy.Soc.A.,176 pp.321 (1940)
- [97] B.NSOM EYENGA NDILLE
Thèse Université de Metz Septembre 1987
- [98] R.J.DONNELLY and K.W.SCHWARTZ
Proc.Roy.Soc.A.,283 pp.531-556 (1965)
- [99] L.LANDAU and E.LIFCHITZ
Electrodynamique des milieux continus Ed. Mir
- [100] E.DURAND
Electrostatique Tome III pp.241 Masson (1966)
- [101] J.LERAY et G.SCHEIBLING
J.Chem.Phys. pp.797 (1961)
- [102] G.COINET Thèse Doct.es Sci.Physiques
Université de Nancy (1968)

ANNEXE A

Matrices de Mueller representative des divers constituants du montage.

Polariseur linéaire idéal d'azimuth θ .

$$\frac{1}{2} \begin{vmatrix} 1 & \cos 2\theta & \sin 2\theta & 0 \\ \cos 2\theta & \cos^2 2\theta & \cos 2\theta \sin 2\theta & 0 \\ \sin 2\theta & \cos 2\theta \sin 2\theta & \sin^2 2\theta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{vmatrix}$$

Milieu biréfringent linéaire d'azimuth α et de retard δ .

$$\begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2 2\alpha + \sin^2 2\alpha \cos \delta & (1 - \cos \delta) \sin 2\alpha \cos 2\alpha & -\sin 2\alpha \sin \delta \\ 0 & \sin 2\alpha \cos 2\alpha (1 - \cos \delta) & \sin^2 2\alpha + \cos^2 2\alpha \cos \delta & \cos 2\alpha \sin \delta \\ 0 & \sin 2\alpha \sin \delta & -\cos 2\alpha \sin \delta & \cos \delta \end{vmatrix}$$

Lame quart d'onde à l'azimuth $\pi/4$.

$$[Q] = \begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{vmatrix}$$

Biréfringent linéaire doué de dichroïsme linéaire .

Sk	$\Delta k \cos 2\alpha$	$\Delta k \sin 2\alpha$	0
$\Delta k \cos 2\alpha$	$S k \cos^2 2\alpha + \rho_1 \rho_2 \cos \delta \sin^2 2\alpha$	$S k \sin 2\alpha \cos 2\alpha - \rho_1 \rho_2 \cos \delta \sin 2\alpha \cos 2\alpha$	$-\rho_1 \rho_2 \sin \delta \sin 2\alpha$
$\Delta k \sin 2\alpha$	$S k \sin 2\alpha \cos 2\alpha - \rho_1 \rho_2 \cos \delta \sin 2\alpha \cos 2\alpha$	$S k \sin^2 2\alpha + \rho_1 \rho_2 \cos \delta \cos^2 2\alpha$	$\rho_1 \rho_2 \sin \delta \cos 2\alpha$
0	$\rho_1 \rho_2 \sin \delta \sin 2\alpha$	$-\rho_1 \rho_2 \sin \delta \cos 2\alpha$	$\rho_1 \rho_2 \cos \delta$

$$S k = \frac{1}{2} (\rho_1^2 + \rho_2^2)$$

$$\Delta k = \frac{1}{2} (\rho_1^2 - \rho_2^2)$$

azimut : α

angle de phase : δ

$$\rho_1 = e^{-2\pi d k_e / \lambda}$$

$$\rho_2 = e^{-2\pi d k_o / \lambda}$$

Milieu biréfringent doué de pouvoir rotatoire .

$$[1, 0, 0, 0]$$

$$[0, (\cos^2 2\varepsilon \cos 4\alpha - \sin^2 2\varepsilon) \sin^2 \frac{\Delta}{2} + \cos^2 \frac{\Delta}{2},$$

$$\cos^2 2\varepsilon \sin 2\alpha \cos 2\alpha (1 - \cos \Delta) + \sin 2\varepsilon \sin \Delta,$$

$$\sin 2\varepsilon \cos 2\varepsilon \cos 2\alpha (\cos \Delta - 1) - \cos 2\varepsilon \sin 2\alpha \sin \Delta]$$

$$[0, \cos^2 2\varepsilon \cos 2\alpha \sin 2\alpha (1 - \cos \Delta) - \sin 2\varepsilon \sin \Delta,$$

$$(-\cos^2 2\varepsilon \cos 4\alpha - \sin^2 2\varepsilon) \sin^2 \frac{\Delta}{2} + \cos^2 \frac{\Delta}{2},$$

$$\cos 2\varepsilon \cos 2\alpha \sin \Delta - \cos 2\varepsilon \cos 2\alpha \sin \Delta - \cos 2\varepsilon \sin 2\varepsilon \sin 2\alpha (1 - \cos \Delta)]$$

$$[0, \sin 2\varepsilon \cos 2\varepsilon \cos 2\alpha (\cos \Delta - 1) + \cos 2\varepsilon \sin 2\alpha \sin \Delta,$$

$$- \cos 2\varepsilon \cos 2\alpha \sin \Delta + \cos 2\varepsilon \sin 2\varepsilon \sin 2\alpha (\cos \Delta - 1),$$

$$- \cos 4\varepsilon \sin^2 \frac{\Delta}{2} + \cos^2 \frac{\Delta}{2}]$$

avec

$$\Delta = [\delta^2 + 4\beta^2]^{1/2}$$

ε : ellipticité des vibrations

α : azimuth du milieu

Milieu biréfringent doué de pouvoir rotatoire .

Cas particulier : $\alpha = \pi/4$

1	0	0	0
0	$\cos \frac{\Delta}{2}$	$\frac{2\theta}{\Delta} \sin \Delta$	$-\frac{\theta}{\Delta} \sin \Delta$
0	$-\frac{2\theta}{\Delta} \sin \Delta$	$1 - \frac{8\theta^2}{\Delta^2} \sin^2 \frac{\Delta}{2}$	$-\frac{4\delta\theta}{\Delta^2} \sin^2 \Delta/2$
0	$\frac{\delta}{\Delta} \sin \Delta$	$-\frac{\delta\theta}{\Delta^2} \sin^2 \frac{\Delta}{2}$	$1 - \frac{2\delta^2}{\Delta^2} \sin^2 \Delta/2$

Vitesse angulaire d'une particule infiniment longue

Le champ hydrodynamique étant déterminé en tout point du liquide dans un repère fixe lié à la cellule, on calculera en premier lieu les composantes de la vitesse d'un point d'une particule dans un repère lié à cette particule puis les composantes θ et φ de sa vitesse angulaire .

Pour ce faire assimilons les particules en suspension à des batonnets infiniment longs de diamètre négligeable . Nous supposons également que la particule ne modifie pas l'écoulement au point considéré et qu'elle est dépourvue d'inertie .

Il s'ensuit que la vitesse angulaire du batonnet s'identifie à celle du liquide et que ses variations sont instantanées . Nous admettrons enfin que le centre de gravité de la particule se déplace avec la vitesse du liquide au point où elle se trouve .

Un point au sein du liquide est repéré dans le trièdre Oxyz lié à la cellule et le centre de gravité O' du batonnet est l'origine d'un second référentiel O'XYZ parallèle au précédent. (Fig 4.8)

Suivant Oxyz, le champ de vitesse s'écrit

$$v_x = u(x) \cos kz$$

$$v_y = \Omega_1 R_1 \left[1 - \frac{x}{d} \right] + v(x) \cos kz$$

$$v_z = w(x) \sin kz$$

Soit (x,y,z) les coordonnées de O' dans Oxyz et un point M voisin de O' de coordonnées X,Y,Z dans O'XYZ . La vitesse de ce point dans Oxyz a pour composantes :

$$v_x = u(x + X) \cos k(z + Z)$$

$$v_y = \Omega_1 R_1 \left[1 - \frac{x + X}{d} \right] + v(x + X) \cos k(z + Z)$$

$$v_z = w(x + X) \sin k(z + Z)$$

Développons les relations précédentes au premier ordre autour de x .

$$v_x = u(x) \cos kz + X \frac{\partial u}{\partial x} \cos kz - kZ u(x) \sin kz + \frac{1}{2} [X^2 \cos kz \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \dots]$$

$$v_y = \Omega_1 R_1 \left[1 - \frac{x}{d} \right] - \frac{\Omega_1 R_1}{d} X + v(x) \cos kz + X \cos k(z) \frac{\partial v}{\partial x} + \dots$$

$$- kZ v(x) \sin kz + \dots$$

$$v_z = w(x) \sin kz + X \sin kz \frac{\partial w}{\partial x} + kZ w(x) \cos kz$$

Dans le repère O'XYZ, les composantes de la vitesse en M s'écrivent :

$$v_x = X \frac{\partial u}{\partial x} \cos kz - kZ u(x) \sin kz + \dots$$

$$v_y = - \frac{\Omega_1 R_1}{d} X + X \cos k(z) \frac{\partial v}{\partial x} - kZ v(x) \sin kz + \dots$$

$$v_z = X \sin kz \frac{\partial w}{\partial x} + kZ w(x) \cos kz$$

D'autre part, dans le système (r, θ, φ), on a

$$v_r = \frac{dr}{dt} \quad v_\theta = r \dot{\theta} \quad v_\phi = r \sin \theta \dot{\phi} \quad (B .1)$$

Il s'ensuit que

$$v_x = V_r \sin \theta \cos \phi + v_\theta \cos \theta \cos \phi - v_\phi \sin \phi$$

$$v_r = v_r \sin\theta + v_\theta \cos\theta \sin\varphi + v_\varphi \cos\varphi$$

$$v_z = v_r \cos\theta - v_\theta \sin\theta$$

A partir des définitions (B.1),

on calcule aisément $\dot{\varphi}$ et $\dot{\theta}$.

$$\dot{\varphi} = \frac{v_r \cos\varphi - v_\theta \sin\varphi}{r \sin\theta}$$

et

$$\dot{\theta} = \frac{(v_\theta \cos\varphi + v_r \sin\varphi) \cos\theta - v_z \sin\theta}{r}$$

Remplaçons à présent v_x et v_r par leur expression établie précédemment

$$\dot{\varphi} = - \frac{\Omega_1 R_1}{d} \cos^2 \varphi + \cos^2 \varphi \cos k z \frac{\partial v}{\partial x} - k \sin k z \cos \varphi \cot \theta v(x) + \dots$$

$$- \cos k z \cos \varphi \sin \varphi \frac{\partial u}{\partial x} + k \sin k z u(x) \sin \varphi \cot \theta$$

$$\dot{\theta} = - \frac{1}{4} \frac{\Omega_1 R_1}{d} \sin 2\theta \sin 2\varphi - k \sin k z \cos^2 \theta \sin \varphi v(x) + \dots$$

$$- k \sin k z u(x) \cos \varphi \cos^2 \theta - \frac{1}{2} k \cos k z \sin 2\theta w(x) + \dots$$

$$- \sin k z \cos \varphi \sin^2 \theta \frac{\partial w}{\partial x} + \frac{1}{4} \cos k z \sin 2\theta \sin 2\varphi \frac{\partial v}{\partial x} + \dots$$

$$+ \frac{1}{2} \cos k z \frac{\partial u}{\partial x} \sin 2\theta \cos^2 \varphi$$

La limitation à l'ordre 1 du développement des composantes de la vitesse est justifiée par le fait que la particule est rigide.

En effet, les termes d'ordre supérieur contiennent des puissances de X (cf. développement de v_x) qui lors du calcul de $\dot{\varphi}$ (ou de $\dot{\theta}$).

Θ), introduiraient une dépendance en r de la vitesse angulaire de la particule : les différentes parties de la particule ne seraient pas alors animées de la même vitesse angulaire, ce qui est contraire à l'hypothèse de rigidité .

En remplaçant b par 1 , dans les expressions générales de $\dot{\Theta}$ et de $\dot{\varphi}$ établies au paragraphe 4.2.2 , on retrouve les résultats énoncés ci-dessus pour le cas de la particule infiniment longue.

ANNEXE C

Intégrales elliptiques entrant dans le calcul du potentiel
à l'intérieur d'un ellipsoïde diélectrique

$$A_1(\xi) = \frac{abc}{2} \int_{\xi}^{\infty} \frac{d\lambda}{(\lambda - a)^2 R_{\lambda}}$$

avec a, b, c demi-axes de l'ellipsoïde

$$\text{et } R_{\lambda} = \sqrt{(\lambda + a^2)(\lambda + b^2)(\lambda + c^2)}$$

$$A_1(0) = \frac{\sqrt{(a^2 + \xi)(b^2 + \xi)(c^2 + \xi)}}{2} \int_0^{\infty} \frac{d\lambda}{(\lambda + a^2 + \xi) R_{\lambda}}$$

$$A_1(0) = \frac{ABC}{2} \int_0^{\infty} \frac{d\lambda}{(\lambda + A^2) R_{\lambda}} = \frac{\sqrt{(a^2 + \xi)(b^2 + \xi)(c^2 + \xi)}}{abc} A_1(\xi)$$

Cas particuliers :

Ellipsoïde allongé $b = c$

$$A_1(0) = \frac{bc}{2a^2 e^3} \left\{ -2e + \text{Log} \frac{1+e}{1-e} \right\}$$

$$\text{avec } e = \frac{1}{a} \sqrt{a^2 - b^2}$$

Ellipsoïde aplati

$$A_3(0) = \frac{abc}{(a^2 - c^2)^{3/2}} \left\{ \frac{\sqrt{a^2 - c^2}}{c} - \text{arctg} \frac{\sqrt{a^2 - c^2}}{c} \right\}$$

ANNEXE D

Dichroism and birefringence induced by shear in a critical binary fluid

D. Beysens and R. Gastaud

*Service de Physique du Solide et de Résonance Magnétique,
Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, F-91191 Gif-sur-Yvette, Cedex, France*

F. Decruppe

*Laboratoire d'Optique Moléculaire, Université de Metz,
F-57000 Metz, France*

(Received 21 May 1984)

A large anisotropy in the absorption of light has been detected in a sheared mixture of nitrobenzene and *n*-hexane at critical concentration. This dichroism is well supported by the Onuki and Kawasaki theory. The corresponding birefringence amplitude exhibits some discrepancy when compared with the above theory, but this vanishes if the same scaling function as for dichroism is used.

INTRODUCTION

In the field of phase transitions, binary fluids belong to the same universality class as the three-dimensional (3D) Ising model, with the relative concentration as the order parameter. Binary fluids have been widely investigated at equilibrium near their consolution point.¹ The influence of a shear flow on the critical properties of such fluids has also been studied;^{2,3} unusual behavior—including a lowering of the upper critical dimensionality—has been detected when the typical lifetime of the order-parameter fluctuations (τ) was larger than the inverse shear rate (S), that is, when the condition $S\tau > 1$ was fulfilled. This region is called the "strong-shear" region.

In the other domain ("weak-shear" region), the fluid is nearly at equilibrium so that the deviations from the local equilibrium affect only weakly the order-parameter correlation function. The critical properties are negligibly affected. However, the small anisotropy induced by shear can lead to a very large effect in the properties where the isotropic part can be removed. Flow birefringence experiments, as first suggested by Onuki and Kawasaki (OK)^{4,5} provide indeed very good examples of such a possibility; a birefringence with an amplitude of several orders of magnitude larger than the ordinary Maxwell effect is in fact expected. The first experiments have been performed either mainly in the strong shear region (Beysens and Gbadamassi⁶), or in the weak shear domain (Chou and Goldburg⁷). Shear was produced by a Poiseuille flow. A relatively good agreement with the OK theory has been found, especially in the strong shear region;⁶ in the other region some discrepancy was detected in the amplitude of the effect.⁷

This birefringence effect, which is concerned with the real part of the refractive index (n), is accompanied by a light absorption effect, which is concerned with the imaginary part of n . It is the aim of this paper to report an investigation of this new phenomenon, the critical dichroism. The experiments were carried out using a Couette flow in order to obtain a uniform shear rate. Only the region of weak shear has been considered. Moreover, birefringence measurements have been performed so as to allow comparison with the OK theory in its strict domain of validity.

THEORY

At equilibrium the fluctuations of the order parameter give rise to fluctuations of the refractive index through the generalized Lorentz-Lorenz formula when taking into account the long-ranged part of the order-parameter correlation function.

These fluctuations of the refractive index lead to a strong light-scattering phenomenon ("critical opalescence") and the attenuation rate (or turbidity θ) of the incoming light near the critical temperature (T_c) becomes larger as the concentration fluctuations increase. The turbidity varies as^{1,8} $\theta = A_0(1+t)t^{-\gamma}G'(X)$, where $t = (T - T_c)/T_c$, $X = q_0\xi$, and A_0 is a constant for a given fluid and a given wavelength λ_0 . Here $q_0 = 2\pi n/\lambda_0$ is the wave vector of the incoming light, $\xi = \xi_0 t^{-\nu}$ is the correlation length, and $G'(X)$ is a complicated scaling function which tends to $\frac{4}{3}$ when X approaches zero. The exponents $\nu = 0.63$ and $\gamma = 1.24$ are the universal critical exponents.¹

Under shear, the order parameter correlation function becomes anisotropic and an anisotropic refractive index tensor has to be considered. In the region of weak shear the tensor exhibits two eigenvectors at 45° from the flow direction; the light propagates along these axes with different velocities leading to a flow birefringence (δn_R).

Turbidity is in fact the imaginary part of the refractive index. Under shear, this imaginary part becomes anisotropic and the difference along the principal axes leads to a dichroism phenomenon (δn_I).

In the weak shear regime the correlation function under shear can be expanded in powers of the dimensionless variable $S\tau$. At the first-order expansion, the refractive index difference along the principal axes can be written as

$$\delta n = \delta n_R + i\delta n_I = AS\eta t^{-\gamma}[G_R(X) + iG_I(X)] \quad (1)$$

The parameter A is proportional to A_0 :

$$A = A_0[3\lambda_0^4/32\pi^4 n^3 k_B T_c] \quad .$$

k_B is the Boltzmann constant. The functions G_R and G_I are

as follows:

$$G_R(X) = \frac{2}{3X^2} \left[-\frac{1}{X^2} - \frac{10}{3} + \frac{1}{2X} \left(2 + \frac{1}{X^2} \right) \times (1 + 4X^2)^{1/2} L_X(2X + (1 + 4X^2)^{1/2}) \right] \quad (2)$$

$$G_I(X) = \frac{\pi}{3X} \left[1 + \frac{2}{X^2} + \frac{1}{2X^4} - \frac{1}{2X^2} \left(2 + \frac{1}{X^2} \right) (1 + 4X^2)^{1/2} \right] \quad (3)$$

The domain of validity of these expressions is limited to the weak shear regime and to a uniform shear rate.

EXPERIMENTAL SETUP

In order to produce a uniform shear rate, we set up a Couette apparatus.⁹ It was constructed using Duralumin and the inner and outer chambers were thermostated by circulating water. The temperature was controlled by quartz thermometers immersed in the circulating water at the Couette entry and output points. Another control was made directly in the illuminated volume by recording the turbidity. Thermal regulation of ± 3 mK could be achieved during about 30 mn.

The radius of the inner cylinder was $r = 24.91 \pm 0.01$ mm, the gap was $e = 1.125 \pm 0.005$ mm, and the sheared length $L = 69.70 \pm 0.01$ mm; the total optical path was $l = 78.0 \pm 0.2$ mm. The outer cylinder was made to rotate to prevent Reynolds instabilities. In order to minimize leaks, which cause variations in the mixture concentration, a magnetic driver was used. Shear rates from 3.53 to 353 sec^{-1} have been obtained; they led to negligibly small heating effects as verified by the turbidity measurements.

A circularly polarized (He-Ne) laser beam (Fig. 1) was set through a rotating polarizer after having been slightly focused. It was directed in the cylinders gap. We used thin (0.1 mm) glass windows to lower the parasitic birefringences. These windows were sealed by means of indium rings.

The optical axes of the flow birefringence have been detected by two means. We crossed the analyzer and the polarizer and detected the minimum of the transmitted light when rotating both the analyzer and the polarizer, or we detected the minimum of the phase shift when interposing a weak birefringent rotating plate.¹⁰ We have checked that to within the accuracy of our measurements (1°) the axes remained directed at 45° to the flow axis when approaching T_c .

The birefringence was measured by adjusting the incoming beam polarization at 45° from the axes and by interposing between the Couette and the analyzer a $\lambda/4$ plate with an axis parallel to the incident polarization. After having passed through the analyzer the transmitted light was detected by a photomultiplier. A Faraday rotator¹¹ was set between the $\lambda/4$ plate and the analyzer; it has two functions: (i) light modulation in order to use a lock-in amplifier for determining the minimum of light transmission with accuracy, and (ii) rotation of the transmitted beam polarization by superimposing a dc voltage; this method allowed an accuracy of 0.1° to be obtained on the analyzer rotation angle.

The rotation angle $\delta\phi$ of the analyzer (or alternatively of

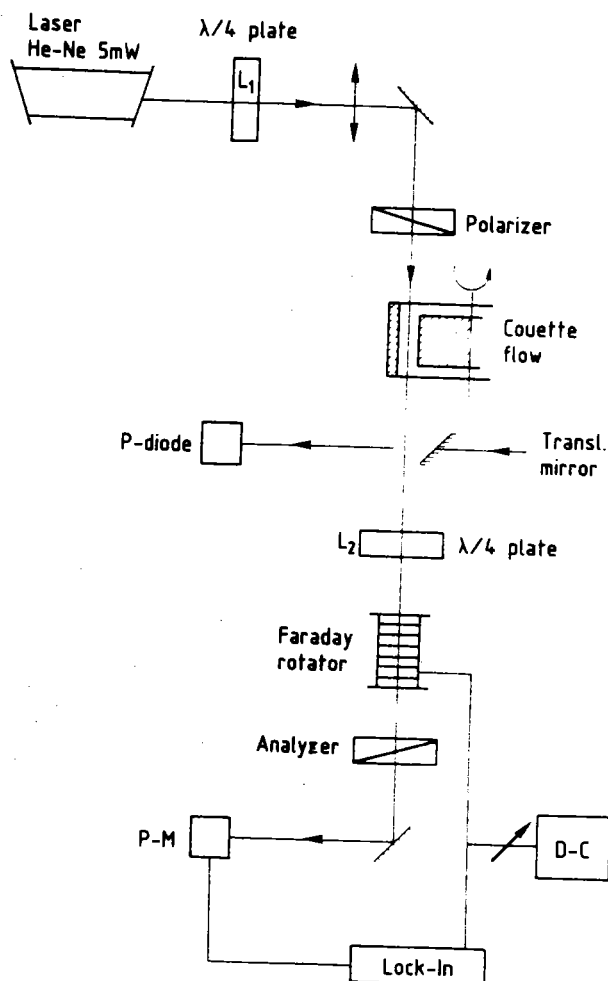


FIG. 1. Experimental setup. The plate L_1 produces a circularly polarized light so as to maintain constant the light intensity when the polarizer is rotated. For dichroism experiments L_2 was removed.

the Faraday rotator) measures the birefringence δn_R :

$$\delta n_R = \lambda_0 \delta\phi / \pi L$$

In presence of dichroism this formula remains exact, but the minimum is no longer zero.

The dichroism amplitude δn_I was measured by removing the $\lambda/4$ plate;⁵ the analyzer rotation angle $\delta\phi'$ measures δn_I through the same relationship, when $\delta\phi'$ remains small:

$$\delta n_I = \lambda_0 \delta\phi' / \pi L$$

The Couette cell was filled with the binary fluid nitrobenzene-*n*-hexane (N-H) at the critical mass fraction of nitrobenzene, i.e., 0.525 according to Ref. 8. At each temperature level the turbidity was determined and compared with the theoretical variation. This procedure enables detections of possible deviations from the initial critical concentration due to small leaks (cf. the turbidity measurements of Ref. 9 which were performed at various concentrations).

RESULTS AND DISCUSSION

The following critical amplitudes have been used for the system (N-H):⁸

$$\xi_0 = 2.65 \text{ \AA}, \quad A_0 = 2.65 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-1}, \quad A = 3.35 \times 10^{-12} \text{ c.g.s.},$$

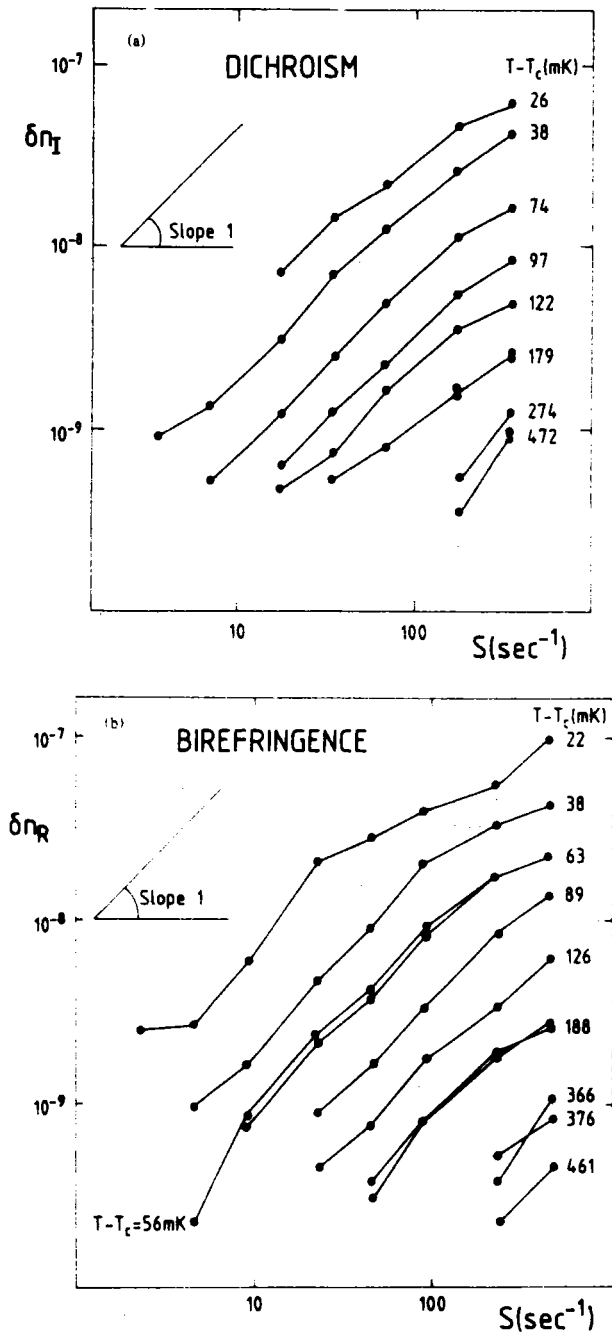


FIG. 2. (a) Dichroism and (b) birefringence vs shear rate (S) at different temperatures from T_c .

$n = 1.444$ at $6238 \text{ \AA}$ and 20°C .

$$\eta = 1.36 \times 10^{-4} \exp\left[\frac{3.58}{1+t}\right] \times 10^{-4} P_0$$

The decay time (τ) can be estimated² as being the diffusion time of a fluctuation of size ξ over length ξ , i.e., $\tau = 16\eta\xi^3/k_B T_c$. Then the condition of weak shear $S\tau < 1$ becomes $T - T_c > 1.07 \times 10^{-3} S^{1/3}$. The largest shear we used being 353 sec^{-1} means that all experiments must be performed in the range $T - T_c > 25 \text{ mK}$ in order to stay in the weak-shear regime.

Let us consider first the shear dependence of δn_R and δn_I . In Fig. 2 are drawn the δn variations versus S at dif-

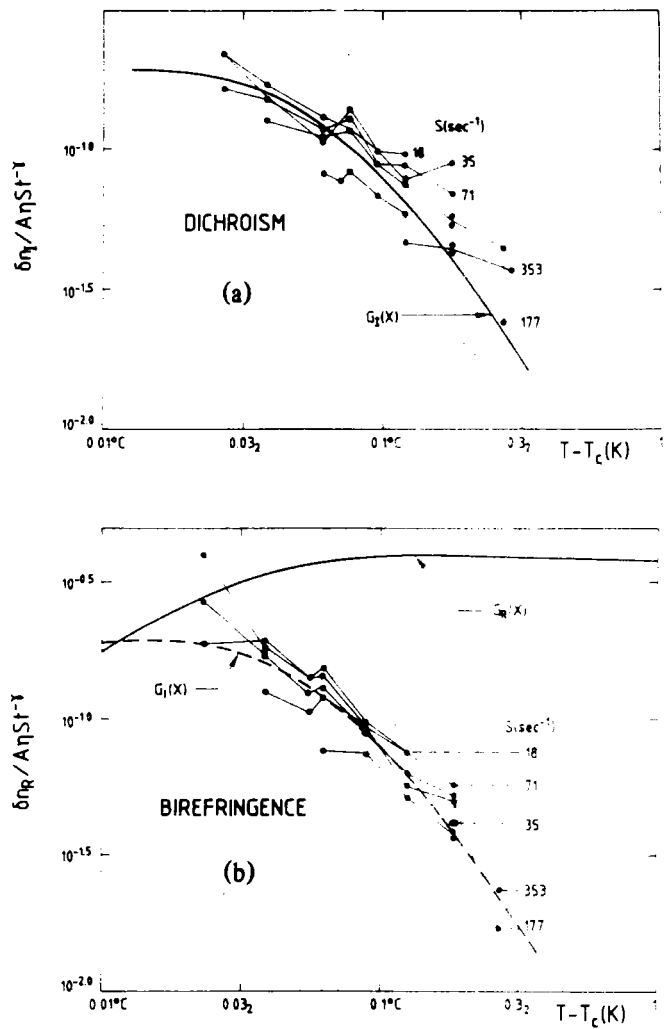


FIG. 3. (a) Dichroism scaling function deduced from experimental data at different shear rates and versus temperature compared to the OK function $G_I(X)$ (full line). (b) Birefringence scaling function deduced from experimental data compared to the OK functions $G_R(X)$ (full line) and $G_I(X)$ (broken line).

ferent temperature levels in a log-log plot. The birefringence and dichroism data clearly support a linear variation with shear as expected from relation (1).

We have reported in Fig. 3 the experimental scaling functions $G(X) = \delta n / A S \eta \tau^{-\gamma}$. We have considered only data where $S\tau < 0.2$ and for clarity we have reported only the higher shear data. *There are no adjustable parameters.* If the dichroism agrees well with the scaling function $G_I(X)$ as written in Eq. (3), there are serious discrepancies with the birefringence function $G_R(X)$ [Eq. (2)]. An agreement could not be obtained with a mere multiplicative factor. However replacing G_R by G_I removes the discrepancy; in other words this means that $\delta n_R \approx \delta n_I$, a result which can be checked directly on the rough experimental data.

CONCLUDING REMARKS

It should be noted that the birefringence and dichroism amplitudes are larger by several orders of magnitude than the corresponding phenomena far from T_c .

The OK theory of dichroism is seen to describe remarkably well the experimental data. The starting points of the calculation—deviation to the Lorentz-Lorenz formula due to the long-ranged part of the correlation function and expansion of the correlation function to first order in $S\tau$ —seem therefore to be well verified. The fact that the discrepancy in the birefringence amplitude vanishes if one considers the same scaling function as for dichroism needs additional

work. Also more precise values of the angle between the flow and the optical axes seem desirable in order to check a possible $T - T_c$ dependence.

ACKNOWLEDGMENT

We gratefully thank A. Onuki for useful correspondence.

¹Phase transitions: *Status of the Experimental and Theoretical Situation, Cargèse, 1980*, proceedings of a summer institute held in Cargèse, Corsica, France, July 16–31, 1980, NATO Advanced Studies Institute, Series B, Physics, Vol. 72, edited by M. Lévy, J. C. Le Guillou, and J. Zinn-Justin (Plenum, New York, 1982).

²A. Onuki and K. Kawasaki, *Prog. Theor. Phys. Suppl.* **64**, 436 (1978); A. Onuki, K. Kawasaki, and K. Kawasaki, *Ann. Phys. (N.Y.)* **131**, 217 (1981).

³D. Beysens, M. Gbadamassi, and L. Boyer, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 1253 (1979); D. Beysens and M. Gbadamassi, *Phys. Rev. A* **28**, 2491 (1983).

⁴A. Onuki and K. Kawasaki, *Phys. Lett.* **78A**, 354 (1980).

⁵A. Onuki and K. Kawasaki, *Physica A* **111**, 607 (1982).

⁶D. Beysens and M. Gbadamassi, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 846 (1981).

⁷Y. C. Chou and W. I. Goldburg, *Phys. Rev. Lett.* **47**, 1155 (1981).

⁸G. Zalczer and D. Beysens, *Phys. Rev. A* **28**, 440 (1983).

⁹See, e.g., V. N. Tsvetkov, *Polym. Rev.* **6**, 563 (1964).

¹⁰J. Leray, G. Scheibling, and Ph. Gramain, *J. Chem. Phys.* **139**, 1396 (1963).

¹¹F. Baas, I. N. Breunese, H. F. P. Knaap, and J. J. M. Beenaker, *Physica A* **88**, 1 (1977).

ANNEXE E

Matrice de passage de la base (u,v,w) vers la base (X,Y,Z)

$\cos\phi\cos\theta\cos\psi - \sin\phi\sin\psi$	$\sin\phi\cos\theta\cos\psi + \cos\phi\sin\psi$	$-\sin\theta\cos\psi$
$-\cos\phi\cos\theta\sin\psi - \sin\phi\cos\psi$	$\sin\phi\cos\theta\sin\psi + \cos\phi\sin\psi$	$\sin\theta\sin\psi$
$\cos\phi\sin\theta$	$\sin\phi\sin\theta$	$\cos\theta$

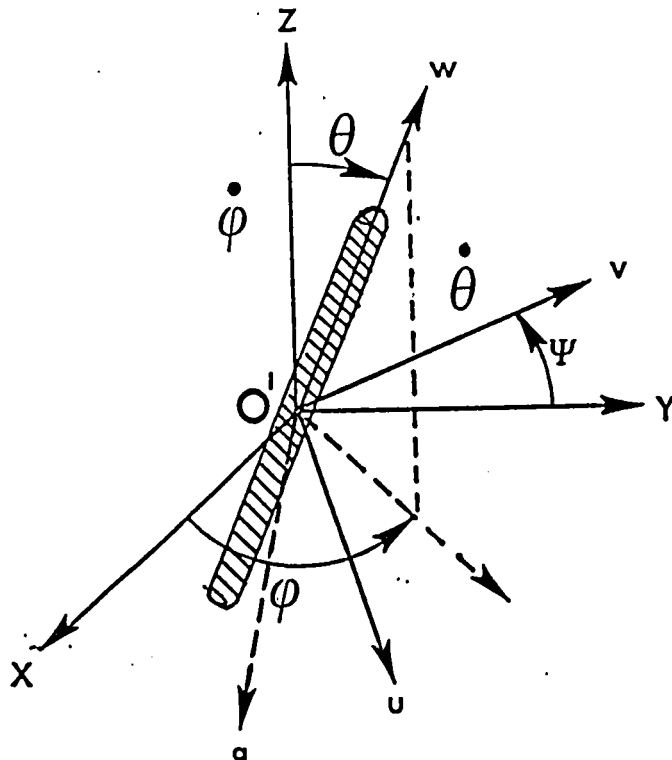


Fig. 4.7. : Repère fixe O'XYZ et lié à la particule O'uvw