



HAL
open science

Mûrissement et coalescence de mousses liquides

Emilie Forel

► **To cite this version:**

Emilie Forel. Mûrissement et coalescence de mousses liquides. Matériaux. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. NNT : 2017SACLS431 . tel-01788971

HAL Id: tel-01788971

<https://theses.hal.science/tel-01788971>

Submitted on 9 May 2018

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

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

NNT : 2017SACLS431



THÈSE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY
PRÉPARÉE À
L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD, AU LABORATOIRE DE
PHYSIQUE DES SOLIDES

ECOLE DOCTORALE n°564
Physique en Ile-de-France
Spécialité de doctorat : Physique

par

MME. EMILIE FOREL

**Mûrissement et coalescence de mousses
liquides**

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 19 décembre 2017 :

Composition du Jury :

Mme. BRIGITTE PANSU	Professeur, Université Paris Sud	(Présidente du jury)
Mme. ANNE-LAURE BIANCHE	Chargée de Recherche, ILM, CNRS	(Rapportrice)
M. ARNAUD SAINT-JALMES	Directeur de Recherche, IPR, CNRS	(Rapporteur)
M. MARCO BRAIBANTI	Attaché Scientifique, European Spatial Agency (ESA), Pays-bas	(Examinateur)
Mme. EMMANUELLE RIO	Maître de Conférence, Université Paris Sud	(Directrice de thèse)
Mme. DOMINIQUE LANGEVIN	Directrice de Recherche Émérite, LPS, CNRS	(Co-Directrice de thèse)

Remerciements

Pour terminer ce travail de thèse, je tiens à remercier un certain nombre de personnes sans qui cette thèse n'aurait pas été possible. Pour commencer, je tiens à remercier les membres du jury pour avoir accepté de juger mon travail de thèse : Anne-Laure Biance et Arnaud Saint-Jalmes qui ont accepté de rapporter cette thèse ainsi que Marco Braibanti pour avoir accepté de faire partie de mon jury et Brigitte Pansu pour avoir présidé le jury.

Tout d'abord, je tiens à remercier les directeurs consécutifs du laboratoire, Dominique Chanderis et Sylvain Ravy. Bien sûr, je tiens également à dire un grand merci à mes directrices de thèse : Emmanuelle Rio et Dominique Langevin. Merci à toutes les deux pour m'avoir confié cette thèse. Emmanuelle, merci pour ton soutien, ta grande disponibilité malgré tes multiples agendas, merci de m'avoir fait confiance tout au long de la thèse. Dominique, merci pour toutes les discussions, ta gentillesse, ton immense savoir que tu partages avec nous sans compter.

Cette thèse a été financée par ESA et le CNES, plus particulièrement, je remercie Olivier Minster, Christophe Delaroche les responsables du programme pour l'ESA et le CNES, mais également, Jean Doucet le responsable du CEPHYTEN. Je tiens également à remercier Marco Braibanti, pour son travail de coordination entre les différentes équipes faisant partie du projet "Soft Matter Dynamics".

Je remercie toutes les personnes des équipes MOUS et AFPO qui se sont regroupées pour devenir MMOI. Fred, Christophe, Liliane, François, Anniina et Sandrine merci pour les discussions et les fous rires aux pauses-café. Mais aussi les thésards et post-docs du groupe : Marion, Jonas, Marceau, Manon, Raphaëlle, Pan, Lorène, Thibaut, Anais, Maxime, Alesya, Zenaida et Pavel. Anais, c'était très sympa de passer ces trois années de thèse ensemble. Maxime, co-bureau ultra-dynamique qui parle à son ordinateur, son bureau, ses plantes... Merci pour les bons moments dans la bonne humeur. Marion merci pour les discussions sur tout et rien lorsque la baisse de motivation se fait sentir, merci à toi de veiller sur tous les thésards. Jonas, enfin quelqu'un qui arrive plus tard que moi au labo, merci pour les discussions en soirée qui finissent toujours en débat pour le pire de ceux qui sont en face de toi. ;) Manon, qui menace la vie des chatons si on touche à sa manip, merci pour les fous rires. :) Alesya merci pour ton amitié et ton soutien, j'ai vraiment apprécié de travailler avec toi, c'est toujours plus sympa de monter et faire une manip à deux, surtout quand ça ne fonctionne pas.

Je tiens également à remercier Sébastien Beguin, Gabriel Le Doudic, Louis Rioux et Adrian Gans pour avoir été de merveilleux stagiaires. Gabriel, je te souhaite bonne chance pour ta thèse et je suis sûre que tu t'en sortiras très bien.

Je tiens également à remercier mes collaborateurs : Wiebke Drenchkan avec qui

il est super de travailler, merci pour ton dynamisme, ton humour et tes super idées. Anniina Salonen, merci pour ton dynamisme contagieux. Benjamin Dollet, merci de m'avoir permis d'utiliser ton programme et pour ta disponibilité pour m'aider à le prendre en main, c'était vraiment très instructif de programmer avec toi. Je tiens à remercier Georg Maret de m'avoir accueilli dans son équipe à Université de Constance pour des expériences de lévitation magnétique. Enfin, je tiens à remercier le personnel de "Airbus Defence and Space" à Friedrichshafen pour nous avoir permis de tester le montage expérimental "Soft Matter Dynamics" dans leurs locaux.

Je tiens également à remercier Oriane Bonhomme, Pierre-François Brevet et Emmanuel Bénichou de l'équipe ONLI à Lyon ainsi que les anciens et actuels thésards de cette équipe (Aurélié, Anthony, Emeric et Lucile) avec qui j'ai découvert la recherche.

Je souhaite remercier le personnel technique et administratif du laboratoire et plus particulièrement Vincent Klein, Jérémie Sanchez, Sambath Saranga pour votre expertise et votre aide tout au long de ma thèse. Ismael Nimaga, Gilles Gillier merci pour les pièces que vous m'avez fabriqué. Marie-France Mariotto, Sabine Hoarau, Sophie Tourlet, Mélanie Decraene et Véronique Thieulard, merci pour votre aide constante dans la gestion des tâches administratives. Enfin un grand merci à Ilan Settouraman du service informatique pour ton aide avec tous les soucis informatiques.

Je tiens également à remercier la bande des voisins : Déborah, Héloïse, Arthur, Mélissa, Hugo et Matthieu pour les apéros et les après-midi jeu de société qui permettent de longues discussions et des débats sur tout et rien. Merci aux membres de l'UPS volley pour leur accueil et plus particulièrement l'équipe de Cap'tain Isa (Laura, Isabelle, Fred, Rémi, Bernand, Bertrand, Laurent et Christophe) et l'équipe féminine (Laura C., Laura P., Mélanie, Marine, Sandrine, Christina, Emeline, Yona, Délia, Amélie, Valérie mais aussi Marie-Eve et Aurore). Merci les volleyeurs pour le fun de ces deux dernières années. Je remercie mes amis Laurence et Laurine pour les soirées à l'improviste entre deux trains et les road-trips et Nathanael, ami d'enfance, avec qu'il est toujours sympa de discuter. :) Enfin, merci à toute ma famille en particulier mon frère, mon oncle Christian et mes parents pour leurs inconditionnels soutiens.

Table des matières

Introduction générale	4
I Généralités sur les mousses liquides	4
Introduction	5
1 Interface	6
1.1 Tension de surface et pression capillaire	6
1.1.1 La tension de surface : origine physique	6
1.1.2 Loi de Laplace et pression capillaire	7
1.2 Tensioactifs et pression de disjonction	8
1.2.1 Les tensioactifs	8
1.2.2 Pression de disjonction	9
2 Structure d'une mousse	11
2.1 Lois de Plateau	11
2.1.1 Lois de Plateau dans une mousse 3D	11
2.1.2 Lois de Plateau dans une mousse 2D	12
2.1.3 Théorème de décoration	13
2.2 Fractions liquides	14
2.2.1 Fraction liquide volumique	14
2.2.2 Fraction liquide bidimensionnelle et fraction liquide surfacique	14
2.3 Pression osmotique	15
2.3.1 Définition	15
2.3.2 Lien entre la pression osmotique et la fraction liquide	15
2.4 Profil de fraction liquide dans une mousse	16
2.5 Structure des mousses 2D	17
2.5.1 Géométrie et topologie	17
2.5.2 Désordre topologique	18
3 Stabilité d'une mousse	19
3.1 Mûrissement	19
3.1.1 Définition	19
3.1.2 Les différents régimes	20
3.1.3 Modèles de mûrissement	20
3.1.4 Loi de von Neumann : mousses 2D	20
3.1.5 Modèle de Von Neumann-Mullins : mousses 3D	20
3.1.6 Modèle de Lifshitz-Slyozov-Wagner ou d'Ostwald : mousses hu- mides	21
3.2 Drainage	21

3.3	Coalescence	22
3.4	Les réarrangements T1 et T2	22
3.4.1	Réarrangement T1	22
3.4.2	Réarrangement T2	22
3.5	Interaction entre les trois processus	22
3.5.1	Interaction entre mûrissement, coalescence et drainage	23
3.5.2	Interaction entre mûrissement et coalescence	23
3.6	Éviter le drainage	23
3.6.1	Injection de liquide : Drainage forcé en régime stationnaire	24
3.6.2	Cellule rotative	24
3.6.3	Lévitiation magnétique	24
3.6.4	Vols paraboliques et ISS	24
	Conclusion et problématique	25
	II Mousse 2D	27
	Introduction	28
4	Dispositif expérimental	29
4.1	Montage expérimental	30
4.1.1	Description de la cellule 2D	30
4.1.2	Acquisition d'image	32
4.2	Caractérisation de la mousse 2D	33
4.2.1	Montage expérimental de caractérisation	33
4.2.2	Protocole expérimental	34
4.2.3	La fraction liquide surfacique	36
4.2.4	Rayon de courbure des pseudo-bords de Plateau	38
4.2.5	Lien entre la fraction liquide surfacique et le rayon des pseudo-bords de Plateau	40
4.2.6	Mousse monodisperse et mousse polydisperse	40
4.3	Conclusion sur le montage expérimental	42
5	Identification et analyse des mousses qui coalescent	44
5.1	Paramètre de convexité	44
5.1.1	Définition de l'enveloppe convexe	45
5.1.2	Convexité des bulles	46
5.2	Réalisation des expériences	47
5.2.1	Protocole de nettoyage et préparation des solutions	47
5.2.2	Protocole expérimental	47
5.3	Étude de la compétition entre mûrissement et coalescence grâce au paramètre de convexité	48
5.3.1	Paramètre de convexité et nombre cumulé d'évènements de coalescence	48
5.3.2	Définition du temps de coalescence	49
5.4	Programme MATLAB : suivi de bulles	50
5.4.1	Prétraitement avec une macro d'ImageJ	50
5.4.2	Identification des bulles	51
5.4.3	Élimination des fausses bulles	52

5.4.4	Suivi des bulles	54
5.4.5	Identification des évènements de coalescence	55
5.4.6	Informations sauvegardées pour l'ensemble des bulles et les bulles impliquées dans la coalescence	59
5.4.7	Faux évènements de coalescence	59
5.5	Conclusion	61
6	Mûrissement : mesure de la perméabilité	62
6.1	Mûrissement de mousses 2D	62
6.1.1	Loi de von Neumann	62
6.1.2	Modification apportée par Schimming à la loi de von Neumann pour les mousses humides	63
6.2	Perméabilité des films : Modèle du sandwich	65
6.3	Méthodes de mesure de la perméabilité	66
6.3.1	Méthode de la bulle diminuante	66
6.3.2	Appareil de mesure de la perméabilité des films	67
6.3.3	Diffusion au travers de films dans un cylindre	67
6.3.4	Méthode du temps catastrophique	68
6.4	Mesure de la perméabilité des films	69
6.5	Conclusion	72
7	Coalescence	73
7.1	Pistes pour expliquer la coalescence	74
7.1.1	Pression capillaire critique	74
7.1.2	Fraction liquide critique	74
7.1.3	Taille de bulles critique	75
7.2	Étude de l'influence des paramètres sur la coalescence	75
7.2.1	Analyse globale, à l'échelle de la mousse	76
7.2.2	Analyse locale, à l'échelle d'une bulle	78
7.3	Conclusion	81
	Conclusion	82
III	Mousse 3D	84
	Introduction	85
8	fraction liquide volumique et surfacique	86
8.1	Dispositif expérimental	87
8.1.1	Génération de la mousse et mesure de la taille des bulles	87
8.1.2	Mesure de la fraction liquide	89
8.1.3	Mesure de la fraction liquide surfacique	90
8.2	Résultats expérimentaux	91
8.3	Interprétation des résultats et modélisation	92
8.3.1	Description basée sur l'énergie	92
8.3.2	Approximation géométrique	95
8.4	Conclusion et perspectives	96

9	Diffusion multiple et lois de croissance	98
9.1	Diffusion multiple de la lumière	99
9.1.1	Libre parcours moyen de transport	99
9.1.2	Transmission diffuse de la lumière	100
9.1.3	Diffusion dynamique de la lumière	101
9.1.4	Conditions nécessaires pour la diffusion multiple de la lumière	101
9.2	Évolution de la taille moyenne des bulles au cours du temps dans le régime auto-similaire	101
9.2.1	Loi de croissance dans une mousse sèche	102
9.2.2	Loi de croissance dans un liquide bulleux ($\phi > \phi_c$)	102
9.2.3	Hypothèse d'autosimilarité	102
9.3	Expériences mettant en évidence les lois de croissance	103
9.3.1	Tomographie	103
9.3.2	Imagerie par résonance magnétique	103
9.3.3	Mesure par DTL	103
9.4	Comparaison des différents coefficients obtenus dans la littérature	104
9.5	Conclusion	104
10	Loi de croissance des mousses confinées	110
10.1	Cellule confinée	111
10.1.1	Principe	111
10.1.2	Montage expérimental	111
10.1.3	Protocole expérimental	112
10.2	Homogénéité de la fraction liquide	113
10.3	Mûrissement en fonction de la fraction liquide	116
10.3.1	Protocole d'ajustement de la loi de puissance	116
10.3.2	Protocole d'analyse des résultats	116
10.3.3	Analyse de mousses de différentes compositions chimiques et différentes fractions liquides	117
10.4	Conclusion	122
11	Étude du mûrissement des mousses humides en microgravité	123
11.1	Le montage expérimental	123
11.1.1	Génération de la mousse dans les cellules	123
11.1.2	Système de visualisation	124
11.1.3	Mesure par diffusion multiple de la lumière	124
11.2	Les cellules	126
11.2.1	Description de la cellule	126
11.2.2	Protocole de nettoyage	126
11.2.3	Propreté des cellules	127
11.2.4	Remplissage des cellules	128
11.3	Mesure de la taille des bulles	128
11.3.1	Protocole du traitement d'image	128
11.3.2	Influence des différents paramètres de contrôle	128
11.3.3	Évolution au cours du temps	131
11.4	Conclusion	132
	Conclusion	133

Conclusion générale	139
12 Annexe A : rapport sur les expériences réalisées en lévitation magnétique	140
12.1 Introduction	140
12.2 Intensity calculation	141
12.2.1 Transmitted intensity in function of foam age	141
12.2.2 Scaling exponent of transmitted intensity versus liquid fraction .	142
12.3 DWS measurement	143
12.3.1 Evolution of the correlation function with foam age	143
12.3.2 Evolution of the decay time with foam age	143
12.4 Conclusion	144
Annexes	140
Nomenclature	145
Bibliographie	151

Introduction générale

Les mousses liquides sont une assemblée de bulles dispersées dans une phase liquide continue, ce qui leur confère à la fois les propriétés d'un solide et d'un liquide. Les mousses sont très utilisées dans différents domaines de l'industrie tels que l'agroalimentaire, les cosmétiques ou encore la lutte contre les incendies. Cependant, les mousses liquides ne sont pas des matériaux stables et elles vieillissent au cours du temps jusqu'à disparaître. Afin d'optimiser les applications, il est souhaitable de pouvoir contrôler l'évolution des mousses dans le temps. Le vieillissement se fait par trois processus : le premier est le drainage qui est l'écoulement de liquide entre les bulles à cause de la gravité. Il est actuellement assez bien compris. Le deuxième est le mûrissement dû à la différence de pression de Laplace entre les bulles qui vont, pour les plus petites diffuser vers les plus grosses. De nombreuses études ont permis d'avoir une bonne compréhension du mûrissement dans le cas des mousses sèches. Le troisième processus est la coalescence qui est la fusion de deux bulles suite à la rupture du film les séparant. Ce processus a été étudié à différentes échelles, du film jusqu'à la mousse, mais reste très mal compris même pour des mousses sèches.

Une meilleure compréhension de ces processus est nécessaire pour contrôler la stabilité des mousses liquides. En particulier, les mousses humides restent très mal connues alors qu'elles sont très couramment utilisées, au moins de manière transitoire. Ainsi, lors de la génération d'une mousse, une mousse humide peut apparaître. Cependant, l'étude des mécanismes de vieillissement est rendue complexe par leurs interactions. En effet, le drainage rend les films plus fins, ce qui facilite le mûrissement et la coalescence. De même, ces deux derniers processus favorisent l'augmentation de la taille des bulles et donc de la largeur des bords de Plateau et favorise le drainage. Il est donc nécessaire de séparer ces processus afin de les étudier.

Au cours de ma thèse, j'ai donc réalisé diverses expériences pour éviter le drainage dans les mousses 2D et 3D afin de pouvoir étudier le mûrissement, la coalescence et la compétition entre les deux.

Dans la partie I, nous reviendrons sur les généralités relatives aux mousses. Dans le chapitre 1, nous rappellerons l'importance de la tension de surface et des pressions capillaire et de disjonction dans la stabilité des mousses. Dans le chapitre 2, nous verrons les lois structurelles des mousses ainsi que l'importance de la fraction liquide. Enfin, dans le chapitre 3, nous nous intéresserons aux trois processus de vieillissement des mousses (mûrissement, coalescence et drainage) ainsi qu'à l'interaction entre ces processus. Enfin, nous verrons les différentes méthodes expérimentales permettant de garder une fraction liquide constante et permettant l'étude des deux autres phénomènes.

Dans la partie II, nous étudierons le mûrissement et la coalescence des mousses 2D. Dans le chapitre 4, nous verrons le montage expérimental qui servira à étudier ces processus. Le montage est composé d'un réservoir relié à deux plaques séparées par une distance e contrôlée. Ce dispositif permet d'obtenir des mousses d'humidité contrôlée par la hauteur de liquide dans le réservoir. Ensuite, nous caractériserons le montage expérimental afin de nous assurer que le paramètre de contrôle pertinent de cette expérience est la pression capillaire. De plus, cette caractérisation permet de mettre en évidence un lien entre la fraction liquide surfacique et le rayon des bords de Plateau. Dans le chapitre 5, nous décrirons, dans un premier temps, un programme Matlab permettant d'obtenir des informations sur toutes les bulles composant une mousse et de suivre leur évolution d'une image à l'autre afin d'identifier quelles sont les bulles qui coalescent. Dans un second temps, nous nous intéresserons à un paramètre permettant de différencier les mousses dont l'évolution a principalement eu lieu par mûrissement de celles qui ont évolué par coalescence. Dans le chapitre 6, en

utilisant les expériences pour lesquelles nous observons uniquement du mûrissement, nous mesurerons la perméabilité des films en utilisant la loi de von Neumann et une amélioration pour les mousses humides. Enfin, dans le chapitre 7, nous traiterons de la coalescence. L'utilisation du montage expérimental ainsi que le programme de suivi de bulles permet, d'une part, de découpler les différents paramètres susceptibles d'être impliqués dans la coalescence (taille des bulles, rayon des bords de Plateau et fraction liquide) et, d'autre part, de réaliser une analyse globale et une analyse locale de ces paramètres.

Dans la partie III, nous regarderons le mûrissement de mousses 3D humides. Dans le chapitre 8, nous ferons une rapide introduction de la diffusion multiple de la lumière qui est une technique couramment utilisée pour étudier les milieux opaques tels que les mousses. Puis, nous rappellerons les lois de croissance de bulles dans une mousse sèche et dans un liquide bulleux. Dans le chapitre 9, nous ferons un rapide résumé des résultats de la littérature. Dans le chapitre 10, nous présenterons des résultats expérimentaux obtenus sur des mousses confinées afin de déterminer les lois de croissance. Enfin, dans le chapitre 11, nous présenterons un projet appelé "Soft Matter Dynamics" visant à étudier le mûrissement et les réarrangements des bulles dans les mousses humides. Ce projet est une collaboration entre une équipe scientifique, l'agence spatiale européenne et "Airbus defence and space" et consiste à créer un dispositif expérimental qui sera envoyé dans la station spatiale internationale. Dans ce chapitre, nous verrons, après une brève description du montage expérimental, les procédures de nettoyage et de remplissage des cellules puis un programme permettant de mesurer automatiquement la taille des bulles. Enfin, nous terminerons par l'étude des paramètres de contrôle de la génération des mousses que nous avons pu tester lors d'une visite chez Airbus.

Première partie

Généralités sur les mousses liquides

Introduction

La mousse est un assemblage de bulles. Ces bulles sont séparées par un film, trois films se rejoignent en un bord de Plateau dans lequel le liquide peut s'écouler. Des tensioactifs à l'interface entre la phase gazeuse et la phase liquide permettent de stabiliser le système. Une mousse est essentiellement composée d'interfaces entre liquide et air. Ces deux milieux sont non miscibles car les molécules qui les composent ont une attraction plus grande pour les molécules de leur propre milieu que pour les molécules de l'autre milieu. Dans cette première partie, nous ferons un rapide retour sur la tension de surface et sur les différentes forces présentes dans une mousse (pression capillaire, de disjonction et osmotique) Ensuite, nous verrons les différents processus de déstabilisation des mousses, leurs mécanismes et leurs interactions. Ces processus sont au nombre de trois : le drainage (dû à l'écoulement gravitaire de liquide entre les bulles), le mûrissement (dû à la différence de pression entre les bulles) et la coalescence (due à la rupture d'un film entre deux bulles).

Chapitre 1

Interface

1.1 Tension de surface et pression capillaire

1.1.1 La tension de surface : origine physique

La première façon de voir la tension de surface est à l'échelle moléculaire. Prenons l'exemple d'une interface liquide/gaz. Dans le liquide, les forces attractives, dues aux énergies de cohésion, exercées sur les molécules par leurs voisines se compensent. Ainsi, les molécules à l'intérieur du liquide sont dans un état énergétique favorable. À l'inverse, à l'interface, ces molécules sont en contact avec les molécules du gaz d'une part et les molécules du liquide d'autre part, sont dans un état énergétique défavorable. Ainsi, les forces exercées sur une molécule à l'interface ne se compensent pas. Ces molécules perdent la moitié de leur énergie de cohésion. Elles sont donc dans un état énergétique défavorable. L'excès d'énergie engendré à l'interface est à l'origine des forces de tension de surface. Afin de minimiser cet excès d'énergie, il faut minimiser la surface de contact entre les deux fluides. Ceci explique, par exemple, la forme sphérique des bulles correspondant à la surface minimale pour un volume donné.

Comme nous venons de le voir la tension de surface a une origine moléculaire. Elle est également à l'origine d'une force qu'il est possible de mesurer à l'échelle macroscopique. Pour mettre en évidence la tension de surface, il est possible de faire l'expérience schématisée sur la figure 1.1. Un cadre métallique de largeur L sur lequel est posée une tige métallique, est plongé dans une solution savonneuse afin de créer un film de savon sur le cadre, de part et d'autre du barreau, figure 1.1a. Dans cette configuration, la tige

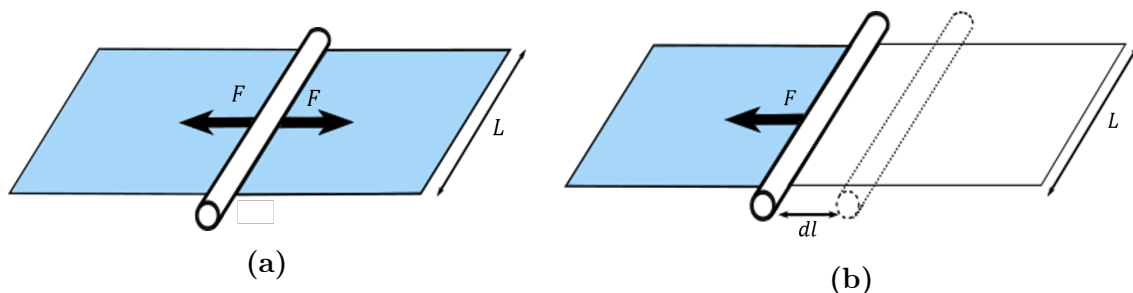


FIGURE 1.1: *Expérience mettant en évidence la tension de surface : a) un barreau est posé sur un cadre métallique de largeur L . De chaque côté du barreau se trouve un film de savon exerçant une force F sur le barreau. b) On casse l'un des films de savon et le barreau se déplace jusqu'à ce que le film ait une aire nulle. Ici, le barreau s'est déplacé d'une distance dl .*

ne bouge pas. En effet, chacun des films exerce sur le barreau une force F identique. En cassant l'un des films comme sur la figure 1.1b, les forces ne se compensent plus et le film de savon restant tire le barreau afin de réduire sa surface. Le travail $d\Omega$ fourni pour que le barreau se déplace d'une distance dl vaut :

$$d\Omega = Fdl = 2\gamma Ldl = 2\gamma dS \quad (1.1)$$

Dans l'équation 1.1, γ est la tension de surface qui est une énergie par unité de surface ou une force par unité de longueur. Son unité est le N/m. Le facteur 2 provient de la présence de deux interfaces liquide/air. La force F représente la force nécessaire pour déplacer le barreau. La méthode de Wilhelmy, permettant de mesurer la tension de surface, repose sur la mesure de la force liée à la tension de surface. Dans cette méthode, il s'agit de mesurer la force nécessaire pour arracher une lame ou un anneau de l'interface.

1.1.2 Loi de Laplace et pression capillaire

La tension de surface entre deux milieux, A et B, tend à minimiser la surface d'une interface courbe ce qui se traduit par une résultante des forces normales à l'interface non nulle. À l'équilibre, les forces liées à la tension de surface et celles dues à la différence de pression entre les milieux, A et B, se compensent. C'est la loi de Laplace. Ainsi, pour une interface quelconque séparant deux milieux (Figure 1.2a), la différence de pression ΔP entre les deux milieux est

$$\Delta P = P_A - P_B = \gamma C = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (1.2)$$

La courbure C de l'interface séparant les milieux A et B respectivement de pression P_A et P_B , est calculée grâce aux deux rayons de courbures principaux R_1 et R_2 . Ces rayons de courbure correspondent aux rayons de courbure de deux plans perpendiculaires coupant l'interface et passant par la normale \vec{n} comme sur la figure 1.2a. Le rayon de courbure est positif lorsque le centre est dans le milieu en surpression (A sur la figure 1.2a) et négatif s'il est dans le milieu en sous pression. La différence de pression entre les deux milieux, ΔP , est appelée pression capillaire, P_c .

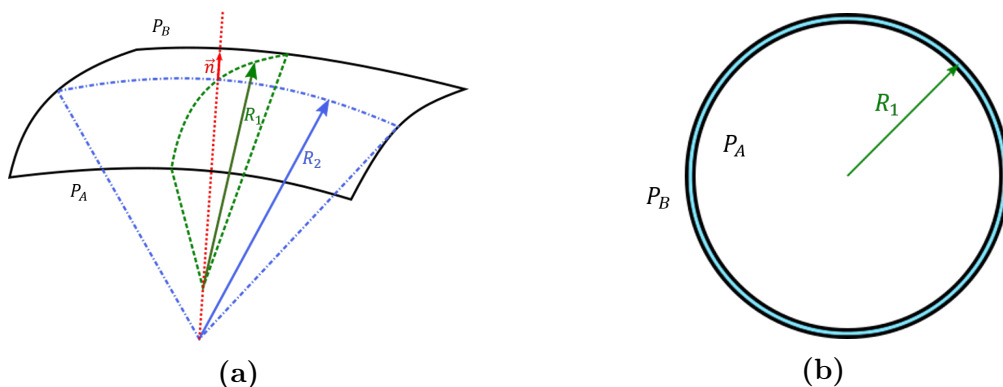


FIGURE 1.2: Loi de Laplace : a) La courbure C d'une interface de forme quelconque séparant un milieu A dans lequel la pression est P_A et un milieu B de pression P_B est donnée par la somme des inverses des rayons de courbure R_1 et R_2 . b) Dans le cas d'une bulle, ces rayons de courbure sont les mêmes, la courbure est donc deux fois l'inverse du rayon de la bulle, R_1 .

La pression à l'intérieur d'une bulle est plus grande qu'à l'extérieur de celle-ci. La bulle est donc en surpression. Dans le cas d'une bulle sphérique de rayon R_1 telle que représentée sur la fig. 1.2b, la pression capillaire est donnée par :

$$P_c = \Delta P = P_A - P_B = \gamma C = \frac{4\gamma}{R_1} \quad (1.3)$$

Dans cette équation, la tension de surface γ , est multipliée par deux car il y a deux interfaces. De plus, la bulle étant sphérique les rayons de courbure sont identiques car l'épaisseur du film de savon est négligeable.

1.2 Tensioactifs et pression de disjonction

1.2.1 Les tensioactifs

Une bulle dont le film est uniquement composé d'eau pure est très instable et casse rapidement. Afin d'augmenter la stabilité de l'interface, il est possible d'utiliser des agents stabilisants tels que des protéines, des nanoparticules ou encore des tensioactifs.

Les tensioactifs : Ces molécules ont la particularité d'être composées d'une tête polaire hydrophile éventuellement chargée et d'une queue hydrophobe composée d'une ou plusieurs chaînes carbonées de longueur variable. De telles molécules sont également appelées molécules amphiphiles. Elles vont s'absorber à l'interface eau-air, avec la tête hydrophile orientée dans le liquide et la queue hydrophobe dans la phase gazeuse. En se plaçant à l'interface, ces molécules amphiphiles diminuant la tension de surface, et on leur donne le nom de tensioactif.

Ces molécules peuvent être chargées, positivement (cationiques) comme dans la famille des C_n TAB (alkyl trimethyl ammonium bromide) ou négativement (anioniques) comme le SDS (sodium dodecyl sulfate). Elles peuvent aussi être neutres comme le Triton X-100.

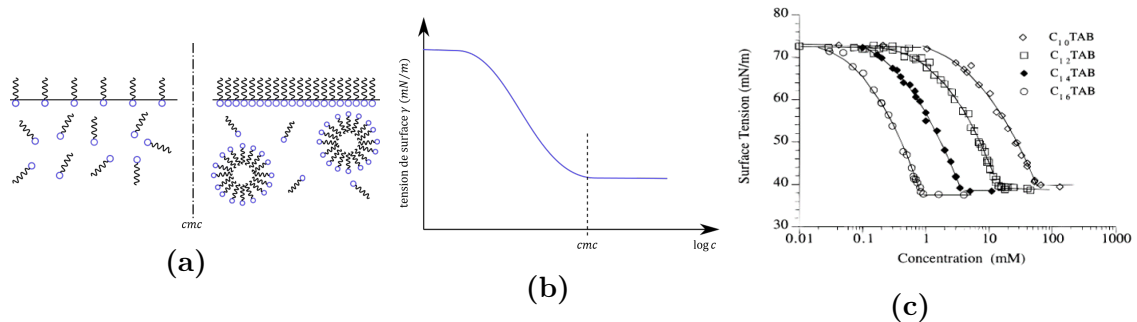


FIGURE 1.3: a) Représentation schématique de la répartition des tensioactifs à l'interface et en volume en fonction de la concentration volumique de tensioactifs. Pour une concentration inférieure à la cmc, il y a un équilibre dans la répartition des tensioactifs entre le volume et l'interface. Pour une concentration supérieure à la cmc, les tensioactifs forment des micelles en solution. b) Représentation schématique de l'évolution de la tension de surface en fonction de la concentration des tensioactifs en solution. La tension de surface diminue avec la concentration jusqu'à la cmc. Ensuite, elle reste constante malgré l'augmentation de la concentration. c) Évolution de la tension de surface en fonction de la concentration en C_n TAB (extrait de [1]). Pour les différentes solutions de C_n TAB, la concentration micellaire critique augmente avec la longueur de la chaîne carbonée.

Concentration micellaire critique : La répartition des tensioactifs entre surface et volume dépend de la concentration en tensioactif. Sur la figure 1.3a est représentée la répartition des tensioactifs entre l'interface et le volume pour différentes concentrations. Ainsi, aux faibles concentrations, l'interface est partiellement couverte de tensioactifs, ceux-ci se répartissent aussi bien à l'interface qu'en volume. Lorsque la concentration volumique de tensioactifs augmente, les tensioactifs couvrent de plus en plus l'interface jusqu'à saturation. Si leur concentration augmente encore, ils formeront des micelles dans le volume ce qui leur permet de protéger les queues hydrophobes du milieu aqueux. La concentration à laquelle se forme la première micelle s'appelle la concentration micellaire critique cmc (Figure 1.3a).

L'augmentation de la concentration en tensioactifs a un effet sur la tension de surface comme le montre la figure 1.3b. La tension de surface diminue jusqu'à une valeur minimale. La concentration pour laquelle cette tension de surface minimale apparaît, correspond à la concentration micellaire critique. La tension de surface reste ensuite constante malgré l'augmentation de la concentration. Sur la fig. 1.3c extraite de [1] est représentée la tension de surface en fonction de la concentration pour la famille des C_nTAB avec $n = 10, 12, 14, 16$. Ces tensioactifs cationiques sont couramment utilisés. Ainsi, pour chaque C_nTAB , lorsque la concentration augmente, il y a une diminution de la tension de surface jusqu'à la cmc puis la tension de surface reste stable. On peut remarquer que la valeur de la cmc diminue avec le nombre n . Ainsi, l'interface est plus rapidement saturée avec un tensioactif à chaîne longue qu'avec un tensioactif à une chaîne courte.

1.2.2 Pression de disjonction

Dans un film stabilisé par des tensioactifs, il existe différentes pressions. La pression capillaire, comme nous l'avons vu dans le paragraphe 1.1.2, est due à la différence de pression entre le gaz et le liquide. Mais il existe également une pression due à la force entre les surfaces du le film liquide. Il s'agit de la pression de disjonction Π_d qui est la force comptée par unité de surface. Si l'on considère un film d'épaisseur l stabilisé par des tensioactifs, la pression de disjonction, Π_d est quasiment nulle pour les valeurs de $l > 10$ nm. Elle contient principalement trois interactions [2, 7] :

- les interactions de van der Waals. La contribution de cette interaction, Π_{vdW} , est donnée par

$$\Pi_{vdW} = -\frac{A_H}{6\pi l^3} \quad (1.4)$$

avec A_H la constante de Hamaker (air-eau-air) et l l'épaisseur du film. Cette première contribution est attractive et a pour conséquence de diminuer l'épaisseur du film.

- la répulsion électrostatique. Cette interaction à longue portée est due aux charge des tensioactifs répartis aux interfaces. Cette répulsion devient importante lorsque $l < 2\gamma_D$ avec γ_D la longueur de Debye. Au-delà, les contre-ions du volume écrantent les charges des tensioactifs aux interfaces. La contribution est de la forme

$$\Pi_{el} \propto \exp^{-\frac{l}{\gamma_D}} \quad (1.5)$$

- la répulsion stérique qui a une très courte portée. En effet, il faut que les interfaces soient très proches l'une de l'autre ($l < 5$ nm) pour que cette force intervienne.

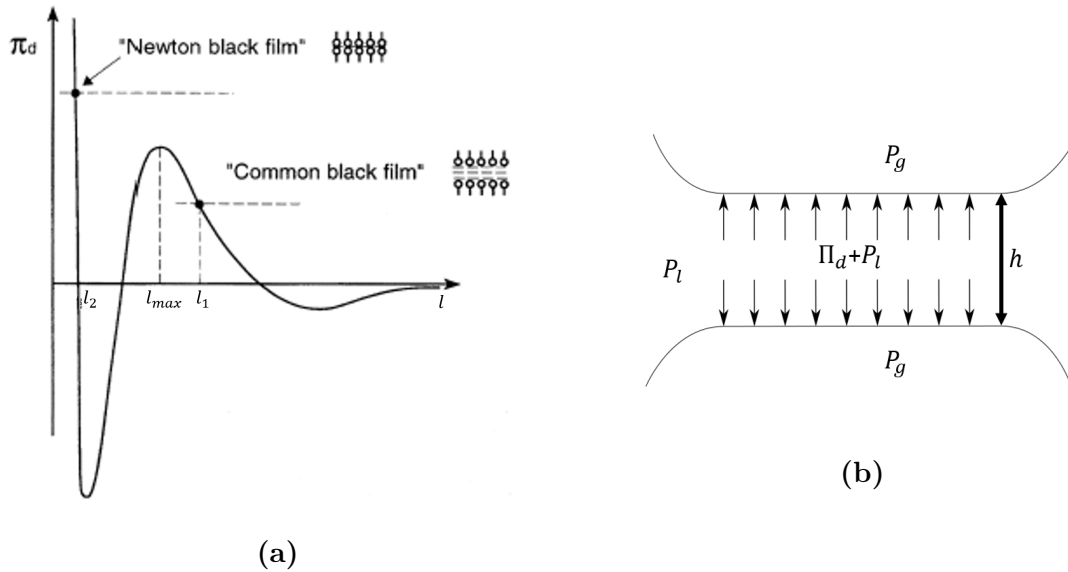


FIGURE 1.4: a) Représentation schématique de la pression de disjonction Π_d en fonction de l'épaisseur l du film (trait plein). En pointillé sont représentées les principales contributions à la pression de disjonction : les interactions de van der Waals, les répulsions électrostatiques et les répulsions stériques. Pour une épaisseur entre quelques dizaines et une centaine de nanomètre, les films stables sont appelés films noirs communs (CBF) et pour $l \approx 5$ nm, les films sont appelés films noirs de Newton (NBF). b) Représentation schématique d'un film stabilisé par des tensioactifs avec P_g la pression du gaz dans les bulles, P_l la pression dans le liquide et Π_d la pression de disjonction dans le film séparant les bulles.

La figure 1.4a, représente la pression de disjonction en fonction de l'épaisseur du film. Lorsque l diminue, la pression de disjonction (trait plein) devient alternativement positive (les deux interfaces se repoussent) et négative (les deux interfaces s'attirent). Les différentes composantes de la pression de disjonction sont également visibles (traits en pointillés). Il existe deux épaisseurs pour lesquelles Π est minimum et le film peut être stable. Les films dont l'épaisseur est de quelques dizaines à une centaine de nanomètres sont appelés les films noirs ordinaires alors que les films noirs de Newton ont une épaisseur de quelques nanomètres (~ 4 nm).

Il existe de nombreux autres modèles. Par exemple, le modèle structural, prend en compte la présence de micelles dans le film et conduit à une contribution oscillante de Π_d [2]. Finalement, le liquide contenu dans un film est aspiré par le pseudo-bord de Plateau à cause de la pression capillaire $P_c = P_g - P_l > 0$ jusqu'à ce que l'épaisseur du film se stabilise pour $\Pi_d = P_c$.

Chapitre 2

Structure d'une mousse

Sommaire

1.1 Tension de surface et pression capillaire	6
1.1.1 La tension de surface : origine physique	6
1.1.2 Loi de Laplace et pression capillaire	7
1.2 Tensioactifs et pression de disjonction	8
1.2.1 Les tensioactifs	8
Les tensioactifs :	8
Concentration micellaire critique :	9
1.2.2 Pression de disjonction	9

Dans le chapitre précédent, nous avons vu les forces qui exercent sur les films stabilisés par des tensioactifs que nous appellerons films de savon. La tension de surface entraîne une minimisation de la surface des films et la structure de la mousse s'organise afin de répondre à ce critère. L'ensemble des lois régissant la structure sont appelées les lois de Plateau que nous verrons dans ce chapitre. Dans un second temps, nous nous intéresserons à un paramètre important dans les mousses, à savoir la fraction liquide permettant de quantifier l'humidité de la mousse. À 2D, cette notion est remplacée par la fraction liquide bidimensionnelle. Enfin, nous définirons la pression osmotique et verrons le lien entre cette pression et la fraction liquide.

2.1 Lois de Plateau

2.1.1 Lois de Plateau dans une mousse 3D

Dans une mousse, les bulles sont pressées les unes contre les autres (fig. 2.1). L'intersection entre deux bulles forme un film. Si l'on ajoute une troisième bulle, les films se rejoignent en une arête appelée bord de Plateau. Lorsque une quatrième s'ajoute, apparaît un sommet appelé vertex à l'intersection de quatre bords de Plateau. La disposition de ces bulles est donnée par les lois de Plateau qui ont été énoncées par Joseph Antoine Ferdinand Plateau en 1873 :

Première loi de Plateau : La courbure moyenne d'un film séparant deux bulles est constante et est donnée par la loi de Laplace (eq. 1.3). Ainsi la convexité du film est donnée par la différence de pression entre les deux bulles.

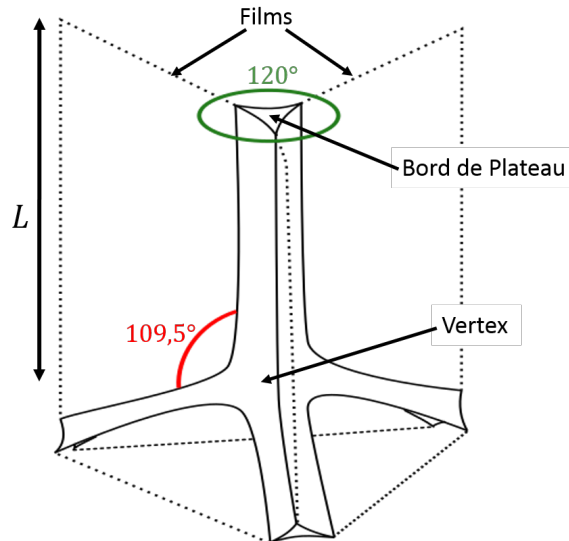


FIGURE 2.1: Représentation schématique de l'intersection de quatre bulles mettant en évidence les lois de Plateau.

Deuxième loi de Plateau : Les films se rejoignent toujours par trois pour former un bord de Plateau avec un angle de 120° entre les films comme indiqué sur la fig. 2.1.

Troisième loi de Plateau : Quatre bords de Plateau se rejoignent en un vertex avec un angle de 109.5° entre les bords.

2.1.2 Lois de Plateau dans une mousse 2D

Les mousses 2D sont constituées d'une seule couche de bulles. Malgré leur nom qui vient du fait qu'il s'agit d'une monocouche de bulles, les mousses 2D réelles ont une structure tridimensionnelle. Si dans une mousse 2D très sèche les bulles sont séparées par une paroi infiniment fine, les mousses humides 2D sont en réalité des mousses quasi-2D à cause de leur structure 3D. Nous nous focaliserons ici sur la mousse 2D confinée entre deux plaques telle que représentée sur la figure 2.2a. Dans ce système, il existe deux types de films : les films de mouillage au niveau des plaques et les films séparant les bulles les unes des autres. Deux films de mouillage et un film entre les bulles se rejoignent en un pseudo-bord de Plateau parallèle aux plaques. L'intersection entre trois films séparant les bulles sont des bords de Plateau et sont toujours verticaux. Il existe donc deux rayons de courbure importants pour la suite : r_{PS} pour les pseudo-bords de Plateau et r_{PB} pour les bords de Plateau. L'intersection entre trois pseudo-bords de Plateau et un bord de Plateau est appelée vertex ou nœud.

La taille des deux types de bords de Plateau et des films varie en fonction de l'humidité de la mousse mais également du rapport e/R_0 comme le montrent Gay et al. [26]. Dans cet article, les auteurs décrivent la géométrie d'une mousse 2D confinée entre deux plaques. Ils donnent ainsi un moyen de remonter à la hauteur des films e_F entre deux bulles mais également au volume de liquide autour d'une bulle et ce pour $e/R_0 \leq 2$ et $e/R_0 \geq 1$.

Les lois de Plateau doivent alors être adaptées à cette géométrie (Figure 2.3). Trois bulles se rejoignent avec un angle de 120° en un bord de Plateau vertical comme dans la loi de Plateau à 3D. Trois pseudo-bords de Plateau se rejoignent aussi à 120°

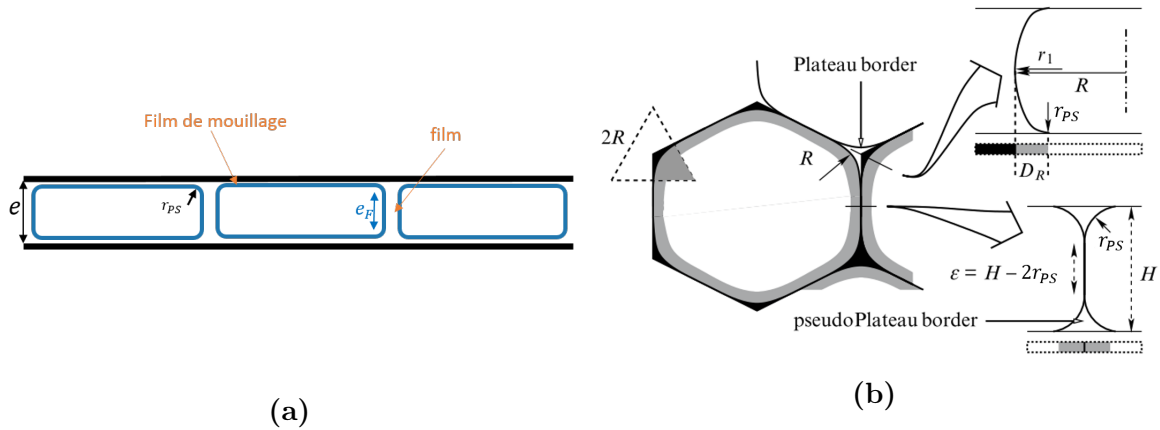


FIGURE 2.2: Schéma d'une mousse 2D confinée entre deux plaques : a) vue de côté et b) vue du dessus, extrait de [26].

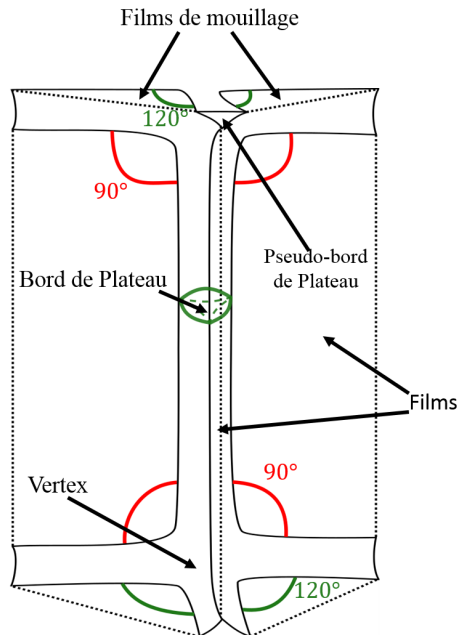


FIGURE 2.3: Représentation de l'intersection de trois bulles dans une mousse 2D formant un bord de Plateau vertical. Deux bulles se rejoignent en un pseudo-bord de Plateau horizontal. L'intersection entre trois pseudo-bords de Plateau et un bord de Plateau se fait à un vertex ou nœud. L'angle d'intersection entre trois bulles ou trois pseudo-bords de Plateau dans la mousse est de 120° . Enfin l'angle d'intersection entre les pseudo-bords de Plateau et un bord de Plateau est de 90° .

Cependant, un bord de Plateau vertical rejoint trois pseudo-bords de Plateau avec un angle de 90° .

2.1.3 Théorème de décoration

Ces lois ont d'abord été énoncées pour une mousse idéale c'est-à-dire une mousse très sèche, à l'équilibre mécanique, dont l'énergie est proportionnelle à l'aire de ses bulles et avec un gaz incompressible. Néanmoins, elles sont toujours valables pour une mousse telle que $l \ll r_{PB} \ll L/2$ où r_{PB} est le rayon de courbure des bords de Plateau et L sa longueur. De façon pratique, cette condition revient à dire que la mousse est

sèche, c'est-à-dire qu'elle a une faible fraction liquide ($\phi < 5\%$).

Lorsque la quantité de liquide augmente, le liquide s'accumule alors dans les bords de Plateau qui sont alors dits décorés. Le prolongement des trois arêtes communes aux bords de Plateau se rejoignent en un point au centre du vertex avec un angle de 120° [78].

2.2 Fractions liquides

2.2.1 Fraction liquide volumique

La fraction liquide d'une mousse est la quantité de liquide contenue dans une mousse. Elle est donnée par :

$$\phi = \frac{V_l}{V_g + V_l} = \frac{V_l}{V_{\text{mousse}}} \quad (2.1)$$

où V_l est le volume de liquide, V_g le volume de gaz et V_{mousse} est le volume de mousse. La structure de la mousse varie en fonction de la fraction liquide :

- Pour $\phi < 5\%$, la mousse est sèche. Les bulles ont une forme polyédrique, les bords de Plateau contiennent la majorité du liquide et les films sont fins.
- Pour $5\% < \phi < \phi_c$, les bords de Plateau s'épaississent. Les bulles deviennent de plus en plus sphériques avec l'augmentation de la fraction liquide.
- Pour $\phi > \phi_c$, les bulles sont sphériques et ne se touchent pas. On utilise alors le terme de "liquide bulleux" plutôt que mousse.

La fraction liquide critique ϕ_c est la valeur de fraction liquide maximale pour laquelle les bulles sont toujours en contact les unes avec les autres. La valeur de ϕ_c dépend de la structure de la mousse. Pour une mousse 3D ordonnée, la fraction liquide critique vaut 0.26 alors que pour une mousse 3D désordonnée $\phi_c = 0.36$. Pour les mousses 2D, $\phi_c = 0.16$ dans le cas de mousses désordonnées et $\phi_c = 0.09$ dans le cas de mousses monodisperse (toutes les bulles sont identiques) ordonnées.

2.2.2 Fraction liquide bidimensionnelle et fraction liquide surfacique

Nous avons vu précédemment que la fraction liquide est donnée par l'équation 2.1. Elle peut encore être évaluée lorsque la monocouche est confinée entre deux plaques, à condition de connaître la quantité initiale de liquide dans la mousse. Par contre, cette valeur n'a plus de sens si la mousse est posée sur un bain de liquide. Par ailleurs, la quantité de liquide est variable sur la hauteur de la monocouche de bulles. Une autre définition est donc proposée à 2D, il s'agit de la fraction liquide bidimensionnelle qui est la section occupée par le liquide dans une coupe horizontale au travers de la mousse. La valeur obtenue est dépendante de la hauteur de coupe. En définissant toujours la même hauteur de coupe, il est possible de comparer les expériences.

En particulier, si l'on choisit le plan juste en-dessous du films de mouillage qui est invisible à l'œil. Par la suite ce plan sera donc considéré comme le plan où la mousse est en contact avec la paroi. La quantité de liquide dans ce plan est appelée la fraction liquide surfacique ϕ_s et peut être définie comme

$$\phi_s = \frac{A_l}{A_l + A_g} = \frac{A_l}{A_{\text{mousse}}} \quad (2.2)$$

où A_l est l'aire de liquide en contact avec la paroi et A_{mousse} est l'aire totale de la mousse à la paroi. Cette valeur est comprise entre 0 et 1. Lorsque la fraction liquide surfacique est proche de 0, la mousse est sèche alors que lorsque la valeur se rapproche de 1, le liquide recouvre toute la surface de la paroi. Pour nos expériences sur les mousses 2D, nous utiliserons cette quantité afin de caractériser la teneur en liquide d'une mousse.

2.3 Pression osmotique

2.3.1 Définition

Classiquement, la pression osmotique correspond à la pression qu'il est nécessaire d'appliquer sur une membrane semi-perméable afin d'empêcher l'écoulement de soluté dû à une différence de concentration de part et d'autre de cette membrane. En 1986, Princen [55] introduit la notion de pression osmotique dans les dispersions (mousses et émulsions) par analogie. Il s'agit de la pression qu'il est nécessaire d'appliquer sur une membrane semi-perméable retenant la mousse pour éviter l'écoulement du liquide. Sur la figure 2.4 est représenté le schéma d'un montage expérimental permettant de mesurer la pression osmotique [7]. La pression osmotique est donc aussi la pression qu'il faut appliquer pour déformer les bulles. De plus, la pression osmotique est aussi la force par unité de surface exercée sur la paroi du récipient par la mousse.

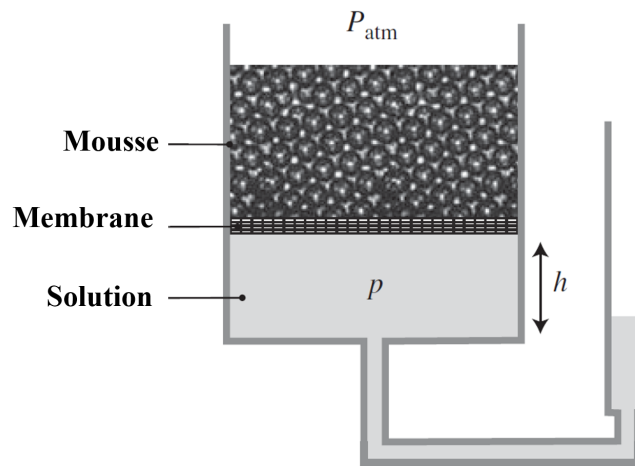


FIGURE 2.4: Montage expérimental permettant de déterminer la pression osmotique grâce à la pression hydrostatique. Un réservoir est partiellement rempli de liquide au-dessus duquel se trouve une mousse. Ce réservoir est relié à une burette graduée permettant de connaître la pression hydrostatique. La différence entre la pression atmosphérique et la pression hydrostatique correspond à la pression osmotique.

Ainsi, lorsque la fraction liquide augmente, la pression osmotique Π diminue.

2.3.2 Lien entre la pression osmotique et la fraction liquide

De nombreuses études ont été réalisées pour déterminer la relation entre ces deux grandeurs. Dans la limite sèche ($\phi \leq 5\%$), un modèle théorique donne $\tilde{\Pi} = \frac{\Pi}{(\gamma/R)} \sim \phi^{-1/2}$ où $\tilde{\Pi}$ est la valeur de la pression osmotique adimensionnée par la pression capillaire [39]. En 2008, Höhler *et al.* [33] ont réalisé une étude expérimentale mettant en

évidence une relation semi-empirique entre la pression osmotique et la fraction liquide :

$$\tilde{\Pi} = k \frac{(\phi_c - \phi)^2}{\sqrt{\phi}} \quad (2.3)$$

avec k une constante qui dépend de la polydispersité et du désordre de la mousse. Ainsi, $k = 3.7$ pour une mousse monodisperse ordonnée [33] et $k = 3.2$ pour une mousse polydispersée désordonnée [44]. Dans la limite humide, des simulations sur Surface Evolver réalisées par Mason et al. [45] ont permis d'établir une relation plus complexe entre la pression osmotique et la fraction liquide :

$$\tilde{\Pi} \approx K \alpha z_c \left[\left(\frac{\phi}{\phi_c} \right) - 1 \right]^{(\alpha-1)} \quad (2.4)$$

où z_c est le nombre de coordination qui dépend de la structure de la mousse et α , K est une constante inhérente à la simulation et dépendent de la structure de la mousse. Les auteurs ont également réalisé une étude expérimentale sur des émulsions et ont montré un bon accord entre les simulations ayant donné l'équation 2.4 et les résultats expérimentaux.

En 2002, Maestro et al. [44] ont réalisé une étude portant sur le profil de la fraction liquide et de la pression osmotique sous l'effet de la gravité. Ils ont ainsi réalisé une expérience en mesurant la fraction liquide pour différentes mousses (poly ou monodisperses) grâce à la conductivité à différentes hauteurs de mousse et en ont déduit la pression osmotique. Ils proposent ainsi une nouvelle équation semi-empirique pour la pression osmotique dans des mousses ordonnées.

2.4 Profil de fraction liquide dans une mousse

Dans une colonne de mousse, le drainage entraîne l'écoulement de liquide entre les bulles. Il y a donc un gradient de fraction liquide avec la hauteur de mousse. Ainsi, la mousse en contact avec le liquide est à la fraction liquide critique. En montant dans la mousse, la fraction liquide diminue progressivement.

La valeur de la fraction liquide dans la mousse en fonction de la hauteur peut être déterminée par l'équation 2.5 de Weaire *et al.* [77]

$$\phi_l(x) = 0.36 \frac{\gamma^2}{R_0^2 (P_g - P_0 - \rho g d)^2} \quad (2.5)$$

où R_0 le rayon des bulles, P_g la pression dans les bulles, P_0 la pression atmosphérique, ρ la masse volumique et $g = 9.81 \text{ m/s}^2$ la constante de la pesanteur. Cette équation permet de connaître la valeur de la fraction liquide, ϕ_l , en fonction de la hauteur de mousse d .

La figure 2.5 montre la fraction liquide en fonction de la hauteur de mousse calculée grâce à l'équation 2.5 avec $\gamma = 35.6 \text{ mN}$, $\rho = 1005 \text{ kg/m}^3$ et $R = 1.1 \text{ mm}$ et $P_g = P_0$ (valeurs typique pour une solution de TTAB). En observant la figure 2.5, la fraction liquide décroît rapidement lorsque la hauteur de mousse augmente. Ainsi, pour passer d'une fraction liquide de 30 % à 10 %, il suffit de se déplacer de 2 mm dans la mousse. Puis la diminution de la fraction liquide est plus lente. Cependant, la formule 2.5 n'est valable que dans le cas des mousses sèches. On peut voir que pour les mousses humides la fraction liquide calculée est fautive puisque la hauteur ne s'annule pas à la fraction liquide critique $\phi_c = 36 \%$.

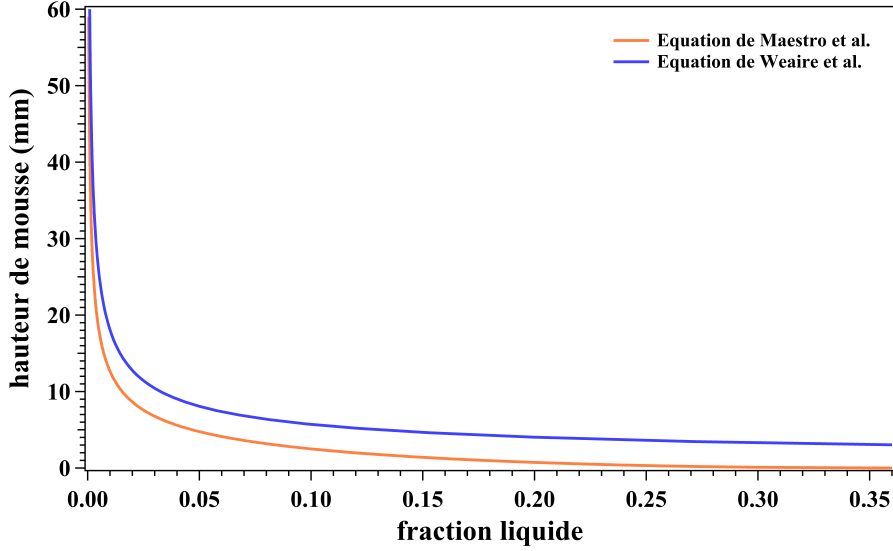


FIGURE 2.5: Profil de fraction liquide en fonction de la hauteur de mousse, calculé à partir des équations 2.5 et 2.6.

Maestro *et al.* ([44]) donnent une nouvelle équation (2.6), à partir de l'expression de la pression osmotique (section 2.3), permettant de décrire l'évolution de la fraction liquide volumique en fonction la hauteur de mousse pour les mousses humides :

$$\tilde{d}(\phi) = \frac{R_{32}}{l_c^2} z = k(\sqrt{\phi_c} - \sqrt{\phi}) \left(3 + \frac{\sqrt{\phi_c^3}}{\sqrt{\phi}} \right) + \frac{k}{2} (3 - 2\phi_c - \phi_c^2) \ln \left[\frac{(\sqrt{\phi} + 1)(\sqrt{\phi_c} - 1)}{(\sqrt{\phi} - 1)(\sqrt{\phi_c} + 1)} \right] \quad (2.6)$$

Cette équation permet de tenir compte de la polydispersité de la mousse. En effet, la constante $k = 7.3$ et $\phi_c = 26$ % pour une mousse monodisperse ordonnée alors que $k = 3.2$ et $\phi_c = 36$ % pour une mousse polydisperse. Cette équation a été résolue numériquement afin de tracer la courbe bleue sur la figure 4.2. On peut ainsi remarquer que la courbe a la même forme que celle donnée par l'équation 2.5 cependant, elle est décalée vers les faibles hauteurs.

2.5 Structure des mousses 2D

2.5.1 Géométrie et topologie

Il existe un lien entre le nombre de voisins d'une bulle et la courbure de celle-ci. Sur la figure 2.6, en suivant le contour d'une bulle i avec n cotés, la rotation effectuée par la tangente à ce contour est donnée par le rapport $\frac{l_i}{R_i}$ où l_i est la longueur du côté considéré et R_i le rayon de courbure de ce côté. De plus, au passage d'un vertex, la tangente tourne de $\frac{\pi}{3}$ à cause des lois de Plateau. Après un tour complet de la bulle, la tangente a tourné de 2π et :

$$\sum_{j=1}^n \frac{l_{ij}}{R_{ij}} + n \frac{\pi}{3} = 2\pi \Leftrightarrow \sum_{j=1}^n \frac{l_{ij}}{R_{ij}} = \frac{\pi}{3} (n - 6). \quad (2.7)$$

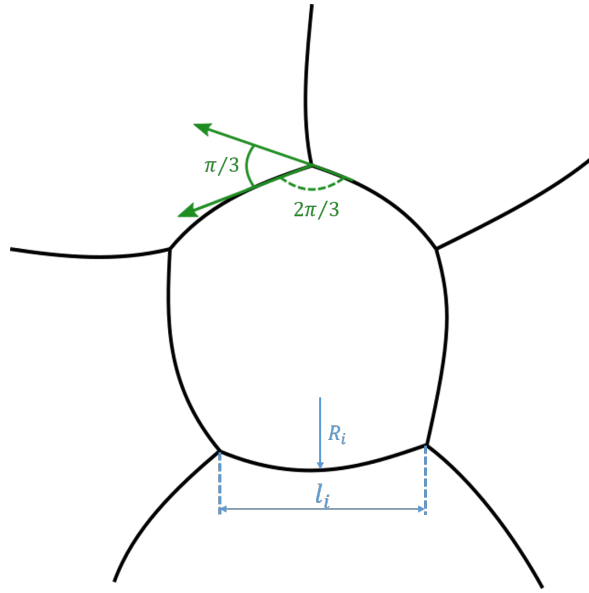


FIGURE 2.6: Représentation d'une bulle à cinq côtés de rayon de courbure R_i constant et de largeur de côté l_i . L'intersection entre deux côtés successifs de la bulle se fait avec un angle de $\frac{\pi}{3}$ afin de respecter les lois de Plateau.

2.5.2 Désordre topologique

Le théorème d'Euler donne un lien entre le nombre N de bulles, le nombre de cotés $N_{\text{côtés}}$ et le nombre de vertex N_{vertex} selon l'équation suivante :

$$N - N_{\text{côtés}} + N_{\text{vertex}} = \chi = \text{constante} \quad (2.8)$$

Dans une mousse de structure infiniment sèche avec un grand nombre de bulles. Alors $\langle n \rangle$ le nombre moyen de côtés d'une bulle est donné par $\langle n \rangle = \frac{2N_{\text{côtés}}}{N}$ et $\langle n \rangle = 3N_{\text{vertex}}$. Ainsi en utilisant le théorème d'Euler on a :

$$N - \frac{N \langle n \rangle}{6} = \chi \quad (2.9)$$

$\frac{\chi}{N}$ tend vers 0 lorsque la mousse est suffisamment grande pour que les bords soient négligeable dans le calcul. On obtient donc $\langle n \rangle = 6$. La structure d'une mousse monodisperse ordonnée est donc un réseau hexagonal. Tout écart à cet ordre se mesure par la charge topologique $q = (n - 6)$. Il est possible de faire une analyse similaire à 3D afin de connaître le désordre d'une structure. Cependant, il faut remplacer le nombre de côtés par le nombre de faces et d'arêtes : $-N + N_{\text{face}} - N_{\text{arête}} + N_{\text{vertex}} = \chi$

Chapitre 3

Stabilité d'une mousse

Sommaire

2.1 Lois de Plateau	11
2.1.1 Lois de Plateau dans une mousse 3D	11
Première loi de Plateau :	11
Deuxième loi de Plateau :	12
Troisième loi de Plateau :	12
2.1.2 Lois de Plateau dans une mousse 2D	12
2.1.3 Théorème de décoration	13
2.2 Fractions liquides	14
2.2.1 Fraction liquide volumique	14
2.2.2 Fraction liquide bidimensionnelle et fraction liquide surfacique	14
2.3 Pression osmotique	15
2.3.1 Définition	15
2.3.2 Lien entre la pression osmotique et la fraction liquide	15
2.4 Profil de fraction liquide dans une mousse	16
2.5 Structure des mousses 2D	17
2.5.1 Géométrie et topologie	17
2.5.2 Désordre topologique	18

Nous avons vu précédemment qu'il existe différentes pressions dans la mousse : la pression osmotique, la pression capillaire et la pression de disjonction. L'équilibre de ces pressions permet l'équilibre mécanique de la mousse. Cependant, trois processus déstabilisent les mousses. Le mûrissement dû à la loi de Laplace, la coalescence causé par la rupture des films entre deux bulles et le drainage provoqué par l'écoulement de liquide par gravité. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à ces trois processus puis discuterons leurs interactions.

3.1 Mûrissement

3.1.1 Définition

Dans le chapitre 1, nous avons vu la loi de Laplace selon laquelle la courbure d'une interface induit une différence de pression de part et d'autre. Les bulles en surpression sont de forme convexe et le gaz qu'elles contiennent se diffuse vers les bulles concaves

en sous-pression. Un certain nombre de bulles vont donc diminuer de taille au profit d'autres. Ce processus va finalement induire une diminution du nombre total de bulles et une augmentation de la taille moyenne des bulles.

3.1.2 Les différents régimes

L'évolution par mûrissement se fait selon deux régimes successifs. Tout d'abord, un régime transitoire se met en place. Pendant ce régime, les distributions de taille des bulles, de leur nombre de côtés et du second moment $\mu_2(n)$, défini comme étant la probabilité pour une bulle d'avoir un voisin avec n côtés, évoluent. Après ce premier régime, un autre régime se met en place. Dans ce régime, appelé régime auto-similaire, les formes des distributions adimensionnées restent constantes [7]. Cependant, la taille des bulles continue à augmenter selon la loi de croissance : $\langle R \rangle \propto t^\beta$. La durée du régime transitoire est très variable puisqu'il faut une polydispersité de 48 % [5] en 3D et 63 % à 2D [67]. Les mousses oublient alors leur état initial et le régime auto-similaire se met en place. Dans le cas des mousses monodisperses, la mise en place de ce régime stationnaire peut être très longue. En effet, l'aire des bulles augmente comme $A \propto t^{3/2}$ avant de tendre vers $A \propto t$ lorsqu'elle atteint le régime auto-similaire [17]. Il est donc possible que le temps nécessaire à la mise en place du régime auto-similaire soit plus long que le temps de l'expérience, notamment pour les mousses monodisperses.

3.1.3 Modèles de mûrissement

3.1.4 Loi de von Neumann : mousses 2D

En 1952, von Neumann propose une loi permettant d'expliquer l'évolution de mousses 2D au cours du temps. Cette loi, qui s'appuie essentiellement sur l'équation 2.7, prédit l'évolution de l'aire A d'une bulle à n cotés au cours du temps avec un coefficient de diffusion effectif D_{eff} et le nombre n de côtes de la bulle :

$$\frac{dA}{dt} = -D_{\text{eff}}(n - 6) \quad (3.1)$$

Ainsi, les bulles avec un nombre de côtés inférieur à six vont perdre leur gaz et diminué de taille jusqu'à disparaître. Au contraire, les bulles avec un nombre de voisines supérieur à six vont récupérer du gaz et donc grossir. Cependant, cette loi n'est valable que pour les mousses sèches. En effet, il est présumé que le gaz diffuse uniquement à travers les films, ce qui devient faux dans les mousses humides.

3.1.5 Modèle de Von Neumann-Mullins : mousses 3D

Une loi dérivée de la loi de von Neumann à 2D a été développée par Mullins [49]. Dans cette loi, valable uniquement dans le cas de mousses sèches, l'évolution de la taille des bulles au cours du temps n'est plus directement reliée à leur nombre de côtés mais à leur nombre de faces. Ainsi, le taux de croissance moyen d'une bulle i de volume V_i est donné par :

$$G = \frac{3}{2} \frac{d(\langle V_i^{2/3} \rangle)}{dt} = -D_{\text{eff}} \sum_{j=1}^n \frac{S_j}{R_{ij} V_i^{1/3}}. \quad (3.2)$$

Il est possible de réécrire cette équation avec les mêmes considérations qu'à 2D et l'expression de G devient :

$$G = D_{\text{eff}}G_1(F)G_2(F) \quad (3.3)$$

avec $G_1 = \frac{\pi}{3} - 2 \arctan[1.86 \frac{(F)^{1/2}}{F-2}]$ et $G_2 = 5.35F^{2/3} \left[\frac{F-2}{2(F-1)^{1/2}} - \frac{3}{8}G_1(F) \right]^{-1/3}$. Avec cette expression, Mullins démontre mathématiquement que les bulles ayant avec un nombre de faces $F < 13.3$ diminuent de taille, alors que celles avec $F > 13.3$ augmentent de taille. Cette prédiction sur la dépendance avec le nombre de faces a été confirmée par Glazier [28] par des simulations avec le modèle de Potts et par Wakai *et al.* avec des simulations Surface Evolver [75]. Une autre différence par rapport aux mousses 2D est que cette loi n'est valable qu'en moyenne et non pour chacune des bulles.

3.1.6 Modèle de Lifshitz-Slyozov-Wagner ou d'Ostwald : mousses humides

Les lois que nous avons vues précédemment sont valables uniquement dans le cas des mousses sèches. À trois dimensions, le mûrissement de liquides bulleux a été décrit par Lifshitz et Slyozov [43] et Wagner dans le cas $\phi \sim 1$. Les auteurs ont montré une différence dans la valeur du coefficient β de la loi de puissance : $\langle R \rangle \propto t^\beta$ avec $\beta = 1/3$ dans le cas des bulles bulleux alors que $\beta = 1/2$ pour les mousses sèches. Pour le cas intermédiaire des mousses humides, le flux de gaz est contrôlé à la fois par les films et par le volume de liquide entre les bulles. Aucune théorie n'existe dans ce cas.

L'étude expérimentale du mûrissement est possible à l'aide de différentes techniques telles que la tomographie [42], l'IRM [68] ou encore la diffusion multiple de lumière [19, 36]. Cependant, il est difficile d'étudier les mousses 3D humides car il faut parvenir à garder la fraction liquide constante tout au long de l'expérience. De plus, comme nous venons de le voir, si les lois de croissance sont bien connues dans la limite sèche et dans la limite très humide, ce n'est pas le cas entre les deux.

3.2 Drainage

Le drainage est l'écoulement de liquide entre les bulles à cause de la gravité. Cet écoulement donne lieu à un changement de fraction liquide dans la mousse comme nous l'avons vu dans le chapitre 2. Si la mousse draine librement, un écoulement irréversible va se mettre en place entraînant un assèchement progressif de la mousse et un changement de la forme des bulles qui deviennent progressivement polyédriques avec un amincissement des bords de Plateau. La mesure de la fraction liquide dans la mousse au cours du temps en fonction de la hauteur, met en évidence la présence de deux régimes [7, 62] dans le drainage. Lorsque $t < t_{\text{drain}}$, temps auquel le front de drainage (limite mousse humide et mousse sèche) atteint le fond du réservoir, la fraction liquide se déplace à vitesse constante. Lorsque $t \geq t_{\text{drain}}$, les films s'assèchent, la pression capillaire augmente et compense progressivement la gravité, ralentissant le drainage.

Le drainage est un processus important dans le vieillissement des mousses. Il est donc indispensable de l'éliminer pour pouvoir étudier la mousse à fraction liquide fixée. Dans la section 3.5, nous allons passer en revue les méthodes expérimentales les plus couramment utilisées permettant de conserver une fraction liquide constante.

3.3 Coalescence

La coalescence est la rupture d'un film entre deux bulles. La raison de cette rupture est mal comprise [59] et a suscité un certain nombre d'études donnant lieu à trois hypothèses majeures : la présence d'une fraction liquide critique [3, 9], d'une pression capillaire critique [40] ou d'une taille de bulles critique [13, 70]. Nous verrons dans le chapitre 7 le détail de ces trois hypothèses.

3.4 Les réarrangements T1 et T2

L'évolution des bulles au cours du temps entraîne la réorganisation des bulles les unes par rapport aux autres. Ces réarrangements sont un ensemble de processus au cours desquels les bulles changent de voisines. Ils peuvent être dus au mûrissement (T1 et T2), à une déformation ou à un déplacement de la mousse (T1).

3.4.1 Réarrangement T1

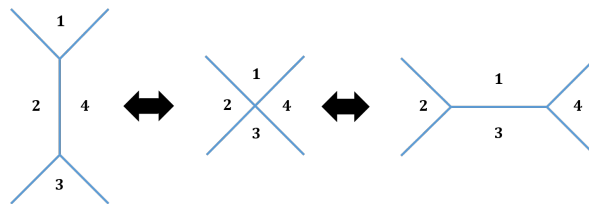


FIGURE 3.1: Représentation schématique d'un réarrangement T1 pour une mousse 2D.

Les réarrangements T1 sont dus à la diminution de la longueur d'un bord de Plateau (à 3D) ou d'un pseudo-bord de Plateau (à 2D) jusqu'à sa totale disparition, ce qui entraîne l'apparition d'un vertex avec quatre bulles à 2D (Figure 3.1) ou d'un vertex à cinq bulles dans une mousse 3D. Cette configuration étant énergétiquement défavorable, les bulles se réarrangent afin de retrouver une position permettant de diminuer l'énergie interne de la mousse. Ce processus entraîne un changement de voisins pour les bulles impliquées. Par exemple, sur la figure 3.1, la bulle 1 initialement voisine des bulles 2 et 4 devient voisine des bulles 3, 2 et 4. Les réarrangements T1 sont possibles dans les différentes directions. Ils n'entraînent pas de changement du nombre de bulles dans la mousse.

3.4.2 Réarrangement T2

Le second réarrangement est dû au mûrissement, au cours duquel les bulles diminuent et finissent par disparaître. Avant de disparaître, ces bulles possèdent quatre voisines à 3D et trois voisines à 2D. Le processus T2 (Figure 3.2) correspond à la disparition d'une bulle et entraîne donc un changement du nombre total de bulles de la mousse.

3.5 Interaction entre les trois processus

Dans une mousse, les trois processus entraînant la destruction de la mousse sont liés les uns aux autres.

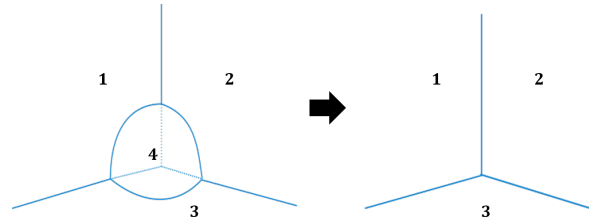


FIGURE 3.2: Représentation schématique d'un réarrangement $T2$ pour une mousse $2D$.

3.5.1 Interaction entre mûrissement, coalescence et drainage

Le mûrissement et la coalescence augmentent la taille des bulles au cours du temps, ce qui augmente la largeur des bords de Plateau permettant au liquide de s'écouler plus facilement entre les bulles. Le drainage est donc accéléré. Il assèche les films entre les bulles facilitant la diffusion de gaz entre les bulles et le mûrissement est accéléré à son tour [30, 72]. Des études [62] ont ainsi montré que dans le cas de mousses qui mûrissent et drainent en même temps, le couplage entre les deux processus est donné par la différence entre le temps de drainage t_d , défini comme le temps nécessaire pour que la moitié du liquide draine, et le temps de mûrissement donné par $t_m = \frac{R_0}{2GF(E)}$. Ainsi, lorsque $t_d \ll t_m$, la mousse draine sans mûrir et si $t_d \gg t_m$ la mousse mûrit sans drainer. Si $t_d \sim t_m$, la mousse mûrit et draine en même temps. En général $t_d \leq t_m$. Pour étudier le mûrissement, il est donc nécessaire d'éliminer le drainage et de travailler à fraction liquide constante.

3.5.2 Interaction entre mûrissement et coalescence

La coalescence et le mûrissement sont difficiles à dé-corréler l'un de l'autre car ils se produisent en même temps dans la mousse et ont le même effet moyen (diminution du nombre de bulles et augmentation de leur taille). De plus, le drainage facilite ces processus. Il est possible de jouer sur la physico-chimie de la solution pour empêcher l'un ou l'autre des processus. Par exemple, l'ajout du dodécanol dans la solution moussante permet de diminuer la coalescence. Il est également possible de stopper le mûrissement en utilisant des nanoparticules [10]. Cependant, il reste difficile de séparer les deux processus sans changement la chimie de la solution. Il est donc utile de pouvoir identifier a posteriori les mousses ayant évolué par mûrissement et celles qui ont évolué par coalescence.

3.6 Éviter le drainage

Comme nous venons de le voir les trois processus de vieillissement sont intrinsèquement liés les uns aux autres. Ainsi pour étudier le mûrissement et la coalescence, il est nécessaire de garder la fraction liquide constante dans l'ensemble de la mousse et au cours du temps. Nous allons donc voir qu'il existe différentes techniques afin d'éviter le drainage.

3.6.1 Injection de liquide : Drainage forcé en régime stationnaire

On injecte un débit constant de liquide identique à celui composant la phase continue de la mousse. Le liquide humidifie progressivement la mousse en s'écoulant entre les bulles puis lorsque le front de liquide atteint le bas de la mousse, la fraction liquide devient constante sur toute la hauteur de la mousse. La fraction liquide est d'autant plus grande que le débit est élevé. Cependant, un débit trop important entraîne le déplacement des bulles à l'intérieur de la mousse et un compris doit être trouvé. Nous utiliserons cette méthode dans le chapitre 8.

3.6.2 Cellule rotative

Dans les expériences de cellule rotative proposées par Saint-Jalmes [63], la mousse est placée dans une cellule dont on peut inverser le haut et le bas. Pendant un temps donné, la cellule est immobile et le drainage commence. Avant que la fraction liquide ne diminue trop, on retourne la cellule. Cette action est répétée régulièrement afin de garder puis la cellule tourne rapidement sur elle-même afin d'inverser la direction du drainage une fraction liquide à peu près constante. Dans cette technique, il faut changer la fréquence de rotation de la cellule si on change la fraction liquide. Il est également nécessaire d'augmenter la fréquence de rotation lorsque les bulles augmentent de taille car le drainage s'accélère.

3.6.3 Lévitation magnétique

Cette technique développée par Isert et al. [36] permet de compenser la gravité en utilisant la force induite par un champ magnétique. La mousse placée dans une cellule est insérée dans champ magnétique de 18 T induit par un aimant supraconducteur. Il est ainsi possible de faire léviter les bulles dans le liquide grâce au moment diamagnétique de l'eau. En effet, il existe une position donnée dans le champ magnétique pour laquelle la gravité est compensée. Dans un volume de 1 cm autour de ce point, une pesanteur inférieure à 0.001 g est obtenue dans toutes les directions. Cette technique permet d'étudier le mûrissement de mousses 3D sèches et humides ainsi que de liquides bulleux sur une très longue période.

3.6.4 Vols paraboliques et ISS

On peut supprimer le drainage en réalisant d'expériences en vol parabolique ou dans la Station Spatial Internationale (ISS).

Au cours d'un vol parabolique, l'apesanteur est obtenue pendant des périodes de chute libre de l'avion. L'avion commence par monter avec une inclinaison de 45° pendant 20 s puis le pilote coupe les gaz et l'avion décrit une parabole avant de relancer le moteur au bout de 20 s. Ce temps étant très court, il n'est pas possible d'étudier le mûrissement mais il est suffisant pour étudier les effets de la gravité sur la génération de la mousse par exemple.

Pour des études plus longues, les expériences doivent être réalisées dans l'ISS. Ainsi, un projet appelé "Soft Matter Dynamics" vise à réaliser une expérience permettant l'étude du mûrissement de mousses humides et du réarrangement des bulles. Nous reviendrons sur ce projet dans la partie III.

Conclusion et problématique

Dans la partie I, nous avons fait un rapide rappel sur la structure des mousses 2D et 3D et nous avons décrit les paramètres importants dans une mousse. Ainsi, trois pressions interviennent pour décrire la stabilité mécanique des mousses : la pression capillaire ou de Laplace responsable de la courbure des bulles, la pression de disjonction qui permet de stabiliser les films et la pression osmotique qui maintient la fraction liquide.

Dans le chapitre 3, nous avons également évoqué les processus de vieillissement des mousses (mûrissement, coalescence et drainage). Le mûrissement dû à la différence de pression entre les bulles et donnant lieu à la diffusion de gaz est un processus bien décrit dans le cas des mousses sèches. Cependant, le rôle de la physicochimie reste à étudier de même que le mûrissement des mousses humides. La coalescence qui est la rupture d'un film entre deux bulles, quant à elle, est très mal comprise.

Dans la suite, nous avons éliminé le drainage grâce à diverses techniques expérimentales afin d'étudier le mûrissement de mousses humides 2D et 3D et la coalescence de mousses 2D. Pour cela nous nous intéresserons d'une part aux mousses 2D et d'autre part aux mousses 3D.

En ce qui concerne, les mousses 2D, étudiées dans la partie II, nous nous intéresserons, tout d'abord, à la compétition entre mûrissement et coalescence. En effet, à l'œil, il est simple de reconnaître une mousse ayant évolué principalement par mûrissement d'une mousse ayant évolué par coalescence. Nous chercherons donc à faire une détection automatique de ces deux types de mousses. Puis, nous utiliserons les expériences des mousses humides qui ont évolué par mûrissement pour mesurer la perméabilité de films de TTAB.

En effet, à 2D, la loi de von Neumann décrit l'évolution d'une bulle au cours du temps dans les mousses sèches et n'est donc plus valable dans les mousses humides. Néanmoins, récemment, Schimming *et al.* ont modifié cette équation pour la rendre applicable aux mousses humides. Nous comparerons donc ces deux équations en calculant la perméabilité des films de mousses de TTAB. Ensuite, nous porterons notre attention sur la coalescence des mousses 2D. Ce processus très mal connu peut-être expliqué par trois hypothèses : une fraction liquide critique, une pression capillaire critique ou une taille de bulles critique. Ces trois hypothèses mettent en jeu trois paramètres de la mousse, la taille des bords de Plateaux, la taille des bulles et la fraction liquide qui sont liées les uns aux autres. Nous utiliserons le montage expérimental de mousses 2D afin d'étudier séparément l'effet de ces paramètres, d'une part, à l'échelle de la mousse et, d'autre part, à l'échelle d'une bulle de la mousse dans le but d'apporter une nouvelle analyse sur la coalescence.

Dans la partie III, nous étudierons les mousses 3D. Dans ces mousses, les lois de croissance des bulles au cours du temps sont bien connues que ce soit dans la limite sèche ou dans la limite $\phi > \phi_c$. Cependant, entre ces limites la loi de croissance est mal définie et est difficile à étudier en raison du drainage. Nous chercherons donc à

apporter de nouvelles données expérimentales pour explorer cette gamme de fraction liquide. Nous finirons présenter le projet "Soft Matter Dynamics" visant entre autre à étudier le mûrissement et le réarrangement des bulles dans des mousses humides.

Deuxième partie

Mousse 2D

Introduction

Dans la partie précédente, nous avons énoncé quelques généralités sur les mousses, leur structure et leurs processus de déstabilisation.

Nous allons maintenant nous focaliser sur l'étude de mousses 2D réalisées avec une solution de TTAB de concentration 5 g/L dans laquelle l'air est dispersé. Dans un premier chapitre, nous verrons le montage expérimental que nous caractériserons afin de montrer que le paramètre qui est contrôlé dans cette expérience est la pression capillaire. Dans un second chapitre, nous expliquerons comment nous avons pu identifier un paramètre, le paramètre de convexité, qui permet de déterminer quelles mousses évoluent principalement par mûrissement et lesquelles ont une évolution due à la coalescence. Nous étudierons ensuite l'influence de la taille initiale des bulles et de la polydispersité sur ce paramètre et donc sur la coalescence. Dans le troisième chapitre, nous nous intéresserons au mûrissement des mousses 2D et comparerons deux méthodes de calcul de la perméabilité des films dans le cas des mousses humides. Enfin, dans le quatrième chapitre, nous examinerons la coalescence. Après avoir rappelé trois hypothèses proposées pour le mécanisme principal en jeu lors de ce processus, nous montrerons qu'une analyse locale, à l'échelle d'une bulle, permet de déterminer leur influence sur la coalescence.

Chapitre 4

Dispositif expérimental

Sommaire

3.1 Mûrissement	19
3.1.1 Définition	19
3.1.2 Les différents régimes	20
3.1.3 Modèles de mûrissement	20
3.1.4 Loi de von Neumann : mousses 2D	20
3.1.5 Modèle de Von Neumann-Mullins : mousses 3D	20
3.1.6 Modèle de Lifshitz-Slyozov-Wagner ou d'Ostwald : mousses humides	21
3.2 Drainage	21
3.3 Coalescence	22
3.4 Les réarrangements T1 et T2	22
3.4.1 Réarrangement T1	22
3.4.2 Réarrangement T2	22
3.5 Interaction entre les trois processus	22
3.5.1 Interaction entre mûrissement, coalescence et drainage	23
3.5.2 Interaction entre mûrissement et coalescence	23
3.6 Éviter le drainage	23
3.6.1 Injection de liquide : Drainage forcé en régime stationnaire	24
3.6.2 Cellule rotative	24
3.6.3 Lévitiation magnétique	24
3.6.4 Vols paraboliques et ISS	24

Une manière simple d'éviter le drainage est de confiner la mousse entre deux plaques horizontales. En contrôlant, l'épaisseur e , entre les plaques et la taille initiale des bulles, R_0 , il est possible d'obtenir une monocouche de bulles si $R_0 \geq e$. On parle alors de mousse 2D. Le drainage est négligeable si $e < l_c$ où $l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}}$ est la longueur capillaire.

Le type de cellule, développée par Roth et al [60], a la particularité d'avoir un réservoir de liquide sur l'un de ses côtés (figure 4.1a). Roth et al [60] ont réalisé deux plaques circulaires connectée à un réservoir d'une hauteur de 1.27 cm, tout autour de la partie confinée. Une quantité prédéfinie de liquide est injectée dans la cellule. La mousse est alors formée en agitant la cellule puis est posée horizontalement pour que la mousse initialement 3D draine. L'accumulation du liquide dans le réservoir permet de contrôler

la taille des bords de Plateau, r_{PB} . En effet, plus la mousse est sèche, plus le rayon de courbure des bords de Plateau décroît et plus la pression capillaire $\frac{\gamma}{r_{PB}}$ augmente. À l'équilibre, la pression capillaire compense les forces de gravité, ce qui permet de fixer le rayon des bords de Plateau dans la partie confinée en contrôlant la distance d entre le liquide dans le réservoir et la mousse dans la partie confinée. Ainsi, grâce à ce montage expérimental et à la présence de ce réservoir, les auteurs montrent qu'il est possible de contrôler la taille des bords de Plateau et donc la pression capillaire en fixant la distance entre la surface du liquide et la mousse 2D. Dans ce chapitre, après un rapide rappel sur la structure d'une mousse 2D, nous verrons le montage expérimental, similaire à celui de Roth *et al.*, que nous utilisons dans cette partie. Puis nous caractériserons cette cellule en présentant les paramètres pertinents dans cette expérience.

4.1 Montage expérimental

4.1.1 Description de la cellule 2D

Afin de nous affranchir du drainage, nous réalisons une mousse 2D à l'aide d'un montage expérimental décrit sur la figure 4.1. En nous basant sur l'expérience réalisée par Roth *et al.* [60], nous avons mis au point un montage permettant d'étudier l'évolution d'une mousse 2D à humidité contrôlée et fixée.

La cellule se compose de deux plaques de plexiglas séparées par un joint de hauteur contrôlée (Figure 4.1a). La cellule obtenue est connectée à un réservoir d'une hauteur de 11.7 cm, d'une largeur de 20 cm et d'une longueur de 15 cm. La surface visible au niveau de la partie confinée est de 10×14 cm. En bas du réservoir, les deux orifices d'entrée pour injecter le liquide et le gaz sont visibles sur les figures 4.1b et 4.1d :

- le premier orifice, (3), permet de remplir le réservoir de liquide jusqu'à une hauteur, h , donnée. Cette hauteur contrôle la hauteur de mousse d et donc sa fraction liquide au contact de la mousse 2D (eq. 2.6).
- le deuxième orifice, (4), permet d'injecter du gaz grâce à une aiguille dont le diamètre est choisi en fonction de la taille des bulles désirée. Afin d'assurer au mieux la monodispersité de la mousse, le débit de gaz est contrôlé par un poussoir ou un contrôleur de pression.
- Sur un troisième orifice (5), il est possible de placer une burette graduée (non visible sur cette image) permettant de mesurer la hauteur de liquide dans la cuve.

Sur la face avant du réservoir (Figure 4.1d), il y a une vitre à travers laquelle deux parties du réservoir sont visibles. L'une (1) permet la visualisation directe de l'interface entre le liquide et la mousse. La seconde (2), en contact direct avec l'extérieur, permet d'assurer un équilibre de la pression via une burette graduée placée au niveau de l'ouverture (5) qui permet de mesurer la pression hydrostatique et de vérifier que la pression est à l'équilibre dans la cellule.

Enfin, deux sorties ont été percées dans la plaque supérieure de plexiglas (Figure 4.1c) afin d'évacuer la mousse facilement mais également de permettre la connexion à une réserve de gaz pour assurer le contrôle de la pression dans la cellule. Dans cette expérience, nous utiliserons uniquement de l'air à pression atmosphérique. Un "spacer" assure le contrôle de l'espacement entre les deux plaques et un joint torique assure l'étanchéité. Le tout est maintenu en place par huit vis. L'une des principales difficultés de cette expérience étant l'étanchéité, de nombreux systèmes de fermeture

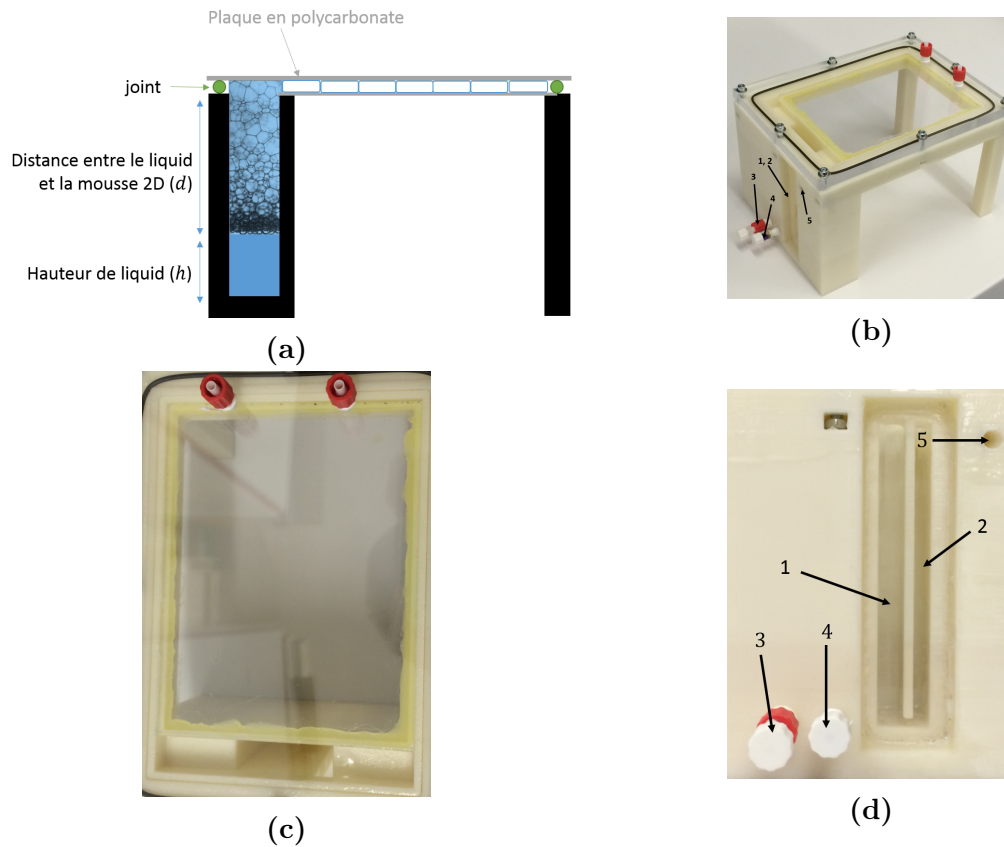


FIGURE 4.1: Schéma du montage expérimental. a) Schéma de la cellule 2D composée d'un réservoir contenant le liquide et la mousse 3D, connectée à deux plaques de plexiglas (à droite) séparées d'un écartement constant, permettant d'obtenir une monocouche de bulles. b) Photo de l'une des cellules 2D. Cette cellule a été fabriquée avec l'imprimante 3D. Une autre version en aluminium existe également. c) Photo en vue de dessus de la cellule. d) Photo de la face avant du réservoir où se trouvent les deux entrées (gaz et liquide) et une vitre permettant de visualiser la hauteur de liquide.

ont été testés. Les expériences exposées par la suite ont été réalisées avec le système présenté ci-dessus ou en remplaçant la combinaison joint torique et "spacer" par un joint plat d'épaisseur désirée et de largeur d'environ 1 cm.

Sur la figure 4.1c, on peut voir que la taille du réservoir est beaucoup plus petite ($10.4 \times 1.7 \times 4.5$ cm) que la largeur de la cellule. Cette configuration permet de diminuer le volume nécessaire au remplissage. Le dernier centimètre du réservoir est de la même largeur que la cellule afin de faciliter la propagation de la mousse dans la partie 2D.

Finalement, le trajet de la mousse est le suivant : le liquide est injecté à l'aide d'une seringue dans la cellule puis le gaz est injecté grâce à une aiguille. Ceci permet d'obtenir une mousse 3D jusqu'en haut de la cuve. Celle-ci se propage ensuite dans la partie confinée de la cellule.

La première cellule a été fabriquée à l'aide d'une imprimante 3D puis recouverte d'une couche d'époxy pour assurer l'étanchéité du réservoir. L'utilisation de l'imprimante 3D a pour avantage de limiter le temps de construction et permet donc de tester rapidement les expériences. Cependant, les fortes concentrations de tensioactifs détruisent le revêtement époxy. Il est donc nécessaire de le refaire régulièrement (environ une fois par mois). Pour parer à cela, une seconde cellule en aluminium a été construite. Nous utilisons cette dernière cellule pour les expériences présentées par la

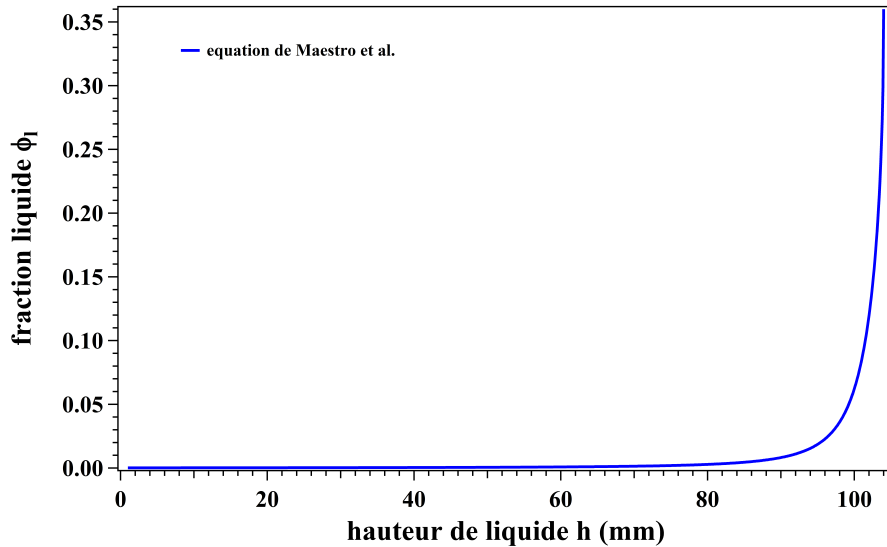


FIGURE 4.2: Profil de fraction liquide en fonction de la hauteur de liquide dans le réservoir, calculé à partir des équations 2.5 et 2.6.

suite.

L'intérêt de cette cellule vient de la présence du réservoir connecté à la partie confinée. En effet, en contrôlant la hauteur de liquide (h) dans la cuve, on contrôle la hauteur de mousse 3D (d) et donc l'humidité de la mousse 2D dans la partie confinée. Ainsi, si la hauteur de la liquide est quasi-maximale, la hauteur de mousse 3D sera faible voire nulle et la mousse qui atteint la partie confinée sera humide. La mousse 2D sera alors humide. À l'inverse, si la hauteur de liquide est faible, il y aura une hauteur importante de mousse 3D dans le réservoir. La mousse en haut de la partie 3D de la cellule sera plus sèche. La mousse 2D sera alors sèche.

La valeur de la fraction liquide dans la mousse en haut du réservoir en fonction de la hauteur de liquide peut être déterminée en utilisant l'équation 2.6 de Maestro *et al.* (Figure 4.2). On peut ainsi constater que la fraction liquide diminue rapidement dans les premiers millimètres. Ainsi, pour une hauteur comprise entre 100 mm et 104 mm, la fraction liquide diminue de 12 % dans le premier millimètre perdu. Il est ainsi possible d'étudier une très large gamme de fraction liquide.

4.1.2 Acquisition d'image

Afin d'observer l'évolution de la mousse 2D, la cellule est placée sur le support du montage de la figure 4.3a : dans l'objectif d'avoir une lumière homogène éclairant la cellule, nous utilisons une couronne de lumière rasante et nous plongeons le montage dans le noir en le recouvrant d'un drap opaque. Une caméra haute résolution (3840×2748) U-eye 1490 avec un objectif Fujinon HF3557-1/1,4 est placée au-dessus de la cellule afin de prendre des images à intervalle régulier. Une seconde caméra, U-eye 1490 (3840×2748) avec un objectif Pentax C2514-5M, pointée sur le côté du réservoir, prend des images afin de mesurer le niveau de liquide dans la cellule et de vérifier que celui-ci reste constant au cours de l'expérience.

Un réglage fin de la position de l'éclairage est indispensable pour obtenir une image nette sans l'ombre des bulles. Il est possible d'améliorer le contraste en contrôlant les paramètres de la caméra grâce au logiciel "U-eye Cockpit". Ici, nous fixons le gain à 0 et nous changeons le temps d'exposition en prenant garde à ce que celui-ci reste inférieur

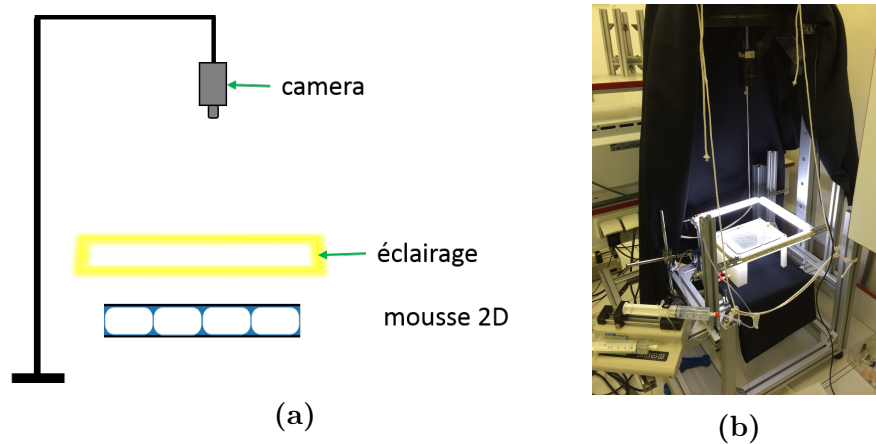


FIGURE 4.3: Montage expérimental comprenant une caméra haute résolution (3840×2748), une source lumineuse homogène et la cellule 2D, a) en schéma et b) en photo

au temps de transfert de la caméra vers l'ordinateur. Afin de prendre automatiquement les images à intervalle régulier, le logiciel "U-eye trigger" est utilisé. Il permet de fixer le temps de pause entre deux images mais également de garder les paramètres caméra fixés avec "U-eye Cockpit". La qualité des images et le bon contraste permettent de faciliter les traitements d'image qui seront effectués par la suite. Il est donc important de ne pas négliger cette étape.

4.2 Caractérisation de la mousse 2D

4.2.1 Montage expérimental de caractérisation

Dans la suite, nous allons caractériser la mousse 2D et vérifier que le paramètre permettant de quantifier au mieux l'humidité de la mousse 2D est la taille des pseudo-bords de Plateau. Nous modifions donc légèrement le montage expérimental présenté précédemment pour poser un prisme à angle droit sur la plaque supérieure de la cellule 2D (Figure 4.4a). Le prisme est placé au centre de la plaque afin d'éviter l'influence éventuelle des bords de la cellule 2D.

L'utilisation de ce montage expérimental permet de visualiser uniquement la surface supérieure de la mousse 2D. La technique expérimentale décrite par la suite a été tout d'abord développée dans les années 1990 pour déterminer la distribution de taille des bulles ([25, 47]). Nous étendons son application à la mesure de la fraction liquide surfacique (Eq. 2.2). Cette technique consiste à prendre des photographies des bulles à la surface au travers d'un prisme en utilisant une caméra avec un objectif télécentrique. La caméra et une source de lumière sont respectivement placées de part et autre du prisme à angle droit avec un angle de 45° par rapport à la paroi (Figure 4.4b). L'utilisation d'un objectif télécentrique sur la caméra permet de ne sélectionner que les rayons lumineux parallèles à l'axe optique. Ainsi, la lumière arrivant sur le prisme avec un angle de 45° est réfléchiée par les films liquides (parallèles) séparant les bulles de la surface et est reçue par la caméra. Au contraire, la lumière réfléchiée par une interface incurvée (pseudo-bord de plateau) n'est pas détectée par la caméra. Les bulles apparaissent ainsi en blanc sur l'image et les bords de Plateau en noir (figure 4.6a).

Le parfait respect de l'angle de 45° , notamment au niveau de la caméra, est indispensable afin d'obtenir des images de qualité suffisante pour avoir une valeur de

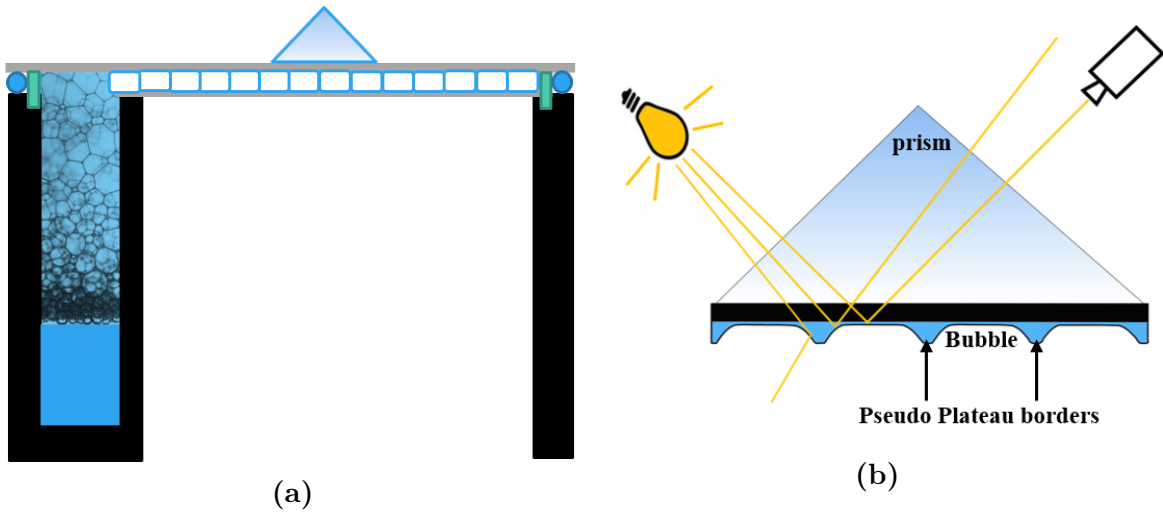


FIGURE 4.4: Schéma du montage permettant de caractériser la cellule 2D. a) Pour caractériser l'expérience il faut ajouter un prisme au milieu de la plaque supérieure de la cellule 2D. b) Chemin des rayons lumineux à travers le prisme. L'utilisation d'un prisme posé sur la plaque supérieure permet de visualiser uniquement les bulles à la paroi grâce à l'utilisation d'une source lumineuse uniforme et d'une caméra avec un objectif télécentrique, placées de part et d'autre du prisme et à 45° par rapport à la surface.

fraction liquide surfacique correcte. En effet, si l'angle n'est pas de 45° entre la caméra et la surface de la colonne, la fraction liquide sera surestimée à cause de la déformation des pseudo-bords de Plateau. L'angle de 45° entre la source lumineuse et la paroi est moins critique car il y a toujours des rayons lumineux arrivant dans le prisme avec cet angle. Se rapprocher de 45° permettra néanmoins d'améliorer le contraste.

A partir des images obtenues avec cette technique expérimentale, il est possible de calculer la fraction liquide surfacique et la taille des pseudo-bords de Plateau de la mousse 2D.

4.2.2 Protocole expérimental

Pour chaque hauteur de liquide comprise entre 25 mm et 104 mm, une mousse 2D est créée. Après avoir laissé le système se remettre à l'équilibre, on prend 10 images de la surface des bulles sous le prisme. Ce protocole est réalisé pour différentes valeurs d'espacement entre les deux plaques : 1 mm, 1.5 mm et 2 mm, et pour différents rayons de bulles : 1.1 mm, 1.2 mm et 1.35 mm.

Calcul de la taille des bulles initiales

La taille de bulles correspond à la taille en sortie de l'aiguille. Elle est déterminées en utilisant l'équation [16]

$$R_0 = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho g}} R_a^{1/3} \quad (4.1)$$

avec ρ la masse volumique entre le gaz et le liquide et R_a le rayon de l'aiguille et R_0 le rayon de la bulle non confinée. Cette équation est valable lorsque $R_0 \leq l_c$, ce qui est toujours le cas ici.

Mesure de la hauteur de liquide dans le réservoir

Un autre paramètre important à déterminer est la hauteur de liquide dans le réservoir. Pour cela, nous utilisons deux méthodes. La première est basée sur la visualisation directe. Il s'agit, dans ce cas, de mesurer la hauteur de mousse d pour en déduire ensuite la hauteur de liquide h en connaissant la hauteur totale de le réservoir. Cette technique fonctionne très bien pour des hauteurs comprises entre 4 mm et 94 mm comme le montre la figure 4.5a. Cette méthode est néanmoins sujette à deux incertitudes majeures. La première est la détermination de la limite mousse/liquide qui peut être difficile à cause d'un manque de contraste. La seconde incertitude vient de l'utilisation de la burette

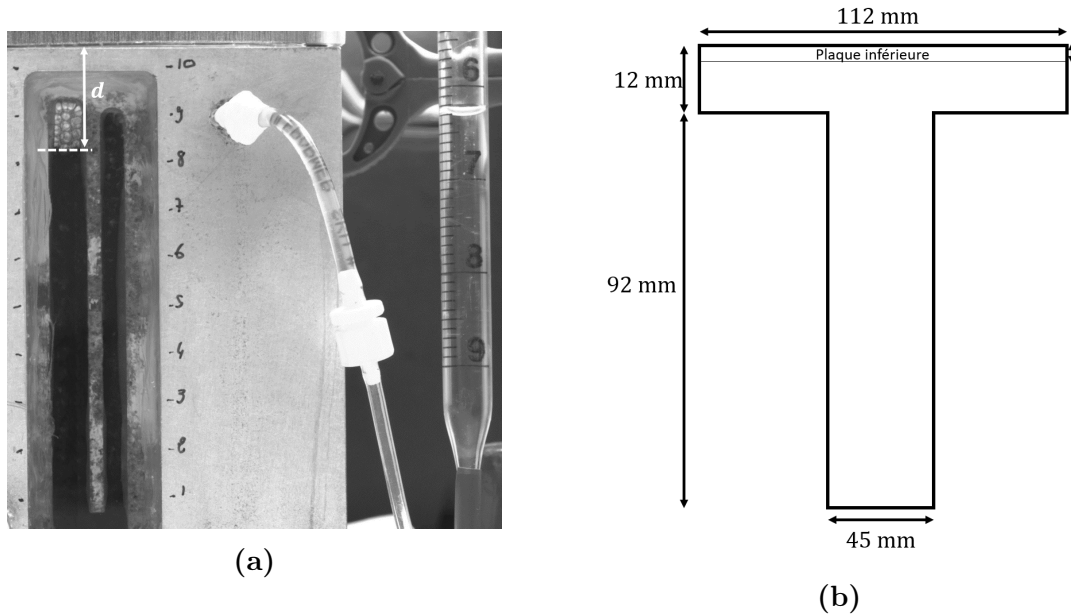


FIGURE 4.5: Les deux méthodes pour déterminer la hauteur de liquide : a) Mesure directe de la hauteur à partir d'une photographie prise sur le côté du réservoir. b) Mesure indirecte par différence de volume injecté et en utilisant le schéma du réservoir. La profondeur du réservoir est de 15 mm

graduée pour contrôler la pression hydrostatique, qui crée un volume mort de liquide. En théorie il faudrait attendre l'équilibre entre la limite mousse/liquide et la limite air/liquide. Cependant, il est souvent difficile d'atteindre cet équilibre car sa mise en place est lente, ce qui laisse le temps à la mousse de coalescer lorsque celle-ci est sèche.

Pour les hauteurs comprises entre 92 mm et 104 mm, il n'est pas possible d'utiliser cette méthode car il n'y pas de vitre à ce niveau. La hauteur est estimée uniquement grâce à la burette graduée (il est possible d'attendre l'équilibre car la mousse est suffisamment humide). Pour améliorer la précision, nous réalisons la mesure avant et après l'expérience du prisme. Néanmoins, comme il peut être difficile d'évaluer si l'on est bien à l'équilibre, nous utilisons aussi une méthode indirecte consistant à calculer la hauteur grâce au volume de liquide injecté. En effet, connaissant la géométrie de la cuve, donnée sur la figure 4.5b, il est possible de retrouver la hauteur de liquide. Cette méthode indirecte est également source d'incertitude car une partie du liquide injecté est emportée par la mousse lors de sa création. De plus, la méthode du volume favorise la propagation des erreurs car le liquide est progressivement rajouté ou retiré. On a donc une surestimation ou une sous-estimation du volume par rapport au volume réel en fonction que le liquide soit ajouté ou enlevé. On peut noter une différence de 1 – 2 mm entre les deux méthodes. Nous utilisons les deux méthodes pour mesurer la

hauteur dans la zone supérieure de la cuve. La moyenne des différentes mesures réalisées donne la valeur de la hauteur. Pour l'ensemble des mesures de hauteur de liquide nous estimons finalement l'incertitude de mesure à ± 1 mm.

Une fois la taille initiale des bulles calculée et la hauteur de liquide évaluée, il reste à déterminer la fraction liquide surfacique et la taille des pseudo-bords de Plateau.

4.2.3 La fraction liquide surfacique

Détermination de la fraction liquide surfacique

La fraction liquide surfacique, ϕ_s , est la proportion d'aire couverte par la phase liquide juste au dessous du film de mouillage. Il s'agit donc du rapport entre l'aire de liquide et l'aire totale de la mousse (Eq. 2.2). Pour la calculer, il n'est pas possible d'utiliser les images brutes (Figure 4.6a), il faut d'abord faire un traitement d'image. Pour cela, nous utilisons le logiciel ImageJ pour binariser et inverser les photographies (figure 4.6b).

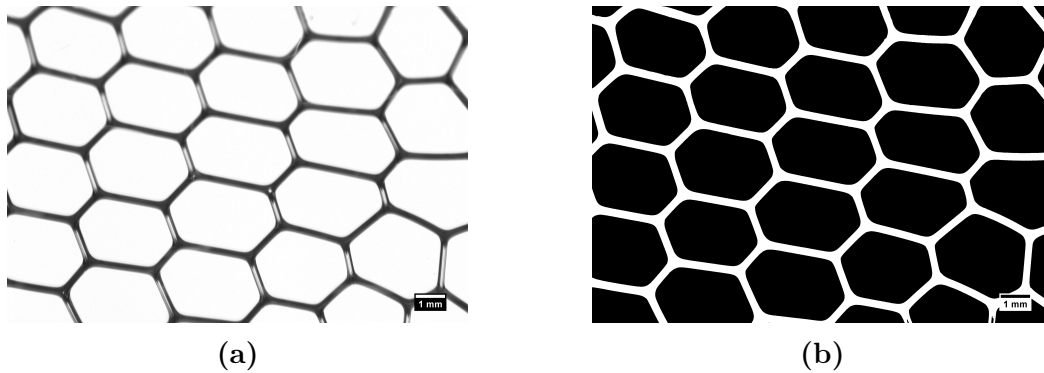


FIGURE 4.6: Photographies de bulles à la surface de la plaque de plexiglas. (a) Photographie originale prise avec une caméra et un objectif télécentrique comme représenté sur la figure 4.4a (b) Même image après binarisation et inversion des couleurs. La phase liquide est en blanc et la phase gazeuse en noir. Sur ces images, l'échelle est de 1 mm.

La binarisation est une étape délicate du traitement d'image. En effet, il est important de choisir un seuil permettant de respecter le plus fidèlement possible l'image originale. Le choix du seuil est facilité dans le cas des mousses 2D par rapport aux mousses 3D (que nous verrons dans la partie III) car les bulles sont plus grosses et la mousse plus monodisperse. Néanmoins, ce choix ne peut être automatisé et se fait donc à la main. En effet, un mauvais choix de seuil peut engendrer une surestimation ou une sous-estimation de la fraction liquide surfacique.

Une fois cette étape réalisée, la fraction liquide surfacique est alors déterminée grâce au rapport du nombre de pixels noirs sur le nombre total de pixels de l'image. Ainsi, par exemple, la figure 4.6a montre une mousse 2D où $R_0 = 1.35$ mm faite dans la cellule 2D avec un spacer de taille 1.5 mm et une hauteur de liquide $h = 83$ mm. On mesure une fraction liquide surfacique $\phi_s = 0.18$.

Cette technique de mesure a une tendance systématique à sous-estimer légèrement la fraction liquide surfacique. En effet, d'une part, l'objectif télécentrique permet une petite variation de l'angle des rayons lumineux détectés et, d'autre part, le seuil, qui sert à transformer la photographie en une image en noir et blanc, a tendance à réduire légèrement la limite des zones noires. Nous estimons que la combinaison des deux erreurs entraîne une sous-estimation allant jusqu'à 5 % de la fraction liquide surfacique.

Résultats pour la fraction liquide surfacique

L'influence de la hauteur de liquide dans le réservoir sur la fraction liquide surfacique pour différentes valeurs de la taille de bulles et de l'écartement des plaques est donnée sur la figure 4.7.

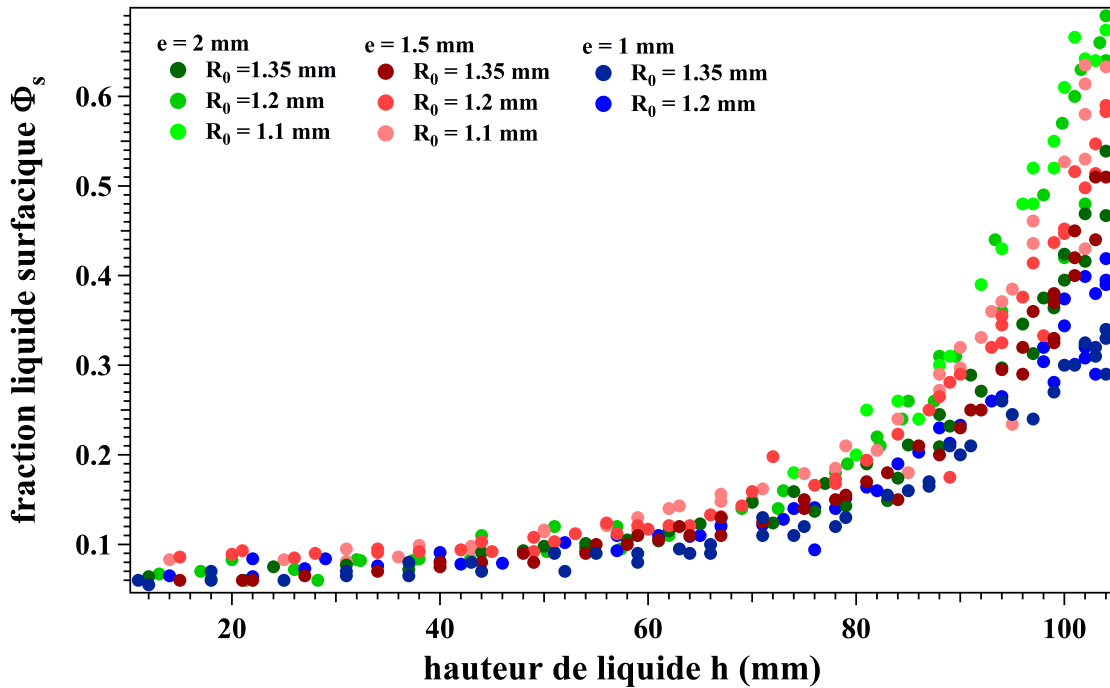


FIGURE 4.7: Fraction liquide surfacique en fonction de la hauteur de liquide dans le réservoir de la cellule 2D. Les points en dégradé de verts, rouges et bleus correspondent respectivement à un écartement entre les deux plaques de plexiglas de 2 mm, 1.5 mm et 1 mm. Les dégradés des différentes couleurs représentent les rayons initiaux des bulles lors de leur création à l'aide de l'aiguille. Ainsi, de la plus foncée à la plus claire, $R_0 = 1.35$ mm, 1.2 mm et 1.1 mm.

On peut ainsi remarquer que lorsque la hauteur de liquide augmente, la fraction liquide surfacique croît également. Nous allons maintenant nous attarder sur l'influence de l'écartement entre les deux plaques et de la taille initiale des bulles.

Influence de l'écartement entre les deux plaques Sur la figure 4.7, les différentes couleurs représentent les trois écartements que nous allons utiliser pour notre expérience. Respectivement les points en dégradés de vert, rouge et bleu représentent un espace entre les deux plaques de 2 mm, 1.5 mm et 1 mm. Pour une taille de bulles fixée, on peut voir que pour des hauteurs $h < 60$ mm, les points sont tous sur la même courbe. Pour de plus grandes hauteurs, pour une taille de bulles donnée et une hauteur donnée, plus l'écartement entre les deux plaques diminue plus ϕ_s augmente. Par exemple, pour une taille de bulles $R_0 = 1.2$ mm et une hauteur $h = 100$ mm, pour $e = 2$ mm, $\phi_s = 60$ % alors que pour $e = 1.5$ mm, $\phi_s = 45$ % et pour $e = 1$ mm, $\phi_s = 34$ %. Ce décalage est attendu car en augmentant l'épaisseur entre les deux plaques et en gardant le même volume de bulles, leur aire en vue du dessous est plus petite, elles sont donc plus rondes et la fraction liquide surfacique augmente.

Influence de la taille des bulles Dans notre expérience, comme nous l'avons vu dans la section 4.1, les bulles sont créées à l'aide d'une aiguille permettant d'injecter le

gaz en bas du réservoir. Il est donc possible de modifier un peu la taille des bulles en changeant l'aiguille utilisée. Les trois aiguilles utilisées ont respectivement un diamètre externe de 0.65 mm, 0.82 mm et 1.27 mm. Grâce à l'équation 4.1, on détermine le rayon initial des bulles qui est respectivement $R_0 = 1.1$ mm, $R_0 = 1.2$ mm et $R_0 = 1.35$ mm. Ces trois tailles de bulles sont proches mais il est possible d'étudier leur influence sur la fraction liquide surfacique.

Pour une épaisseur donnée et une hauteur fixée, plus la taille des bulles augmente plus ϕ_s diminue. En effet, en fixant l'épaisseur mais en changeant le volume, l'aire des bulles est plus ou moins grande ce qui fait varier la fraction liquide surfacique.

4.2.4 Rayon de courbure des pseudo-bords de Plateau

Nous allons maintenant voir l'influence des différents paramètres, hauteur de liquide, taille des bulles et écartement entre les plaques, sur la taille des pseudo-bords de Plateau.

Détermination de la largeur des Pseudo-bords de Plateau

Afin de mesurer la taille des pseudo-bords de Plateau, nous utilisons le logiciel ImageJ. Il faut tout d'abord binariser les images (Figure 4.6b). À partir de l'image obtenue, il est nécessaire de mesurer la taille de chaque pseudo-bord de Plateau se trouvant sur l'image. Pour chaque bulle de l'image, un trait entre son centre et les centres de ses premières voisines, puis de ses secondes voisines et ainsi de suite, est tracé. Suivant chacun de ces traits, un histogramme de niveau de gris est réalisé. Comme l'image est uniquement en noir et blanc, cet histogramme passe de 255 dans les bulles à 0 dans la phase liquide et les pseudo-bords de Plateau de façon franche. Ainsi, dans les cas des premiers voisins, mesurer la longueur de pixel de valeur 0 sur le chemin permet d'obtenir la largeur des pseudo-bords de Plateau soit $2r_{PS}$ (Figure 4.8a). Pour chaque hauteur, h , dix images consécutives sont prises et traitées. On peut alors tracer un histogramme des largeurs de pseudo-bords de Plateau de l'ensemble de ces images.

Sur la figure 4.8b est représenté cet histogramme pour une expérience réalisée avec $h = 83$ mm, $e = 1.5$ mm et $R_0 = 1.35$ mm. On peut voir la présence de plusieurs pics, un premier pour 0.25 mm puis un second pour 0.51 mm et un autre pour 1.75 mm. D'autres pics sont présents mais trop bruités pour être clairement identifiés. La présence de ces différents pics correspond aux nombres de $2r_{PS}$ cumulés mesurés sur le trajet entre deux centres de bulles. Ainsi entre deux bulles voisines, on mesure $2r_{PS}$, puis entre une bulle et ses secondes voisines on a $4r_{PS}$ et ainsi de suite. Dans l'exemple de la figure 4.8b, on retrouve bien les deux premiers pics correspondant à $2r_{PS}$ et $4r_{PS}$. Les suivants sont bruités à cause de la prise en compte de mauvaises distances comme par exemple la présence éventuelle d'un ou plusieurs nœuds. Afin de déterminer la taille des pseudo-bords de Plateau, nous utilisons uniquement le premier pic sur lequel est ajustée une courbe gaussienne. Les pics suivants permettent de confirmer que la valeur trouvée correspond bien à $2r_{PS}$.

Résultats

Comme dans la sous-section 4.2.3, il est maintenant possible d'étudier l'influence de l'épaisseur e entre les plaques et de la taille initiale des bulles sur la taille des pseudo-bords de Plateau.

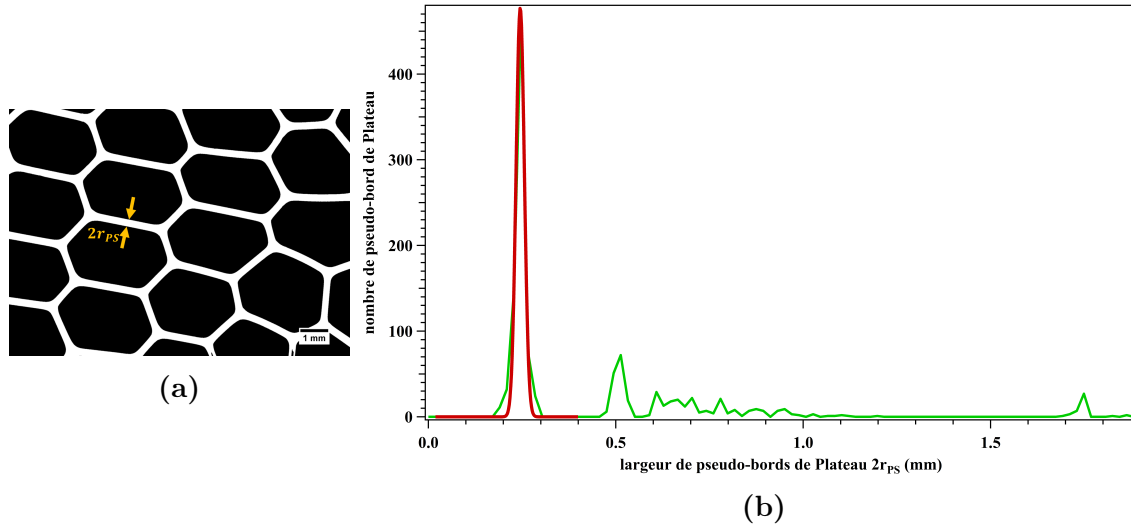


FIGURE 4.8: Méthode permettant de mesurer la taille des pseudo-bords de Plateau. a) Image binarisée de la surface d'une mousse 2D réalisée pour une hauteur $h = 83$ mm, une épaisseur $e = 1.5$ mm et une taille de bulles initiale $R_0 = 1.35$ mm. Les flèches indiquent la largeur d'un pseudo-bord de Plateau soit $2r_{PS}$. b) Histogramme de la largeur de pseudo-bords de Plateau, mesurée à l'aide d'une macro sous ImageJ. L'histogramme est réalisé sur les résultats de 10 images prises consécutivement.

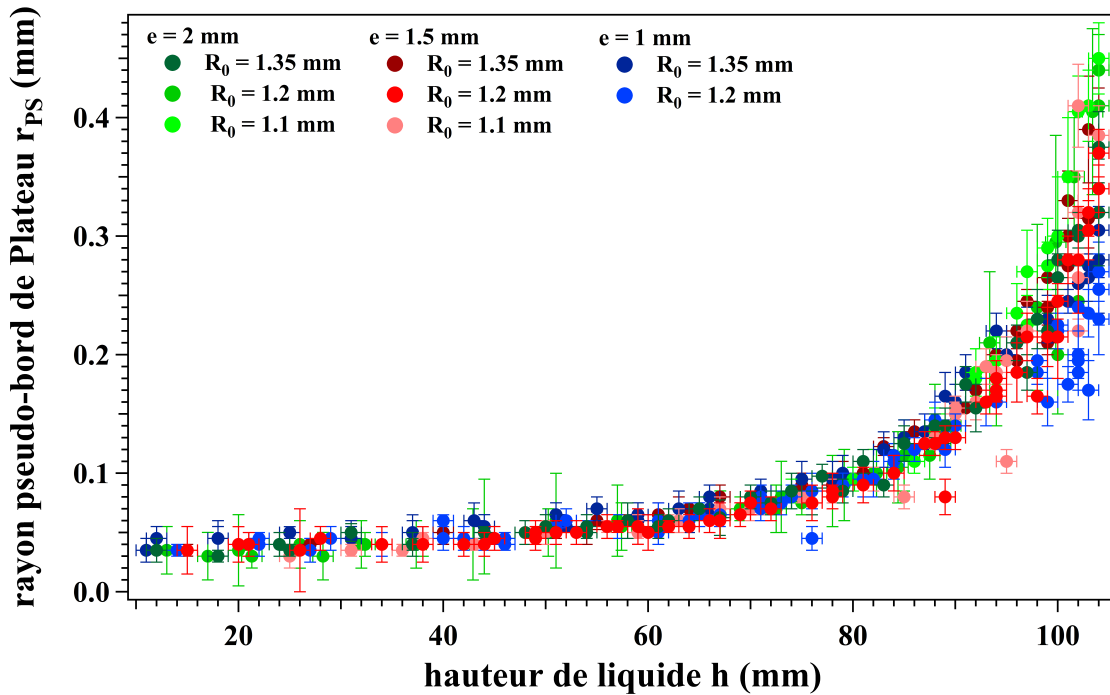


FIGURE 4.9: Graphique représentant les rayons des pseudo-bords de Plateau en fonction de la hauteur de liquide dans le réservoir de la cellule 2D. Comme pour la figure 4.7, les points en dégradé de verts, rouges et bleus sont respectivement obtenus pour un écartement entre les deux plaques de plexiglas de 2 mm, 1.5 mm et 1 mm. Les dégradés des différentes couleurs représentent les rayons initiaux des bulles lors de leur création à l'aide de l'aiguille. Ainsi, de la plus foncée à la plus claire $R_0 = 1.35$ mm, 1.2 mm et 1.1 mm.

La figure 4.9 représente le rayon des pseudo-bords de Plateau r_{PS} en fonction de la hauteur h de liquide dans le réservoir pour différentes valeurs de e et de R_0 . Les

couleurs utilisées sont les mêmes que sur la figure 4.7. On peut ainsi remarquer que r_{PS} augmente lorsque la hauteur h augmente. Cependant, contrairement à ϕ_s , tous les points se rejoignent sur une courbe maîtresse montrant que, aux barres d'erreur près, ni l'espacement entre les plaques ni le rayon des bulles n'ont une influence sur la taille des pseudo-bords de Plateau.

Ainsi, le bon paramètre semble être le rayon des pseudo-bords de Plateau et non la fraction liquide surfacique, c'est-à-dire que le dispositif permet de fixer la valeur de r_{PS} et par conséquent la pression capillaire. Ceci confirme les affirmations de Roth *et al.* [60].

4.2.5 Lien entre la fraction liquide surfacique et le rayon des pseudo-bords de Plateau

Grâce à ces différentes expériences, nous avons cherché un lien entre la fraction liquide surfacique et la taille des pseudo-bords de Plateau.

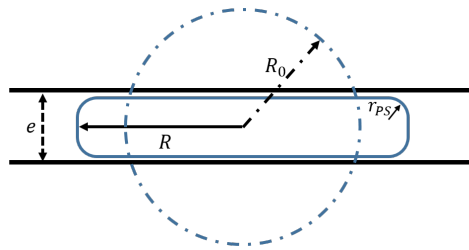


FIGURE 4.10: Schéma d'une bulle confinée de rayon R entre deux plaques séparées d'une épaisseur e .

Pour cela, il faut revenir à la définition de la fraction liquide surfacique $\phi_s = \frac{S_l}{S_m}$ avec la surface de mousse $S_m \propto R^2$ et S_l la surface de liquide entourant les bulles. Ainsi, la fraction liquide surfacique peut être calculée à partir de la fraction surfacique de gaz (Figure 4.11) : $\phi_{s \text{ gaz}} = 1 - \phi_s = \frac{(R - r_{PS})^2}{R^2}$. De plus, le rayon de la bulle confinée entre les deux plaques est donné par $R = \frac{R_0^{3/2}}{\sqrt{e}}$ où R_0 est le rayon de la bulle non confinée et e est l'épaisseur entre les deux plaques (Figure 4.10). Ainsi en combinant ces différentes équations, on obtient l'équation 4.2.

$$\phi_s \propto 1 - \left(1 - \frac{\sqrt{e}}{R_0^{3/2}} r_{PS}\right)^2 \quad (4.2)$$

Afin de vérifier son exactitude nous traçons sur la figure 4.11. ϕ_s en fonction du membre de droite de l'équation 4.2, on peut voir que l'ensemble des points sont sur la même droite au moins pour $\phi_s < 65\%$. On a donc bien un lien entre d'une part la fraction liquide surfacique et l'épaisseur entre les deux plaques, la taille initiale des bulles et la taille des pseudo-bords de Plateau d'autre part grâce à l'équation 4.2.

4.2.6 Mousse monodisperse et mousse polydisperse

Afin de compléter cette étude, des expériences ont été menées en changeant la polydispersité de la mousse. Nous avons réalisé des mousses monodisperses ordonnées, soit des mousses avec des bulles de la même taille ($\sigma = \frac{\sqrt{\langle A^2 \rangle - \langle A \rangle^2}}{\langle A \rangle} < 0.15$) et des mousses polydisperses qui sont à l'inverse des mousses avec une forte polydispersité

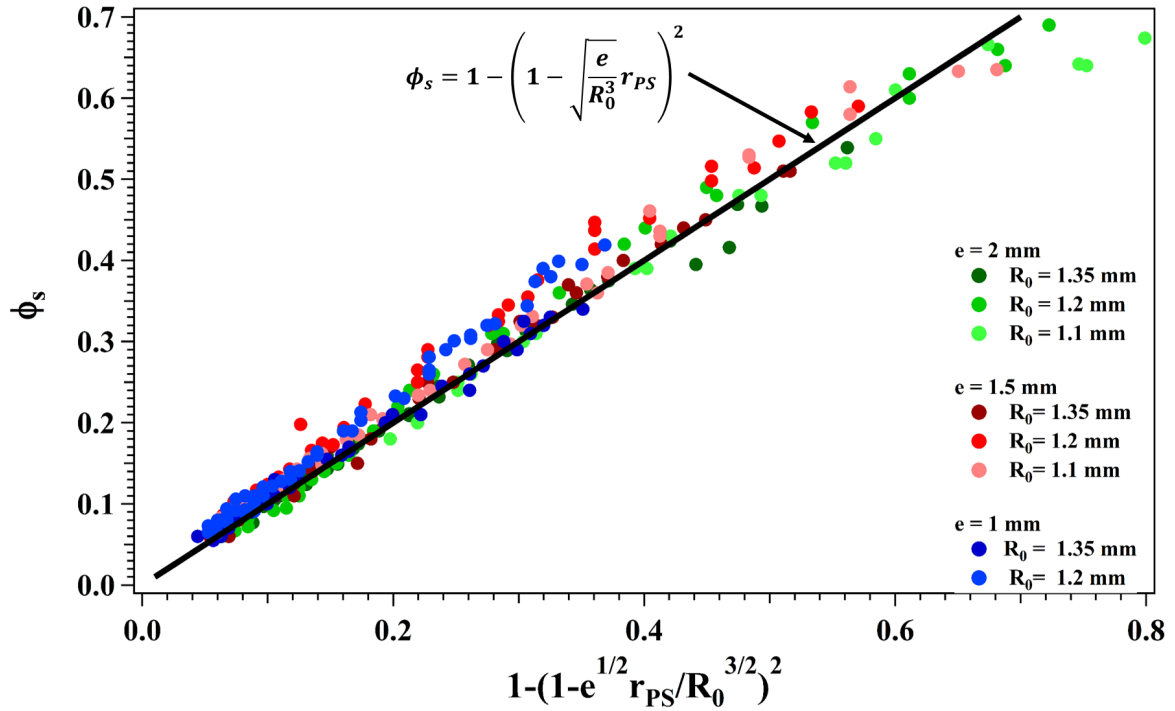


FIGURE 4.11: Graphique représentant les rayons des pseudo-bords de Plateau en fonction de la fraction liquide surfacique. Comme précédemment, les points en dégradé de verts, rouges et bleus correspondent respectivement à un écartement entre les deux plaques de plexiglas de 2 mm, 1.5 mm et 1 mm. Les dégradés des différentes couleurs représentent les rayons initiaux des bulles lors de leur création à l'aide de l'aiguille. Ainsi, de la plus foncée à la plus claire $R_0 = 1.35$ mm, 1.2 mm et 1.1 mm.

($\sigma > 15$ %). Ces expériences sont réalisées de la même façon que précédemment. Cependant, afin d'obtenir une mousse polydisperse, la méthode de bullage est modifiée. En effet, le pousse-seringue est remplacé par un contrôleur de pression afin d'avoir un grand intervalle de débit. À petit débit de gaz, la mousse est monodisperse et, à grand débit, la mousse obtenue est polydisperse. Les résultats pour la fraction liquide et la taille des pseudo-bords de Plateau en fonction de la hauteur sont représentés sur la figure 4.12.

La fraction liquide surfacique

À partir des images, la fraction liquide surfacique est calculée pour les mousses monodisperses et polydisperses (Figure 4.12c). Si l'on se concentre sur la courbe correspondant à la mousse monodisperse et qu'on la compare aux points correspondant à la même épaisseur d'inter-plaques soit $e = 1$ mm, de la figure 4.7, on peut remarquer que ces deux courbes sont comparables. Ceci permet de voir que les deux méthodes de bullage (avec le pousse-seringue et le contrôleur de pression) donnent le même résultat dans le cas de mousses monodisperses. De plus, la fraction liquide surfacique augmente avec la hauteur h de manière identique pour les mousses monodisperses (en violet) et polydisperses (en orange).

Le rayon des pseudo-bords de Plateau

La figure 4.12d représente la taille des pseudo-bords de Plateau en fonction de la hauteur de liquide dans le réservoir. Ainsi, lorsque la hauteur h augmente, il en est

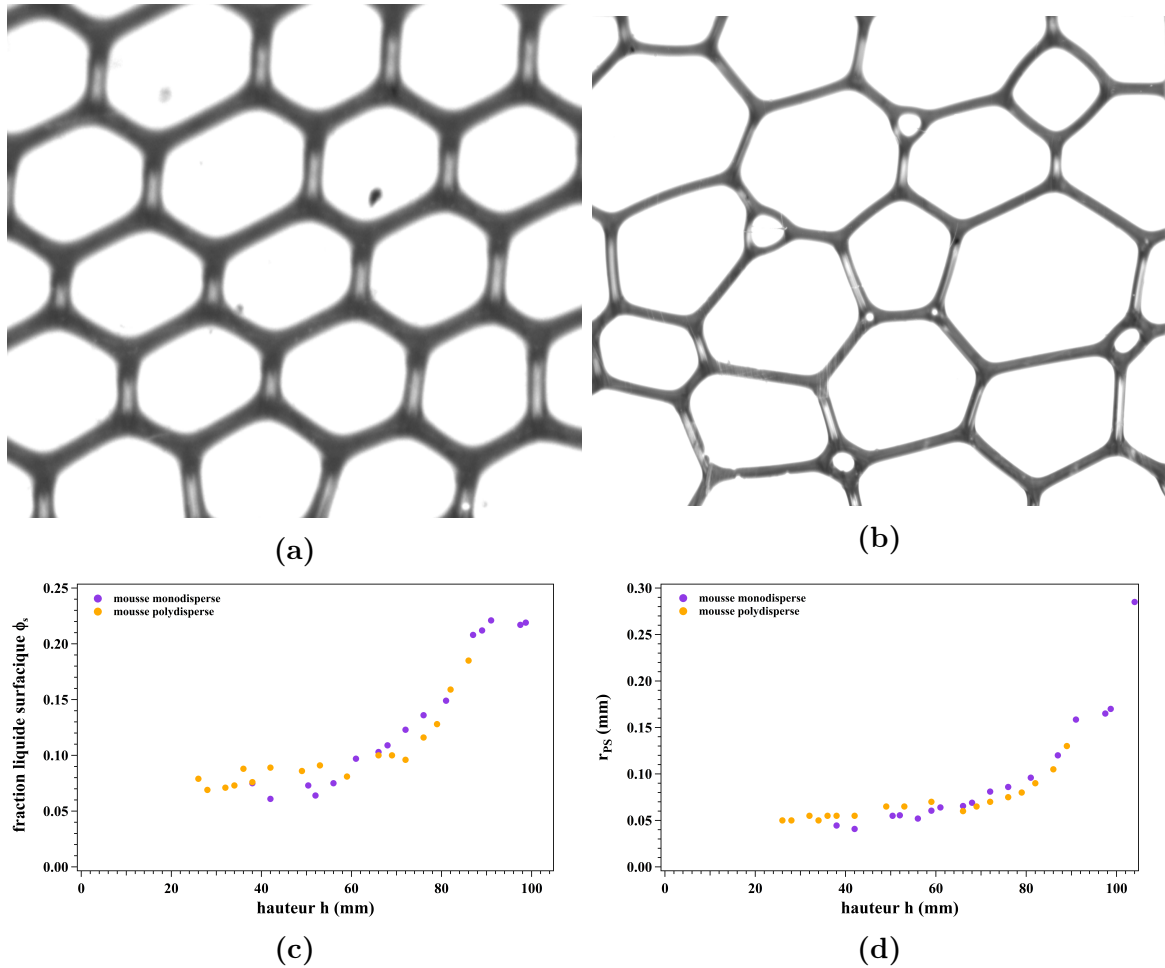


FIGURE 4.12: Image d'une mousse 2D a) monodisperse et b) polydisperse. Influence de la polydispersité sur c) la fraction liquide surface et d) le rayon des pseudo-bords de Plateau en fonction de la hauteur h de liquide. Les points violets sont obtenus pour une mousse monodisperse et les points oranges pour une mousse polydisperse. L'épaisseur entre les deux plaques $e = 1$ mm.

de même pour r_{PS} . De plus, en comparant les courbes des mousses monodisperses et polydisperses, on constate que celles-ci évoluent semblablement.

Ainsi, la polydispersité à l'échelle globale de la mousse n'a d'influence ni sur la fraction liquide surfacique ni sur la taille des pseudo-bords de Plateau.

4.3 Conclusion sur le montage expérimental

En conclusion, nous disposons d'un montage expérimental permettant d'étudier l'évolution d'une mousse 2D et l'influence de l'humidité de la mousse sur cette évolution. Ce dispositif composé d'un réservoir et d'une partie confinée entre deux plaques est idéal pour contrôler l'humidité de la mousse et donc le mûrissement et la coalescence d'une mousse 2D. L'étude des caractéristiques de la cellule 2D effectuée, en imageant la surface de différentes mousses, a permis de vérifier que le paramètre de contrôle était la taille des pseudo-bords de Plateau r_{PS} . Ceci signifie qu'avec cette cellule, ce n'est pas l'humidité de la mousse 2D, mais la pression capillaire $P_c = \frac{2\gamma}{r_{PS}}$ qui est contrôlée. Cette expérience nous permet donc de varier facilement la taille des bulles et ϕ_s à valeur de r_{PS} contrôlée. De plus, grâce aux travaux effectués lors de la caractérisation de cellule

2D, une première étape vers la compréhension du lien entre la fraction liquide à 2D et à 3D a été réalisée.

Dans les chapitres suivants, ce montage expérimental sera utilisé dans la configuration présentée dans la section 4.1 afin d'étudier la compétition entre le mûrissement et la coalescence puis d'analyser exclusivement le mûrissement et enfin uniquement la coalescence.

Chapitre 5

Identification et analyse des mousses qui coalescent

Dans cette partie, nous chercherons à étudier l'évolution de mousses 2D. Le mûrissement et la coalescence peuvent être analysés à l'aide du montage expérimental présenté dans le chapitre 4. L'une des difficultés majeures lors de cette étude est de déterminer automatiquement les mousses qui ont évolué principalement par coalescence et celles qui ont principalement mûri. En effet, nous pouvons voir sur la figure 5.1 qu'il est possible de reconnaître à l'œil, à partir d'une image prise à un certain temps t , l'histoire de la mousse.

Ainsi, sur la figure 5.1a se trouve une mousse 2D de "fairy" (produit vaisselle couramment utilisé car il permet d'obtenir des mousses très stables). À $t = 0$ min, la mousse est monodisperse avec de grandes zones des bulles hexagonales. À $t = 3355$ min, la mousse est devenue polydisperse, avec la présence de grosses bulles de géométrie régulière. Les zones avec les bulles hexagonales ont rétréci mais sont toujours présentes. La seule visualisation de cette image, permet d'estimer que la mousse a principalement mûri.

Sur la figure 5.1b, nous constatons qu'à temps $t = 0$ min, la mousse est similaire à celle de la figure 5.1a. Cependant, les bulles sont plus grosses et les films les séparant sont beaucoup plus fins montrant qu'il s'agit d'une mousse plus sèche. Si l'on s'intéresse à l'image de cette mousse au temps $t = 756$ min, on peut voir une mousse très polydisperse avec une très grosse bulle et quelques grosses bulles de forme irrégulière. La forme de ces bulles permet de savoir qu'il s'agit d'une mousse ayant évolué par coalescence contrairement à la mousse dans la figure 5.1a.

À l'œil, il est donc possible de deviner l'histoire d'une mousse à partir d'une image de la mousse prise à un certain temps t . Dans ce chapitre est présenté un paramètre grâce auquel nous distinguons les mousses qui ont évolué principalement par coalescence de celles ayant évolué principalement par mûrissement. Ensuite, nous verrons un programme Matlab permettant de suivre les bulles d'une image à l'autre afin de détecter chaque évènement de coalescence.

5.1 Paramètre de convexité

En regardant les images d'évolution de mousses de la figure 5.1, on peut observer plusieurs différences en fonction de l'histoire des mousses. Ainsi, dans une mousse ayant évolué principalement par coalescence des bulles, nous avons la présence de bulles

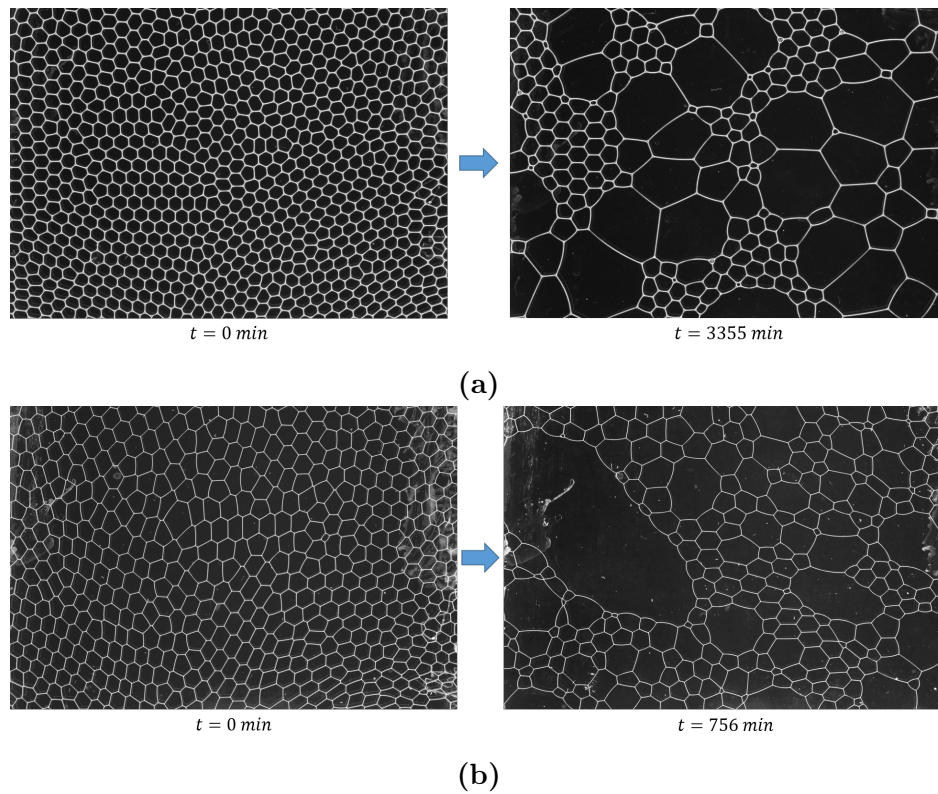


FIGURE 5.1: *L'évolution de deux mousses. Au temps $t = 0$ s, les deux mousses sont mono-disperses et similaires. Au bout d'un certain temps t , elles ont évolué de manière différente. a) La mousse qui a évolué par mûrissement, est composée de plusieurs grosses bulles et de zones de bulles à 6 cotés n'ayant pas évolué. De plus, ces bulles sont de forme régulière. b) Cette mousse a évolué par coalescence, il y a quelques bulles de très grande taille et de forme très irrégulière.*

beaucoup plus grosses, très allongées, avec de nombreux voisins. L'utilisation de ces paramètres pour comparer l'histoire des mousses est complexe car ces grosses bulles sont rares et leur influence sur les paramètres à l'échelle globale est faible. Il faudrait donc étudier les queues de distribution ce qui s'avère difficile. Ainsi, nous avons mesuré des paramètres tels que l'aire moyenne des bulles, leur allongement, leur nombre de côtés. La valeur de ces paramètres pondérée par la taille des bulles a été calculée. Mais la différence entre les différentes images de la figure 5.1 reste noyée dans le bruit. Un autre paramètre caractéristique de ces bulles a donc été introduit : leur convexité. Pour caractériser cette convexité, nous avons choisi d'utiliser un outil mathématique appelé l'enveloppe convexe.

5.1.1 Définition de l'enveloppe convexe

L'enveloppe convexe est le plus petit ensemble convexe contenant les points du système. Il est facile de comprendre ce qu'elle représente grâce à l'expérience de pensée présentée sur la figure 5.2. Il s'agit d'utiliser des clous plantés dans un support. La forme prise par l'élastique, rouge de la figure 5.2 est celle de l'enveloppe convexe. Les clous verts sont en contact avec l'élastique et donc à la limite de l'enveloppe. Nous allons appliquer cette expérience de pensée sur les bulles composant une mousse 2D pour extraire leur enveloppe convexe.

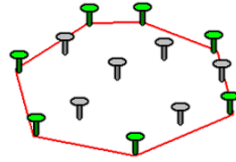


FIGURE 5.2: Exemple de l'enveloppe convexe avec des clous et un élastique. La forme prise par l'élastique pour faire le tour des clous correspond à l'enveloppe convexe.

5.1.2 Convexité des bulles

Afin de calculer l'enveloppe convexe, nous utilisons le squelette d'images de mousse 2D. Pour chaque bulle de l'image, les coordonnées des vertex sont connues (la manière dont ces informations sont obtenues est détaillée dans le chapitre 7). En utilisant la fonction "convexhull" de MATLAB, il est possible de calculer l'enveloppe convexe et son aire pour chacune des bulles.

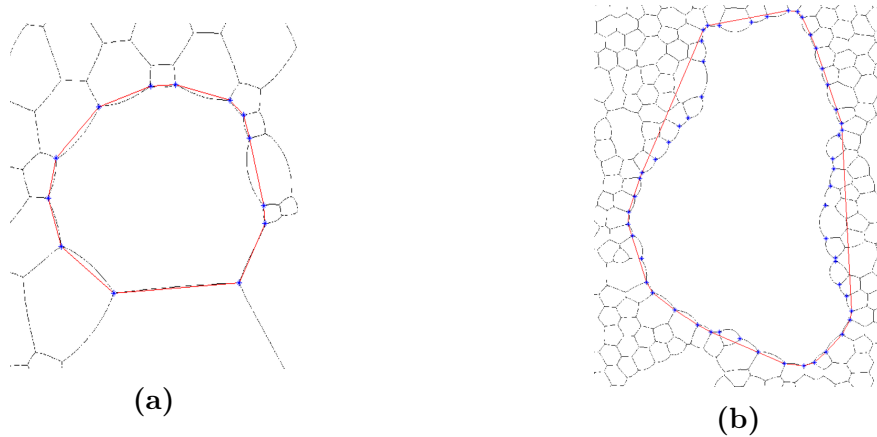


FIGURE 5.3: Exemple de l'enveloppe convexe sur a) une bulle qui a mûri et b) une bulle qui a évolué par coalescence.

Sur la figure 5.3 sont représentées deux bulles avec leurs vertex en bleu et leur enveloppe convexe en rouge. Sur la figure 5.3a, l'évolution est due principalement au mûrissement. On peut ainsi constater que l'enveloppe convexe passe par tous les vertex. De plus, la différence entre l'aire réelle de la bulle et celle de son enveloppe convexe est faible. Au contraire dans le cas de la bulle ayant principalement évolué par coalescence (Figure 5.3b), l'enveloppe convexe ne passe pas par tous les vertex et l'aire comprise par l'enveloppe convexe est plus grande que l'aire réelle de la bulle.

En calculant la différence entre l'aire de l'enveloppe convexe et celle de la bulle pour chacune des bulles, nous pouvons calculer la convexité, C_v de la mousse pour une image donnée grâce à l'équation 5.1.

$$C_v = \frac{\langle \frac{A_{\text{conv}} - A_{\text{bulle}}}{A_{\text{bulle}}} \rangle}{\langle \frac{A_{\text{conv } t=0} - A_{\text{bulle } t=0}}{A_{\text{bulle } t=0}} \rangle} \quad (5.1)$$

Cette équation correspond à la moyenne sur toutes les bulles de l'image de la différence entre l'aire de l'enveloppe convexe, A_{conv} et l'aire réelle de la bulle, A_{bulle} pondérée par l'aire moyenne des bulles de l'image, $\langle A_{\text{bulle}} \rangle$. Afin de pouvoir comparer les différentes expériences, ce paramètre est normalisé par sa valeur sur la première image à $t = 0$ min. Dans le cas de mousses ayant évolué par mûrissement ou par événements isolés de

coalescence, on s'attend à ce que ce paramètre tende vers 1 car l'ensemble des différences entre les aires de l'enveloppe convexe et les aires réelles se compensent. Ce ne sera pas le cas lorsque des bulles ayant évolué par avalanche de coalescences sont présentes dans la mousse. En effet, dans cette éventualité, il y a une grande différence entre les deux aires, ce qui entraîne l'augmentation du paramètre de convexité.

Pour vérifier la pertinence du paramètre de convexité, nous avons réalisé différentes expériences dans la cellule 2D présentée dans le chapitre 4.

5.2 Réalisation des expériences

5.2.1 Protocole de nettoyage et préparation des solutions

Protocole de nettoyage de la cellule

La cellule 2D est tout d'abord nettoyée à l'eau du robinet. La cellule est laissée sous l'eau pendant 2–3 min. Par la suite, cinq rinçages à l'éthanol de la totalité de la cellule sont effectués, suivis de huit rinçages à l'eau ultra-pure. Enfin la cellule est séchée à l'aide d'un pistolet à air comprimé. Les seringues, les tuyaux et la burette graduée sont rincés 5 fois à l'eau du robinet, cinq fois à l'éthanol et cinq fois à l'eau ultra-pure. Ils sont enfin séchés avec l'air comprimé.

Les différents récipients contenant les solutions d'intérêt sont également nettoyés selon le protocole suivant. Ils sont rincés dix fois à l'eau du robinet, deux fois à l'eau ultra-pure, deux fois à l'éthanol, quatre fois à l'acétone, puis deux fois à l'éthanol, enfin ils sont rincés dix fois à l'eau ultra-pure et laissés à sécher.

L'eau ultra-pure utilisée pour les étapes de nettoyage mais également de préparation des solutions provient d'un système de filtrage Millipore SimPak produisant une eau de résistivité 18.2 M Ω .cm.

Protocole de préparation des solutions

Les solutions utilisées sont préparées dans des bouteilles en plastique de 250 mL. Avant leur utilisation, les bouteilles sont nettoyées suivant le protocole décrit dans la sous-section 5.2.1.

Solution de TTAB : La solution de TTAB utilisée est de concentration 5 g/L. Afin de préparer cette solution, le tensio-actif d'intérêt est prélevé avec une spatule jetable et est pesé grâce à une balance Kern 440-35N de précision 0.01 g. La quantité d'eau ultra-pure nécessaire pour obtenir la concentration désirée est ensuite ajoutée par pesée sur la même balance. Enfin la solution est homogénéisée à l'aide d'un agitateur magnétique en chauffant la solution à 50 °C pendant 10 min.

L'homogénéité des solutions est vérifiée par contrôle visuel. Les produits chimiques utilisés sont de la marque Sigma-Aldrich. Une nouvelle boîte de TTAB est ouverte chaque mois afin d'éviter toute contamination.

5.2.2 Protocole expérimental

Les expériences sont réalisées avec la cellule 2D présentée dans le chapitre 4. Une fois l'épaisseur inter-plaques fixée, la cellule est scellée. Le liquide est injecté jusqu'à la hauteur choisie. Puis le gaz est injecté dans le réservoir à l'aide d'une aiguille. Le débit de gaz est contrôlé par un contrôleur de pression ou un pousse-seringue. Le bullage

est stoppé lorsque la mousse remplit complètement la partie 2D. Dans la majorité des expériences, nous souhaitons étudier des mousses monodisperses, le bullage est alors maintenu jusqu'à l'obtention d'une telle mousse. Dans ce cas, il peut être nécessaire d'injecter régulièrement de la solution afin de maintenir la hauteur de liquide constante. Après l'obtention d'une mousse, il faut attendre que la pression diminue dans la cellule avant de commencer l'expérience. L'évacuation de cette surpression s'effectue grâce aux deux sorties situées à l'extrémité de la plaque supérieure. Le contrôle de la pression est réalisé à l'aide de la burette graduée reliée au second canal du réservoir. En attendant le retour à la pression atmosphérique, le logiciel de capture d'image "U-eye trigger" est programmé pour prendre des images à un intervalle de temps donné. Enfin, les deux sorties sont reliées à une vessie permettant d'assurer une pression constante. L'expérience est arrêtée lorsque la mousse dans la partie confinée n'est plus connectée avec celle située dans le réservoir.

5.3 Étude de la compétition entre mûrissement et coalescence grâce au paramètre de convexité

En utilisant le protocole expérimental précédent, nous avons réalisé différentes expériences afin d'étudier l'influence de l'humidité, de la polydispersité initiale et de la taille des bulles de la mousse. Après une observation qualitative sur trois exemples, nous étudierons l'influence de ces paramètres.

5.3.1 Paramètre de convexité et nombre cumulé d'évènements de coalescence

Dans la section 5.1, nous avons vu qu'il est possible de calculer un paramètre de convexité, C_v grâce à l'équation 5.1 et ce pour chaque image d'une expérience. L'évolution de ce paramètre en fonction du temps est représentée sur la figure 5.4. Sur cette figure est également représenté, par les courbes en pointillé, le nombre cumulé d'évènements de coalescence au cours du temps pour les mêmes expériences. Nous expliquerions dans le chapitre suivant comment ce nombre est obtenu.

Les trois mousses choisies pour exemples sur la figure 5.4 ont un comportement très différent. En effet, la courbe bleue représente une mousse humide ($\phi_s = 62\%$) qui évolue majoritairement par mûrissement mais également par événements isolés de coalescence. Le paramètre de convexité reste constant et $C_v \approx 1$. La courbe rouge correspond à une mousse sèche ($\phi_s = 14\%$ et $r_{PS} = 0.07$ mm); le nombre de coalescences et le paramètre de convexité croissent dès la création de la mousse, ce qui indique la présence d'avalanches de coalescence détruisant rapidement la mousse. Enfin les courbes vertes correspondent à une mousse d'humidité intermédiaire ($\phi_s = 41\%$ et $r_{PS} = 0.20$ mm). Le nombre cumulé de coalescences, permet de mettre en évidence la présence de coalescences environ 30 min après le début de l'expérience. Cependant, C_v reste constant jusqu'à $t \sim 540$ min puis augmente rapidement. L'évolution temporelle de cette mousse est donc tout d'abord dominée par du mûrissement et des événements isolés de coalescence laissant suffisamment de temps à la mousse pour se réarranger puis la destruction de la mousse est dominée par les avalanches de coalescence provoquées par quelques grosses bulles qui "mangent" leurs voisines. Ce phénomène entraîne l'augmentation brutale du paramètre de convexité.

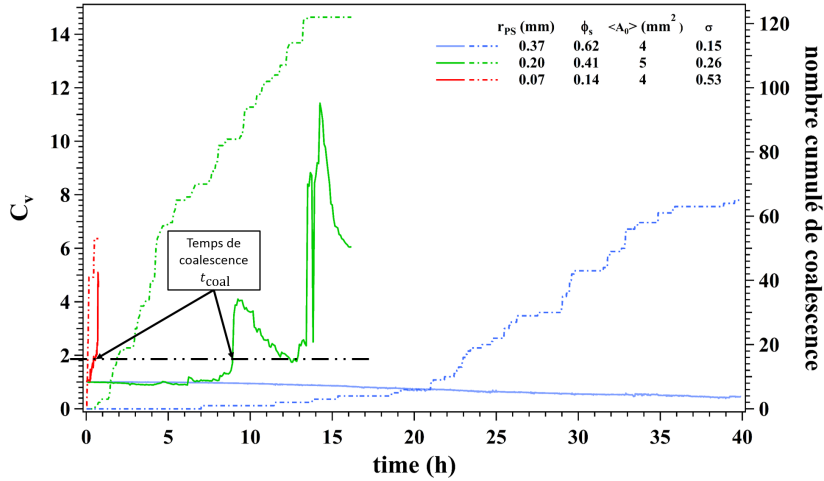


FIGURE 5.4: Paramètre de convexité C_v (trait plein) et nombre cumulé de coalescences (trait en pointillé) en fonction du temps pour trois expériences types. Ces expériences ont été réalisées avec une solution de TTAB de concentration 5 g/L et pour trois tailles de pseudo-bords de Plateau : $r_{PS} = 0.37$ mm en rouge, $r_{PS} = 0.20$ mm, en vert et $r_{PS} = 0.07$ mm en bleu. Le trait en pointillé noir indique la valeur limite du paramètre de convexité permettant de définir le temps de coalescence, t_{coal} , qui est pointé par les flèches.

Ainsi, le paramètre de convexité, C_v , permet de mettre en évidence la présence d'avalanches de coalescence, lorsqu'il est différent de 1. L'observation de ce paramètre au cours du temps et sa comparaison au nombre cumulé d'évènement de coalescence fait apparaître deux régimes de coalescence : d'abord un régime dans lequel les évènements de coalescence sont isolés, C_v est alors proche de 1 car la mousse peut se réarranger. Ce premier régime permet de créer quelques bulles de taille suffisante pour influencer sur C_v et engendrer le second régime dans lequel le paramètre de convexité augmente rapidement. La mousse est alors détruite par des avalanches de coalescence localisés autour des plus grosses bulles. On peut noter que dans ce régime, le paramètre de convexité peut décroître fortement entre deux temps successifs si le film séparant deux grosses bulles se rompt, favorisant le réarrangement de la mousse et entraînant donc la diminution de C_v .

5.3.2 Définition du temps de coalescence

Comme nous venons de le voir, il est possible de définir deux régimes dans l'évolution de la mousse 2D. Le passage entre ces régimes étant caractérisé par un changement brutal de pente de la courbe C_v en fonction du temps, il est possible de définir un temps auquel le second régime est atteint. Ce temps, que nous appellerons par la suite temps de coalescence, t_{coal} , correspond au temps auquel le paramètre de convexité atteint une valeur arbitrairement fixée à $C_v = 2$ (figure 5.4), sans qu'il ne chute par la suite en dessous de cette valeur. En effet, il est possible d'avoir des pics dans la courbe de C_v qui peuvent être, par exemple, dus à un problème de traitement sur une image ou encore à un temps de prise d'image trop court ne permettant pas à la mousse de se réarranger. C'est pourquoi le paramètre de convexité doit rester supérieur à 2 pendant une longue période. Sur la figure 5.4, les flèches pointent sur le temps de coalescence pour les courbes représentant le paramètres de convexité. Ainsi, pour la mousse sèche, en rouge, $t_{coal} = 0.6$ h, et pour la mousse d'humidité intermédiaire, en vert, $t_{coal} = 8.9$ h. Il semble donc que l'humidité de la mousse influe sur les avalanches de coalescence.

5.4 Programme MATLAB : suivi de bulles

Le programme permettant de suivre les bulles d'une image à l'autre et de mettre en évidence chaque évènement de coalescence, est une amélioration du programme créé par Benjamin Dollet durant sa thèse. À l'origine, ce programme permettait de suivre des bulles afin de mesurer la contrainte exercée dans la mousse à l'échelle globale et locale. Il a été repris et modifié pendant ce travail de thèse afin de suivre les évènements de coalescence.

Ce programme peut être décomposé en plusieurs parties. Tout d'abord, un pré-traitement sous ImageJ permet de transformer les images originales en leurs squelettes. Le programme Matlab se décompose en cinq parties. La première est l'identification des bulles et la récupération des informations concernant ces bulles. La seconde est l'élimination de petites bulles qui se comportent comme des bulles 3D. Ensuite, une seconde étape d'identification, similaire à la première, est réalisée. Ensuite un suivi des bulles entre une image au temps t et une image au temps $t + 1$ est effectué. Enfin, la dernière étape consiste à trouver les évènements de coalescence et à vérifier leur authenticité.

5.4.1 Prétraitement avec une macro d'ImageJ

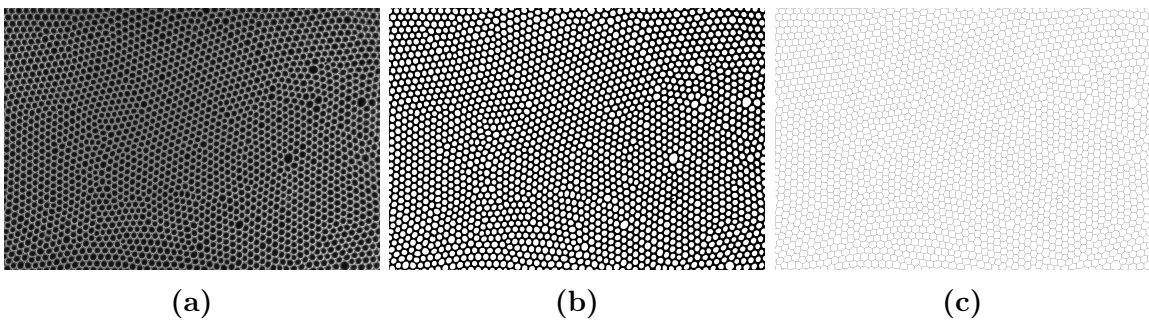


FIGURE 5.5: Images d'une mousse quasi-2D de TTAB 5 g/L et d'air. Ces images correspondent au prétraitement réalisé grâce au logiciel ImageJ a) Image d'origine en niveau de gris b) Image binarisée en noir et blanc. c) Squelette de l'image

Afin de fonctionner, le programme de suivi de bulles a besoin d'images en noir et blanc dans lesquelles les objets sont délimités par une seule ligne de pixels et que nous qualifierons de squelettisées. Cette ligne doit être parfaitement fermée. Les images issues de l'expérience (figure 5.5a), initialement en niveau de gris sont donc transformées en images binarisées c'est-à-dire uniquement composées de pixels noirs et blancs. Une image en niveau de gris peut également être vue comme une matrice composée de valeurs comprises entre 0 et 255. Afin d'obtenir une image binarisée, composée de 0 ou 255, il faut choisir un seuil tel que pour chaque pixel :

- si $n_{NG} < \text{seuil}$, la valeur dans la matrice devient 0 et le pixel apparaît blanc sur l'image.
- si $n_{NG} > \text{seuil}$, la valeur dans la matrice devient 255 et le pixel apparaît noir sur l'image.

À partir d'une image binaire telle que sur la figure 5.5b, il faut affiner les pseudo-bords de Plateau et les nœuds pour n'obtenir qu'une ligne de pixels. Pour cela, il faut utiliser la fonction "Analyze particles" et soustraire l'image contenant uniquement les nœuds

et pseudo-bords de Plateau. Enfin, grâce à la fonction "skeletonize", on peut obtenir un squelette de la mousse (Figure 5.5c).

5.4.2 Identification des bulles

À partir des squelettes d'images, l'une des étapes cruciales est d'identifier toutes les bulles et d'obtenir toutes les informations nécessaires. Dans cette étape, chaque image est traitée séparément. Dans un premier temps, toutes les bulles sont numérotées. Pour cela, la fonction "bwlabel" de MATLAB détecte les espaces fermés et les numérote. Ainsi, chaque coordonnée de la matrice d'un même espace fermé à la même valeur. Le bord est représenté par une valeur de 0. Cette manière de numérotter les bulles permet par la suite d'obtenir leurs aires, leurs périmètres, le centre de chaque bulle mais également la liste complète des pixels des bulles. Cette dernière propriété sera utile ultérieurement comme critère d'authentification de coalescence et pour colorier les bulles qui coalescent. Une fois les bulles identifiées, il s'agit de trouver les vertex et les côtés des bulles. Ces deux sous-parties ont été réalisées par Benjamin Dollet durant sa thèse [15].

Trouver les vertex

Pour trouver les vertex, il faut récupérer les coordonnées des pixels noirs (de valeur 0) puis regarder la valeur des pixels se trouvant aux coordonnées voisines dans toutes les directions (nord, nord-est, est, sud-est, sud, sud-ouest, ouest et nord-ouest). Si les valeurs trouvées sont différentes de 0 sur trois ou quatre des directions, pour les bulles dans l'image, ou deux, pour les bulles aux bords, le pixel est considéré comme un vertex. Sa position est alors gardée en mémoire ainsi que les numéros des bulles l'entourant.

Trouver les côtés

Pour trouver les côtés, il faut apparier deux vertex avec deux bulles en commun. Ceci fonctionne très bien lorsque les vertex sont à l'intérieur de l'image. Pour trouver les côtés des bulles au bord de l'image, la même méthode est utilisée mais le côté est identifié à partir de deux vertex grâce au numéro d'une seule bulle. Il est alors possible de connaître la position de chacun des vertex et donc des côtés et de calculer la longueur des côtés. Une fois les vertex et les côtés trouvés, il devient possible de calculer un certain nombre de propriétés pour chaque bulle.

Information sur les bulles

Une fois les vertex et les côtés trouvés, il devient possible de calculer un certain nombre de propriétés pour chaque bulle telles que l'enveloppe convexe détaillée dans la section 5.1.1, le nombre de voisins, le numéro, le second moment du nombre de côtés [67], l'élongation, l'aire, le périmètre, les coordonnées des pixels de la bulle, la longueur des côtés. Il est aussi possible de savoir quelles sont les bulles au bord de l'image.

Une structure est créée pour chacune des bulles afin de classer les informations la concernant. Dans cette structure sont également prévus un certain nombre d'emplacements qui seront utiles par la suite comme le numéro de la bulle sur l'image d'avant et d'après ou le numéro de la bulle avec laquelle elle fusionne et de sa bulle fille en cas de coalescence.

5.4.3 Élimination des fausses bulles

Cette étape permet d'éliminer à la fois les bulles 3D, les fausses bulles et les petites bulles dues aux réarrangements T2.

Les bulles 3D

Lors du mûrissement, lorsque les bulles deviennent plus petites que e , elles peuvent à trois dimension et induisent des erreur. Nous allons donc les éliminer. Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à quelques types de bulles 3D représentés sur la figure 5.6. Sur cette figure, les bulles 3D sont représentées telles que sur les photographies originales et squeletisées. Comme on peut le constater sur les squelettes, ces bulles 3D entraînent une surestimation du nombre de bulles sur l'image mais également un problème lors de l'étape de suivi de bulles et des évènements de coalescence. Nous nous sommes focalisés sur ces trois types de bulles car ce sont les plus courants. Les autres bulles 3D seront éliminées en même temps que les fausses bulles.

Dans les bulles 3D, le nombre de côtés que doit avoir une bulle est imprécis car l'épaisseur des vertex sur l'image initiale peut artificiellement augmenter le nombre de vertex. Par exemple, il est possible que le programme voit deux vertex à la place d'un seul à cause d'un vertex épais qui se transforme en deux vertex lors de la squelettisation. Ceci complexifie l'identification des bulles 3D. Un programme de traitement d'image créé par Benjamin Dollet permet d'améliorer cette identification en affinant les vertex épais (avec plus de un pixel) et en supprimant les ramifications qui ne correspondent pas à des côtés de bulles.

Les bulles 3D les plus simples à identifier sont celles représentées sur la figure 5.6a. Il s'agit de bulles rectangulaires. Sur l'image originale, on peut voir qu'un film semble couper la bulle en deux. Ce film correspond au contact entre les deux bulles voisines sous la bulle 3D. Après la squelettisation, ce film coupe la bulle en deux bulles rectangulaires de taille similaire. Afin d'éliminer ces bulles, il faut donc, dans un premier temps, trouver les bulles à quatre côtés qui ont une voisine avec quatre côtés. Puis, un critère d'élongation des bulles, basé sur le rapport entre la longueur et la largeur de celles-ci, permet de ne garder que les bulles rectangulaires. Aucun critère d'aire n'est donc nécessaire dans ce premier cas, leur géométrie rectangulaire suffit à leur identification. Une fois toutes les bulles 3D de ce type identifiées, le film séparant les deux bulles est enlevé.

Le second type de bulles 3D auquel nous nous sommes intéressés est représenté sur la figure 5.6b. Il s'agit pour le programme d'une bulle avec trois petites voisines. Pour cela, comme précédemment, on identifie les petites bulles à trois côtés avec trois petites voisines. Le critère de taille ici est fixé à 10 % de la taille moyenne des bulles de l'image. Une fois cette combinaison trouvée, il s'agit d'identifier les vertex communs à ces bulles. Une fois ces derniers repérés, ils sont éliminés en coloriant la zone en blanc.

Enfin le dernier type de bulles 3D que nous cherchons à éliminer correspond à celui représenté sur la figure 5.6c. Sur cette figure, on peut voir que ces bulles vont apparaître comme trois petites bulles plus ou moins triangulaires pour le programme. Ainsi, nous cherchons cette fois trois petites bulles voisines ayant une aire inférieure à 7 % de la moyenne des aires des bulles sur l'image. Le vertex commun à ces trois bulles est alors à éliminer. Le critère d'aire est ici légèrement plus petit que précédemment car il faut s'assurer de ne pas faire disparaître ces bulles trop longtemps avant leur disparition par réarrangement T2.

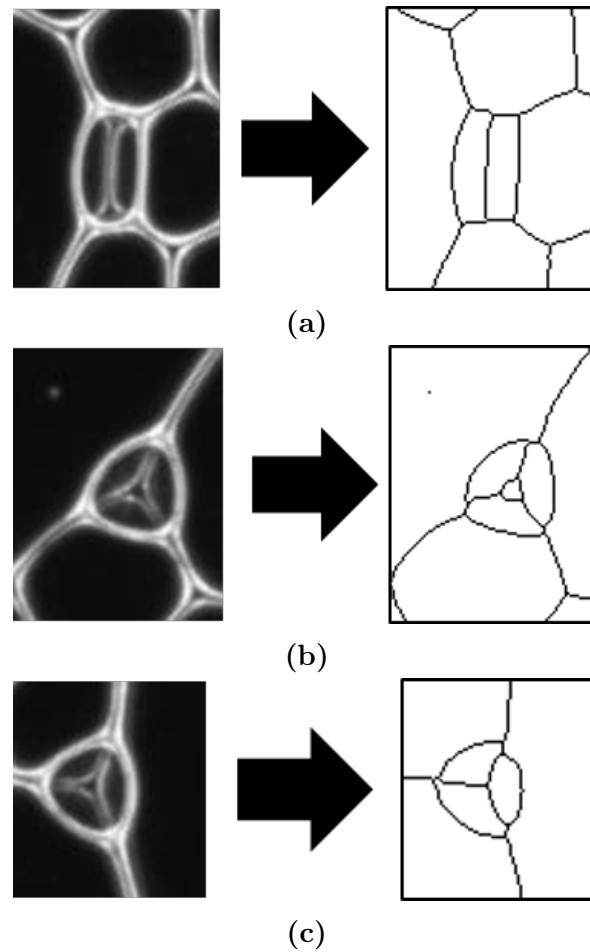


FIGURE 5.6: Les 3 principaux types de bulles 3D qu'il est possible de trouver dans les mousses 2D et que nous chercherons à éliminer grâce au programme MATLAB : a) Il s'agit d'une bulle 3D rectangulaire (sur l'image originale) qui, après avoir squelettisé de l'image, apparaît comme deux bulles rectangulaires identiques. b) Bulle 3D triangulaire qui apparaît sur le squelette de l'image comme quatre bulles dont une triangulaire au centre. c) Il s'agit également d'une bulle triangulaire mais dans ce cas, sur l'image squelettisée, elle apparaît comme trois bulles avec trois ou quatre côtés.

Les autres bulles

Toutes les bulles d'aires inférieures à 50 pixels^2 sont identifiées et coloriées en noir afin de disparaître à la prochaine identification. Ce sont en général des bulles en fin de processus T2.

Le dernier type de bulles que nous éliminons correspond aux bulles qui n'ont pas de sens physique. Celles-ci sont souvent dues à un problème sur l'image initiale comme par exemple une ombre, une trace ou une poussière sur l'une des plaques. La majorité de ces bulles possède un ou deux côtés. Il s'agit ici de les identifier et de les colorier en noir.

Supprimer les côtés ou les vertex et les bulles

Dans les différents cas que nous avons vus précédemment, il est question de faire disparaître des vertex, des bulles ou des films séparant les bulles. Pour cela, il y a deux procédures différentes. Dans le cas de la suppression de vertex, il faut mettre à 0 la valeur aux coordonnées du vertex afin de colorier en blanc le pixel à ces coordonnées.

Cependant, il ne suffit pas d'enlever uniquement ces coordonnées, il faut également changer la valeur aux coordonnées de pixels autour du vertex. En effet, certains vertex peuvent être sur plusieurs pixels. La même procédure est réalisée pour les films. Dans le cas de l'élimination de bulles, il s'agit simplement d'utiliser la liste des coordonnées de pixel des bulles et de changer la valeur présente par 0 pour colorier la bulle en noir. Lors de la seconde identification ces bulles, ne seront plus présentes.

À la fin de cette étape d'élimination de bulles, une grande majorité des "fausses bulles" sont supprimées. Il peut cependant rester quelques bulles 3D dont la forme très particulière. De même, il peut subsister des bulles liées aux problèmes de qualité des images initiales. Après cette étape, il est nécessaire de refaire une étape d'identification afin que toutes les bulles soient correctement labellisées et avec les bonnes propriétés.

5.4.4 Suivi des bulles

L'étape que nous allons décrire maintenant est l'étape de suivi de bulles d'une image à l'autre. Elle a été réalisée par Benjamin Dollet [15].

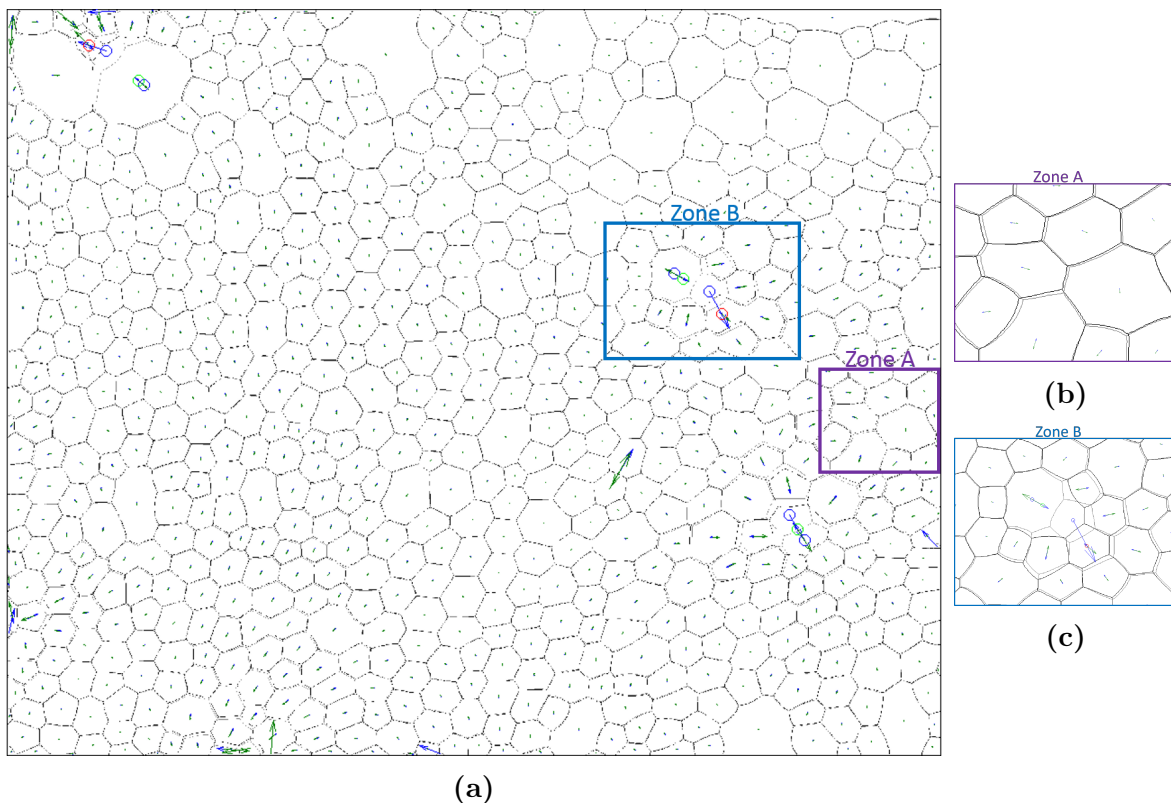


FIGURE 5.7: Suivi de bulles d'une image à la suivante. Les deux images sont superposées. Les traits gris correspondent aux bulles de l'image au temps t (appelée "Iavant") et les traits noirs représentent les bulles de l'image suivante au temps $t+1$ (appelée "Iaprès"). Les flèches bleues correspondent au déplacement du centre des bulles de l'image considérée à l'image suivante. Les flèches vertes correspondent au déplacement inverse c'est-à-dire depuis l'image suivante vers l'image considérée. a) Image complète de la mousse. b) zoom sur la zone A de l'image de la mousse. c) zoom sur la zone B dans laquelle deux bulles fusionnent. Les cercles bleus marquent le centre des bulles mères. Le cercle rouge représente une possible bulle fille. Le cercle vert est la bulle fille réunissant au mieux les critères de coalescence.

À partir de cette étape le programme utilise deux images, une image au temps t appelé "Iavant" et une image au temps $t+1$ appelé "Iaprès". Dans cette partie du

programme, il s'agit de suivre les bulles d'une image à l'autre. Pour cela, les coordonnées du centre des bulles de l'image au temps t sont identifiées et répertoriées dans un vecteur appelé "source". De même, les coordonnées du centre des bulles de l'image au temps $t+1$ sont rassemblées dans un vecteur appelé "target". Le programme va alors chercher le centre des bulles sur l'image $t+1$ le plus proche du centre des bulles de l'image au temps t , en tenant éventuellement compte d'une vitesse globale de déplacement dont nous ne nous servons pas ici. Puis, l'inverse est réalisé c'est-à-dire que le programme cherche la "source" la plus proche du "target". La figure 5.7 représente la superposition des deux images au temps t ("Iavant"), en gris, et au temps $t+1$ ("Iapres"), en noir. Les flèches bleues pointent des points de "source" vers les points de "target" correspondantes (figure 5.7b). À l'inverse, les flèches vertes pointent des points de "target" vers les points de "source".

À partir des informations obtenues dans cette partie, il est possible de remplir, pour chaque bulle des deux images, le numéro de la bulle sur l'image d'avant pour les bulles de l'image d'après et le numéro de la bulle sur l'image d'après pour les bulles de l'image d'avant. Le calcul du déplacement de la bulle entre les deux images, et ce dans les deux sens ("Iavant" vers "Iapres" et "Iapres" vers "Iavant"), est également réalisé.

5.4.5 Identification des évènements de coalescence

À partir du résultat du suivi des bulles, nous avons pu isoler chaque évènement de coalescence et identifier les bulles mères et la bulle fille du couple. La première étape est de trouver tous les mauvais suivis, c'est-à-dire toutes les bulles qui sur l'image $t+1$, possèdent deux bulles sources. En effet, suite à l'étape de suivi, chaque bulle de l'image $t+1$ possède le numéro de la bulle dont elle provient. Et inversement, les bulles de l'image t possèdent les numéros de la bulle sur l'image $t+1$. Toutes les bulles ayant deux provenances sont considérées comme des mauvais suivis. Par exemple, la figure 5.7c est un zoom sur la zone B de la figure 5.7a. Sur cette image, on peut voir que deux bulles coalescent. Si l'on regarde maintenant les flèches bleues et vertes sur cette figure, on peut voir que chaque bulle possède une flèche verte et une flèche bleue sauf l'une des bulles impliquées dans la coalescence vers laquelle aucune flèche verte ne pointe. Cela signifie qu'aucune bulle de l'image $t+1$ n'est issue de cette bulle. À l'inverse, dans cette zone, deux flèches bleues pointent vers la même bulle de l'image $t+1$ indiquant qu'une bulle a disparu sur l'image d'après. Les mauvais suivis correspondent donc aux bulles possédant uniquement une flèche bleue. Il y a ainsi une bulle sur l'image d'après qui possède deux bulles sources. Au niveau du programme, il faut en conséquence garder en mémoire toutes les bulles de l'image suivante qui ont deux bulles sources. Ces bulles seront considérées comme des bulles filles possibles. Pour retrouver les bulles mères de départ, il convient de récupérer le numéro des deux bulles sources.

Par la suite, plusieurs critères sont nécessaires pour s'assurer que les bulles mères sont vraiment des bulles qui coalescent. Pour cela, nous utilisons un critère d'aire puis un critère de nombre de pixels commun entre les bulles mères et la bulle fille. Enfin nous pouvons vérifier que la fille existe toujours deux images après celle considérée c'est-à-dire à l'image au temps $t+2$.

Critère d'aire

Le premier critère que nous appliquons est un critère sur la taille des bulles. En effet, on a une liste de bulles filles potentielles. Ces bulles filles sont liées à deux bulles mères potentielles. Dans un premier temps, il s'agit de vérifier que la somme des aires

des deux bulles mères est bien égale à l'aire de la bulle fille à $\pm 10\%$. Si cette condition est respectée, on garde en mémoire dans une liste, les numéros des bulles mères et celui de la bulle fille (liste des bulles mères et filles potentielles). Si le critère n'est pas respecté, cela signifie que soit l'une des bulles mères soit la bulle fille n'est pas bonne. Le déséquilibre local du nombre de flèches met en évidence la présence d'un événement dans la zone mais les bulles liées à cet événement peuvent être des bulles voisines des bulles initialement trouvées. Il faut donc récupérer les numéros des bulles voisines de chacune des bulles mères et de la bulle fille. Ensuite, le programme compare de nouveau la somme des deux nouvelles bulles mères avec chacune des potentielles bulles filles. Tous les couples de bulles mères avec la bulle fille répondant au critère d'aire sont alors ajoutés à la liste des bulles mères et filles potentielles. Ce procédé permet de regrouper un grand nombre de combinaisons possibles quant à la disposition des bulles les unes par rapport aux autres. Néanmoins, afin de faire fonctionner correctement le programme, une hypothèse forte est nécessaire. Il faut qu'au moins une des deux bulles mères trouvées initialement soit correcte. Il s'avère que cette hypothèse est bien respectée puisque nous verrons que pratiquement tous les événements sont trouvés. Après cette étape, une bulle fille peut avoir plusieurs couples de bulles mères possibles. Un second critère, basé sur la position des bulles, permet de sélectionner le couple et la fille les plus vraisemblables.

Critère de nombre de pixels communs

Ce second critère est basé sur le nombre de pixels communs entre le couple de bulles mères et leur fille. Chacun des pixels de l'image est lié soit à une bulle soit à un film. Pour chaque couple ayant la même fille, il est donc possible de récupérer les coordonnées de tous les pixels des bulles mères et de les comparer à la liste des coordonnées des pixels de leur bulle fille. Le couple avec le plus grand nombre de pixels communs avec la fille est gardé en mémoire de même que la bulle fille du couple.

Après avoir pris en compte ce critère, nous arrivons quasiment à la liste finale des bulles mères et filles. Ces deux critères fonctionnent très bien et permettent de trouver quasiment tous les événements de coalescence. Cependant, certains événements ne sont pas détectés, par exemple, lorsque les deux bulles mères ont des aires très différentes (une très grosse bulle et une petite bulle) ou encore s'il y a un fort déplacement dans la mousse au niveau de la zone de coalescence. De plus, dans cette liste de bulles, il reste également de faux événements de coalescence, par exemple, dans le cas où un pixel manque entre deux bulles sur une image. Nous avons alors une première image avec deux bulles et sur l'image suivante ces deux bulles sont considérées comme une seule (à cause du pixel manquant dans le film). La somme des aires des bulles mères est alors égale à l'aire de la fille et le nombre de pixels communs est maximal. Ce cas est particulièrement problématique, un film peut disparaître sur une image puis réapparaître sur la suivante et ainsi de suite, multipliant grandement le nombre de faux événements. Il faut donc un autre critère pour éliminer ces fausses coalescences liées au choix initial du seuil lors de binarisation de l'image.

Critère de persistance dans le temps

Un dernier critère est ajouté afin d'essayer de prendre compte ce dernier cas. Il s'agit de charger une troisième image correspondant au temps $t + 2$.

La figure 5.8 montre deux images superposées de la même mousse prises au temps t (en gris) et au temps $t + 1$ (en noir). Les ronds rouges représentent le centre des bulles

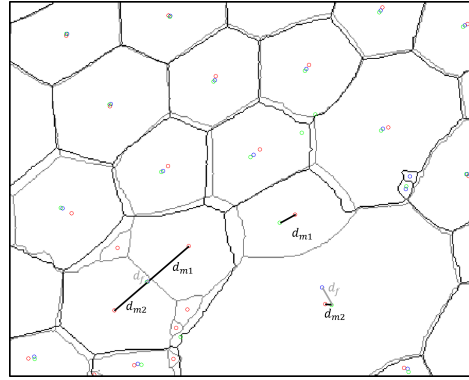


FIGURE 5.8: Deux images superposées de la même mousse prises au temps t (en gris) et au temps $t + 1$ (en noir). Les ronds rouges représentent le centre des bulles sur l'image prise au temps t , les cercles bleus sont le centre des bulles à $t + 1$ et les cercles verts le centre des bulles à $t + 2$. Les distances d_{m1} et d_{m2} sont les distances entre chacune des bulles mères et les coordonnées du centre des/de la bulle(s) sur l'image à $t + 2$. d_f est la distance entre le centre de la bulle fille (sur l'image $t + 1$) et le centre de la bulle à ces coordonnées sur l'image $t + 2$. La différence entre ces distances permet de savoir si sur l'image $t + 2$, les bulles sont dans une configuration similaire à l'image à t ou à $t + 1$. Si la configuration est la même que pour l'image à $t + 1$, on a un vrai évènement de coalescence (sur la gauche de l'image), sinon il s'agit d'un faux évènement (sur la droite de l'image).

sur l'image prise au temps t , les cercles bleus sont le centre des bulles à $t + 1$ et les cercles verts pour les bulles à $t + 2$. Les distances d_{m1} et d_{m2} sont les distances entre chacune des bulles mères et les coordonnées du centre des/de la bulle(s) sur l'image à $t + 2$. d_f est la distance entre le centre de la bulle fille (sur l'image $t + 1$) et le centre de la bulle à ces coordonnées sur l'image $t + 2$. La différence entre ces distances permet de savoir si sur l'image $t + 2$, les bulles sont dans une configuration similaire à l'image à t ou à $t + 1$. Si la configuration est la même que pour l'image à $t + 1$, on a un vrai évènement de coalescence (sur la gauche de l'image) sinon il s'agit d'un faux évènement (sur la droite de l'image). Les bulles changeant de numéro à chaque image, il est impossible de se référer à ce numéro plus d'une image après l'image considérée. Il faut donc relever les coordonnées des centres des bulles mères et celles des centres de la bulle fille respectivement sur l'image considérée et sur l'image à $t + 1$. Ensuite, il est possible d'aller récupérer le ou les numéros des bulles mères à ces positions sur la troisième image à $t + 2$. De même, en utilisant les coordonnées de la bulle fille, nous récupérons soit un numéro de bulle soit 0 si l'on est sur un film séparant deux bulles. Si pour chacune de ces positions, on obtient un numéro de bulle, deux options sont possibles, soit il s'agit d'un vrai évènement de coalescence, soit il y a un déplacement global de la mousse entre les images. Un critère de distance entre le centre des bulles sur les différentes images est appliqué. Après avoir relevé les coordonnées des centres des différentes bulles sur la troisième image, il est possible de calculer les trois distances suivantes :

- d_f : distance entre le centre de la bulle fille et centre de la bulle aux coordonnées de cette bulle sur la troisième image.
- d_{m1} : distance entre le centre de la première bulle mère et centre de la bulle aux coordonnées de cette bulle sur la troisième image.
- d_{m2} : distance entre le centre de la seconde bulle mère et centre de la bulle aux coordonnées de cette bulle sur la troisième image.

Si $d_f < d_{m1}$ et si $d_f < d_{m2}$, on considère que l'évènement de coalescence est vrai. En effet, si la distance d_f est plus petite que la distance avec les bulles mères, il est fort probable que ce soit la même bulle. La comparaison entre ces différentes distances constitue le critère de déplacement que nous utilisons pour vérifier qu'une bulle a réellement coalescé.

Après ce dernier critère, nous enlevons tous les couples mères et filles dont les deux mères sont au bord de l'image. Nous obtenons alors une liste définitive avec les couples de bulles mères et les bulles filles correspondantes. Cependant, certaines coalescences ne sont pas détectées et il reste également de faux évènements de coalescence. Le nombre de faux positifs étant non négligeable (de l'ordre de 50 %), il est nécessaire de les enlever à la main.

Discussion sur la limitation des différents critères

Les différents critères que nous venons de voir permettent de trouver la quasi-totalité des évènements de coalescence. Cependant, chacun d'eux a ses limitations. Le critère d'aire est celui qui pose le plus de problèmes. Cette limitation vient du fait qu'il est arbitraire. En effet, il est fixé à $\pm 10\%$ de différence entre la somme des aires des bulles mères et de l'aire de la bulle fille. Ceci est un bon compromis et fonctionne dans la plupart des cas. Cependant, si le rapport d'aire entre l'aire de la plus petite et de la plus grande des deux bulles mères est inférieur à 0.1, c'est à dire s'il y a une grande différence de taille entre les bulles mères, l'aire de la plus grande bulle peut suffire à valider le critère. Afin de remédier à ce problème, nous avons essayé de remplacer ce critère d'aire par un critère de convexité. Toutefois, ce critère, basé sur la différence de convexité entre les deux bulles mères et la fille, est encore plus restrictif qu'un critère d'aire. En effet, la différence de convexité est fortement liée au rapport d'aire. Idéalement il faudrait la faire varier graduellement avec le rapport d'aire ce qui est complexe et augmente le nombre de paramètres ajustables pour une faible amélioration du résultat final.

Les deux autres critères ne possédant pas de paramètre arbitraire, semblent plus robustes mais permettent uniquement d'éliminer des évènements de fausses coalescences. Le critère de pixels en commun est très efficace dans le cas où plusieurs couples potentiels de bulles mères ont une même fille en déterminant le couple le plus vraisemblable. Mais si aucun des couples initiaux n'est correct, aucun évènement de coalescence ne sera trouvé. Il en est de même s'il y a un fort déplacement global de la mousse. Pour le critère de position de la fille sur l'image suivante ($t + 2$), un déplacement global de la mousse est également un problème majeur. Néanmoins, ce type de déplacement arrive majoritairement en fin d'expérience lorsque qu'il y a plusieurs bulles impliquées dans un évènement de coalescence ou lorsque deux grosses bulles fusionnent, entraînant un déplacement de petites bulles à proximité. Ainsi, les évènements de coalescence en fin d'expérience sont mal détectés. De même, le programme ne détecte pas la coalescence de plus de deux bulles ce qui représente environ 5 – 10 % des coalescences. Ceci serait possible en changeant le premier critère de taille à condition de pouvoir au préalable savoir combien de bulles sont impliquées dans la coalescence mais cela nécessiterait une modification de l'étape de mauvais suivis.

Nous venons de voir le programme MATLAB nous permettant de suivre les bulles d'une image à l'autre et de trouver toutes les bulles impliquées dans un évènement de coalescence. Ce programme n'est pour le moment capable de détecter que deux bulles qui fusionnent, ce qui représente une majorité des cas.

5.4.6 Informations sauvegardées pour l'ensemble des bulles et les bulles impliquées dans la coalescence

À la fin de cette analyse, nous obtenons une série de fichiers contenant des informations moyennes sur la mousse aux différents temps mais également la liste de toutes les bulles impliquées dans un évènement de coalescence. Pour chacun de ces évènements, les informations que nous gardons sont les aires des bulles ayant fusionné, leurs aires convexes, leurs périmètres, leurs nombres de voisins, le nombre moyen de côtés de leurs voisins, μ_2 [67] et la longueur du côté qui casse. De manière générale, pour toutes les bulles du système, nous récupérons leurs aires, périmètres, nombres de voisins, leurs convexités, les coordonnées de leur centre et la localisation d'une bulle au bord de l'image ou non. De plus, pour chaque valeur de longueur ou de nombre de côtés présents sur l'image considérée, nous avons réalisé un histogramme de ces paramètres afin d'obtenir le nombre de répétitions d'une même valeur. La probabilité est donc le nombre de répétitions sur le nombre total de valeurs. Nous sauvegardons également un film mettant en évidence les évènements de coalescence en coloriant en rouge et bleu les bulles mères (qui coalescent) et en violet la bulle fille (produit de la coalescence) (Figure 5.9).

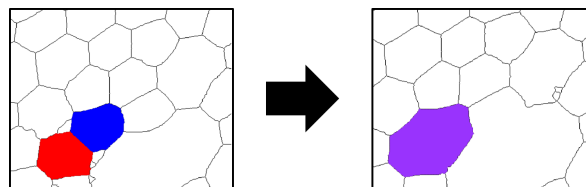


FIGURE 5.9: *Un vrai évènement de coalescence correspondant au suivi de bulles de la figure 5.8 : les deux bulles mères, en bleu et rouge, fusionnent pour donner une bulle fille en violet*

5.4.7 Faux évènements de coalescence

Ce film permet de mettre en évidence les faux évènements de coalescence tels que ceux représentés sur la figure 5.10. L'origine des fausses coalescences peut être multiple. Elle peut être due à un pixel noir manquant dans le film séparant deux bulles comme représenté sur la figure 5.10a. Ce faux évènement, simple à identifier à l'œil a posteriori, est compliqué à éviter car, pour le programme, les caractéristiques de cet évènement sont les mêmes que dans le cas d'une vraie coalescence. Un autre cas est représenté sur la figure 5.10b, la bulle fille (violette) sélectionnée ne correspond pas aux bulles mères en rouge et bleue bien que le nombre de pixels communs pour les bulles mères et fille soit suffisant pour respecter le critère de recouvrement. Cependant, en regardant la vidéo, on voit clairement qu'il ne s'agit pas des bonnes bulles. Lorsque la prise d'image est rapide, il peut arriver que la coalescence soit découpée sur trois images, comme sur la figure 5.10c. Sur cette figure, il semble que deux bulles bleues coalescent avec une seule bulle rouge, ce qui est impossible car l'un des premiers principes de l'identification de coalescence est de toujours avoir une paire de bulles qui ne donne qu'une seule bulle. Si on regarde plus attentivement cette image, on peut voir qu'il y a une seconde minuscule bulle rouge. On a donc une vraie coalescence qui est correctement détectée et une fausse coalescence entre une fausse bulle (minuscule rouge) et la seconde bulle bleue. Le programme détecte cet évènement car le critère d'aire (somme des bulles mères devant être plus ou moins 10 % de l'aire de la bulle fille) est respecté. En effet, dans le cas des bulles mères de tailles très différentes, le critère d'aire n'est pas toujours

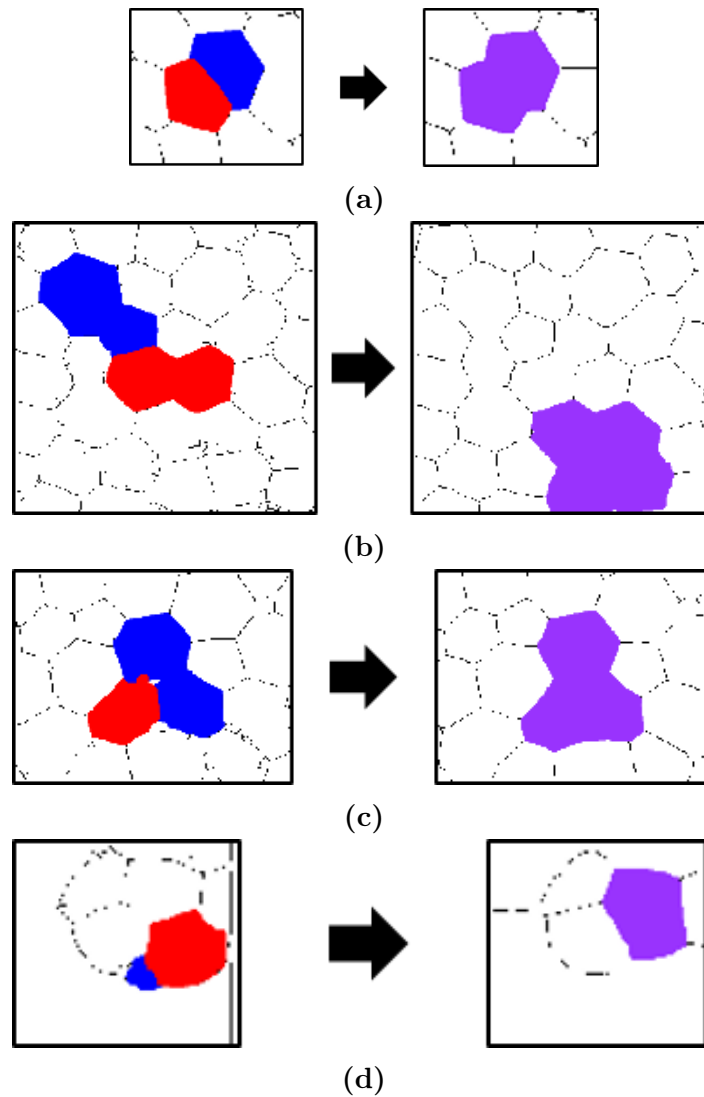


FIGURE 5.10: *Faux évènements de coalescence : a) le film entre les deux bulles semble avoir disparu sur la seconde image à cause d'un problème de seuillage lors du prétraitement b) le nombre de pixels communs entre les bulles mères (rouges et bleues) et la bulle fille n'est pas suffisant. Elles ne sont pas compatibles. c) Il semble que deux bulles bleues et une rouge donnent une seule bulle violette. Cependant, le programme détecte deux coalescences. Une vraie correspond à la fusion entre la bulle rouge et sa voisine bleue (à droite). Une fausse coalescence est visible entre la seconde bulle bleue et une minuscule bulle rouge (entre la bulle rouge et la bulle bleue au-dessus) d) Entre les deux images, il y a bien eu une coalescence. Cependant, l'une des bulles mères n'est pas la bonne. La bulle bleue disparaît bien mais la somme des bulles bleues et rouges ne donne pas la bulle violette. Dans ce cas, les deux bulles ayant fusionné sont probablement la bulle rouge et sa voisine du dessus. La bulle bleue a probablement fusionné avec sa voisine du dessous.*

assez restrictif pour discriminer un vrai évènement de coalescence d'un faux. Un dernier exemple est montré sur la figure 5.10d. Dans ce cas, les deux bulles mères indiquées disparaissent bien mais la bulle fille détectée n'est pas la bonne. En réalité, ces deux bulles fusionnent avec la bulle juste en-dessous. Le programme n'étant pas capable de sommer plus de deux bulles mères, il cherche à trouver la bulle fille qui sera le plus en accord avec le critère d'aire et le critère de pixel commun. Toutes ces fausses coalescences sont retirées à la main avant l'analyse des résultats. Leur nombre est très

variable en fonction de la qualité initiale des images. Sur certaines expériences, aucun évènement n'est à enlever alors que sur d'autres expériences, tous les évènements sont à supprimer.

5.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons défini le paramètre de convexité, C_v permettant de différencier les mousses qui évoluent par avalanches de coalescences des mousses qui évoluent principalement par mûrissement. L'étude de l'évolution de la convexité au cours du temps permet de mettre en évidence deux régimes de coalescence. Un premier régime correspond à celui dans lequel les bulles évoluent principalement par mûrissement mais également par des évènements isolés de coalescence. Ces évènements semblent arriver de manière aléatoire et permettent à certaines bulles de grossir rapidement. Le second régime commence lorsqu'une ou plusieurs bulles sont suffisamment volumineuses. Les avalanches de coalescence sont alors localisées au niveau de ces bulles. Le passage entre les deux régimes est marqué par une rupture brutale de pente dans la courbe de C_v en fonction du temps. Le temps durant lequel cette rupture s'effectue est appelé temps de coalescence, t_{coal} .

Chapitre 6

Mûrissement : mesure de la perméabilité

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, les mousses sont déstabilisées par plusieurs processus. Le premier que nous allons étudier, dans le cas des mousses 2D, est le mûrissement. Il est dû à la différence de pression entre des bulles voisines et entraîne la disparition des bulles en surpression au profit des bulles en sous-pression. Dans les mousses 2D parfaitement sèches, le mûrissement est un mécanisme bien compris et est régi par la loi de von Neumann. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons plus particulièrement à la perméabilité des films et nous rappelons les prédictions théoriques et les méthodes expérimentales permettant sa mesure. Enfin, nous examinerons l'influence de l'humidité des mousses sur cette perméabilité.

6.1 Mûrissement de mousses 2D

6.1.1 Loi de von Neumann

Le mûrissement des mousses 2D est décrit par la loi de von Neumann. Celle-ci énonce que l'évolution de l'aire d'une bulle i ne dépend que du nombre de ses voisines. Cette loi a été démontrée en 1952 par J. von Neumann [74].

Pour démontrer cette loi, il faut revenir à la loi de Laplace ce qui entraîne l'existence d'une différence de pression entre les bulles qui prédit un flux de gaz entre les bulles i et j à travers le film séparant les bulles. On peut donc utiliser la première loi de Fick pour décrire le gradient de concentration en gaz dans le film : [7, 56, 78]

$$\frac{\delta N}{\delta t} = -\kappa RT S_{ij} \Delta C_{ij} \quad (6.1)$$

avec N , le nombre de moles de gaz, S_{ij} , la surface d'échange de gaz entre les bulles i et j , κ la perméabilité du film et ΔC_{ij} la différence de concentration en gaz [56]. L'équation 6.1 est valable pour un film, il faut donc sommer sur l'ensemble des n voisines de la bulle i considérée. Le gaz est considéré comme incompressible ce qui permet d'utiliser la loi des gaz parfaits, ce qui donne : $\Delta C_{ij} = \frac{\Delta P}{RT}$

Ainsi, en combinant l'équation 6.1 et la loi des gaz parfaits pour tous les films séparant la bulle considérée de ces n voisines, on obtient l'équation 6.2¹

1. Attention, dans la référence [64], la notation de la perméabilité est différente ($RT\kappa$ de [7] = κ de [64])

$$\frac{\delta V}{\delta t} = \frac{\delta e A_i}{\delta t} = -\frac{RT\kappa}{P_i} \sum_{j=1}^n l_{ij} e_F (P_i - P_j) \quad (6.2)$$

avec P_i (P_j) la pression des bulles i (et j), l_{ij} , la longueur séparant les deux bulles i et j , e_F la hauteur du film et e l'épaisseur entre les deux plaques.

Loi de Laplace à 2D Dans le cas de mousses 2D, la loi de Laplace est modifiée. Il ne s'agit plus d'une tension de surface mais de ligne car les interfaces sont des lignes de rayon de courbure constante. La tension de ligne $\lambda \approx e\gamma$ s'exprime en Newtons. La différence de pression entre deux bulles i et j est donnée par :

$$P_i - P_j = \frac{2\lambda}{eR_{ij}}. \quad (6.3)$$

En combinant l'équation 6.2, la loi de Laplace à 2D (eq. 6.3) et les lois de Plateau (section 2.5), on obtient la forme finale de la loi de von Neumann [64] :

$$\frac{\delta A_i}{\delta t} = -\frac{2\pi e_F \lambda R T \kappa}{3e P_i} (6 - n) = -\frac{2\pi e_F \lambda V_m \kappa}{3e} (6 - n) = -D_{\text{eff}} (6 - n) \quad (6.4)$$

avec R_{ij} le rayon de courbure du film séparant les bulles i et j soit, dans le cas bidimensionnel, un arc de cercle de courbure constante et d'épaisseur e entre les plaques confinant la mousse.

Dans l'équation 6.4, on peut voir que l'évolution de la taille des bulles au cours du temps dépend uniquement du nombre de bulles voisines de la bulle considérée. Ainsi les bulles avec un nombre de voisines $n < 6$ sont en surpression et rétrécissent en donnant leur excès de gaz aux bulles avec $n > 6$ qui sont en sous-pression. Si une bulle a 6 côtés, elle n'évolue pas. Le coefficient D_{eff} est un coefficient de diffusion effectif dépendant de la taille verticale des films e_F mais également du tensio-actif et du gaz utilisés via la perméabilité des films κ . Cette loi fait l'hypothèse, qui sera rediscutée par la suite, que le gaz ne passe qu'à travers les films et que les bords de Plateau bloquent complètement son passage. C'est ce qui explique le facteur $\frac{e_F}{e}$ dans l'expression de D_{eff}

6.1.2 Modification apportée par Schimming à la loi de von Neumann pour les mousses humides

En 2017, une étude théorique et numérique proposée par Schimming et al [65] propose une nouvelle formulation de la loi de von Neumann afin de décrire complètement la diffusion non seulement à travers le film séparant les bulles mais également à travers les bords de Plateau, les pseudo-bords de Plateau et les vertex. Sur le schéma de la figure 6.1, on peut voir un film séparant deux bulles 1 et 2, l'épaisseur entre les plaques e , la largeur du film séparant les bulles l et la largeur des pseudo-bords de Plateau $e(y)$ qui varie entre $2r_{\text{PS}}$ et l . Les auteurs calculent séparément la contribution de chacun de ces éléments et obtiennent une équation permettant de décrire une mousse humide, contrairement à l'équation de von Neumann classique qui n'est valable que pour une

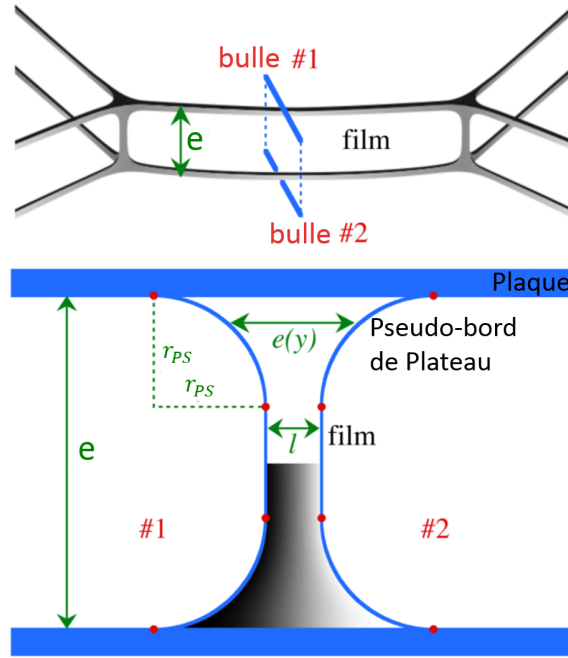


FIGURE 6.1: Schéma d'un film séparant deux bulles confinées entre deux plaques, espacées par une épaisseur e : a) en vue de côté et b) en vue de profil, montrant l'épaisseur du film l , le rayon des pseudo-bords de Plateau r_{PS} . Extrait de la référence [65]

mousse sèche :

$$\frac{dV}{dt} = K_0 e \underbrace{\left(1 - \frac{2r_{PS}}{e} + \frac{2r_{PS}l}{ee_2}\right)}_1 \left\{ \underbrace{(n-6)}_{2.1 \sim -1} + \frac{6Cnr_{PS}}{\sqrt{3\pi A}} \underbrace{\left[1 - \frac{\left(1 - \frac{2r_{PS}}{e}\right) \frac{l}{e_3} + \frac{2r_{PS}l}{ee_4}}{1 - \frac{2r_{PS}}{e} + \frac{2r_{PS}l}{ee_2}}\right]}_{2.2 \sim 0.2-0.3} \right\} \quad (6.5)$$

où $K_0 = \kappa\gamma$ et

$$C = \pm \sqrt{\frac{n}{4\pi} \left[\cot\left(\frac{\pi}{n}\right) - \sqrt{3} \right] - \frac{1}{6}(n-6)} \text{ avec } C > 0 \text{ pour } n < 6 \quad (6.6)$$

Les modifications apportées par Schimming à l'équation de von Neumann peuvent se décomposer en deux parties, notées 1 et 2 sur l'équation 6.5. Le facteur 1 est composé de deux sous-parties permettant de décrire la diffusion à travers le film séparant les bulles (terme 1.1 qui était déjà présent dans le coefficient de diffusion effectif, D_{eff} , de l'équation 6.12 et à travers le pseudo-bord de Plateau (terme 1.2). Une rapide estimation de ces coefficients montre que le terme 1.2 est négligeable devant le terme 1.1. En effet, pour une aire de bulle ~ 3.5 mm et $r_{PS} \approx 0.35$ mm, en considérant $l \approx 50$ nm, on peut calculer les termes 1.1 qui vaut environ $0.6 - 0.7$ et 1.2 qui vaut environ 6×10^{-3} . Nous nous intéressons maintenant au deuxième terme (2), qui permet de tenir compte de la circularité des bulles lorsque la mousse est humide. Le terme 2.1 présent dans la forme classique de la loi de von Neumann est ici modifié par le terme 2.2 qui permet de prendre en compte l'apparition des bords de Plateau (d'épaisseur e_3)

et des vertex (d'épaisseur e_4). Le terme 2.3 contient e_4 qui n'est pas connu mais qui est proportionnel à $\sqrt{r_{PS}l}$ or $\frac{2r_{PS}l}{r_{PS}l} \approx 0.004$. Nous n'utiliserons donc pas ce terme par la suite car il est probablement négligeable. Si on écarte le terme 2.3, le terme 2.2 est de l'ordre de 0.2 – 0.3. Il est donc non négligeable et montre une déviation de 20 – 30 % de la valeur de la pente par rapport à la pente proche de 1 trouvée avec la loi classique de von Neumann. Ce terme peut être négligé lorsqu'il est inférieur à 10 % soit pour $r_{PS} \approx 0.13$ mm et $\phi_s \approx 23$ % pour $A_b \approx 3.5$ mm².

6.2 Perméabilité des films : Modèle du sandwich

Dans cette section, nous allons nous intéresser au modèle du sandwich pour la perméabilité. Le modèle du sandwich permet de tenir compte des deux monocouches de tensio-actifs séparées par une épaisseur de liquide tel que représenté sur la figure 6.2.

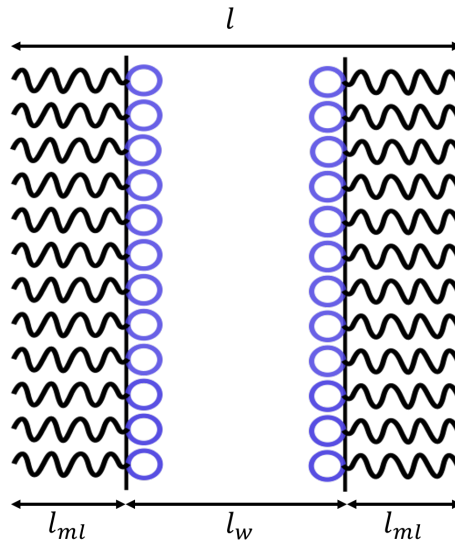


FIGURE 6.2: schéma représentant un film de savon dans le cas du modèle du sandwich. Les deux monocouches d'épaisseur l_{ml} , sont séparées par une phase liquide d'épaisseur l_w .

La perméabilité, κ peut alors être calculée grâce à l'équation

$$\kappa = \frac{DH_e}{l_w + \frac{2D}{\kappa_{ml}}} \quad (6.7)$$

où D est le coefficient de diffusion du gaz dans le liquide, He le coefficient de solubilité de Henry, κ_{ml} la perméabilité de la monocouche de tensioactif et l_w , l'épaisseur de liquide. On peut ainsi voir que la perméabilité dépend de l'épaisseur de la couche de liquide mais également de la solubilité et de la diffusion du gaz à travers la monocouche. Il existe donc deux limites en fonction de l'épaisseur du film :

- $l_w \gg \frac{2D}{\kappa_{ml}}$, la perméabilité est gouvernée par le film liquide $\kappa = \frac{DH_e}{l_w}$.
- $l_w \ll \frac{2D}{\kappa_{ml}}$, le film est fin, la perméabilité est gouvernée par les monocouches de tensio-actif : $\kappa = \frac{He\kappa_{ml}}{2}$.

Ce modèle a été utilisé par Princen dans la référence [56]. Les valeurs calculées par cette théorie sont en bon accord avec les données expérimentales.

6.3 Méthodes de mesure de la perméabilité

Les différentes expériences présentées dans ce chapitre sont réalisées sur une seule bulle [56, 58], un ou plusieurs films parallèles [57, 58] ou une mousse quasi-2D en régime transitoire [64].

6.3.1 Méthode de la bulle diminuante

Cette méthode développée par Brown en 1953 [6] est très couramment utilisée pour mesurer la perméabilité des films [56], [47] [58]. Dans cette expérience, une bulle d'une solution de tensioactifs est formée à la surface du liquide dans une enceinte afin de contrôler la pression, l'humidité et la concentration de gaz (Figure 6.3). Des images prises à intervalles réguliers permettent de voir la bulle perdre du volume. La perméabilité κ est alors donnée par :

$$\kappa = \frac{d(P_0 - P_l)\alpha\beta_0}{dt 4\rho g} \quad (6.8)$$

avec $\alpha = \frac{h_{\text{cap}}}{r}$ et $\beta_0 = \frac{\rho g}{\gamma} R^2$ où R est le rayon d'une bulle sphérique avec les notations de la figure 6.3. La perméabilité est calculée à partir de la mesure du diamètre de la bulle à la surface $2x_c$ et de h_{cap} .

Les auteurs [56] utilisent cette méthode pour calculer la perméabilité de films de CTAB pour différents gaz (air, azote, oxygène, argon, néon, hélium et dioxyde de carbone) montrant ainsi que la perméabilité dépend du gaz utilisé. Ils montrent également que κ augmente avec la température et que la concentration de CTAB joue un rôle sur la perméabilité des films. Par la suite, cette expérience a été modifiée par Nedyalkov

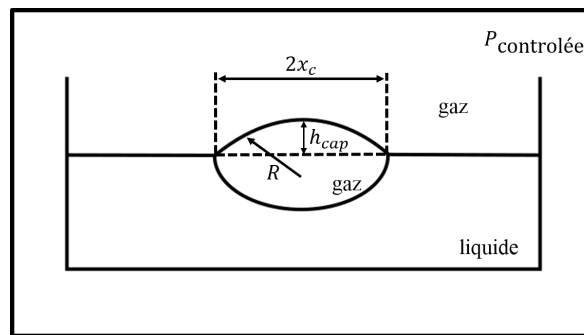


FIGURE 6.3: Méthode la bulle diminuante. Une bulle est créée à l'interface liquide/gaz dans une enceinte permettant de contrôler la pression et la pression de vapeur saturante. L'étude de l'évolution du volume de la bulle permet de calculer la perméabilité.

et al [51] et utilisée par Ramanathan et al [58] afin de mesurer la perméabilité de films noirs communs et de films noirs de Newton pour des films de SDS (Sodium dodecyl sulfate) pour différents gaz. Les modifications concernent la prise d'images qui se fait par le dessus et le dessous à l'aide de deux microscopes ce qui permet la perméabilité est alors ce qui permet d'atteindre une précision de ± 0.002 cm/s.

$$\kappa = \frac{P_0}{2\gamma}(R_0^4 - R_t^4) + \frac{8}{9}(R_0^3 - R_t^3) \int_0^t r^2 dt \quad (6.9)$$

Ces études confirment donc l'influence des gaz pour différents tensioactifs notamment le SDS et le CTAB.

6.3.2 Appareil de mesure de la perméabilité des films

Une autre méthode développée par Krustev *et al.* permet de mesurer directement la perméabilité d'un film. Pour cela, le film est généré sur un support au milieu d'une cellule. De part et d'autre de ce film se trouve une chambre dans laquelle les pressions sont contrôlées de manière indépendante, permettant d'appliquer une différence de pression sur le film [41]. Une caméra prend des images du film au cours du temps ce qui permet d'observer la diminution du film au fur et à mesure que le gaz diffuse d'un côté à l'autre du film. Cette observation donne la perméabilité du film.

6.3.3 Diffusion au travers de films dans un cylindre

En 2002, Nguyen [57] propose une nouvelle expérience pour mesurer la perméabilité d'un ou plusieurs films. Dans cette expérience, chaque film est créé à l'extrémité d'un tube puis est déplacé dans le tube jusqu'à la position désirée grâce à un flux de gaz. Une fois les n films correctement positionnés, l'une des extrémités est connectée à l'aide d'un tube perpendiculaire à une source d'argon ou d'ammoniac et il en est de même pour l'autre extrémité qui est connectée d'une part à une source d'azote et d'autre part au spectromètre de masse (Figure 6.4). L'expérience débute lorsque le/les film(s)

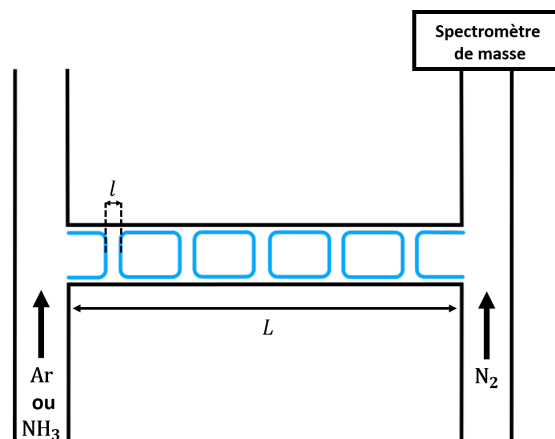


FIGURE 6.4: Schéma de l'expérience du/des film(s) verticaux. Les films de savons d'épaisseur l , sont créés dans le tube horizontale de longueur L , un flux du gaz étudié est injecté dans le tube perpendiculaire à gauche. Dans le tube perpendiculaire de droite, un flux d'azote est injecté. Le spectromètre de masse permet de mesurer la fraction molaire de gaz étudié dans le flux total de gaz.

ont suffisamment drainé pour avoir une épaisseur constante. Le spectromètre de masse permet de mesurer la quantité d'argon ou d'ammoniac dans le flux total. La constante de diffusion, D , peut être calculée par l'équation :

$$N(L, t) = AD \frac{\delta C(x, t)}{\delta x} \Big|_{x=L} = Q x_w(t) \quad (6.10)$$

avec $N(L, t)$ le flux de gaz, L est la longueur du tube contenant le/les film(s), A l'aire du film, $C(x, t)$ la concentration à la position x au temps t , x_w , mesurée par le spectromètre de masse, et x_w la fraction molaire du gaz diffusé dans le flux total de N_2 . En utilisant l'équation 6.10, on peut donc déduire la perméabilité du ou des film(s) sachant que $\kappa = \frac{D\epsilon}{L}$.

La perméabilité trouvée avec cette méthode, pour une solution de SDS et NaCl dans de l'argon, est similaire à celle trouvée avec la méthode de la bulle diminuante.

6.3.4 Méthode du temps catastrophique

En 2015, Saulnier *et al.* [64] proposent une nouvelle méthode pour mesurer la perméabilité des films directement dans une mousse 2D en utilisant le temps au terme duquel toutes les bulles à cinq côtés disparaissent. En effet, en utilisant une mousse initialement monodisperse, les bulles à cinq voisines vont toutes disparaître en même temps. Le nombre de bulles chute brutalement à cet instant qui est appelé temps catastrophique, t_{cat} et est représenté sur la figure 6.5a.

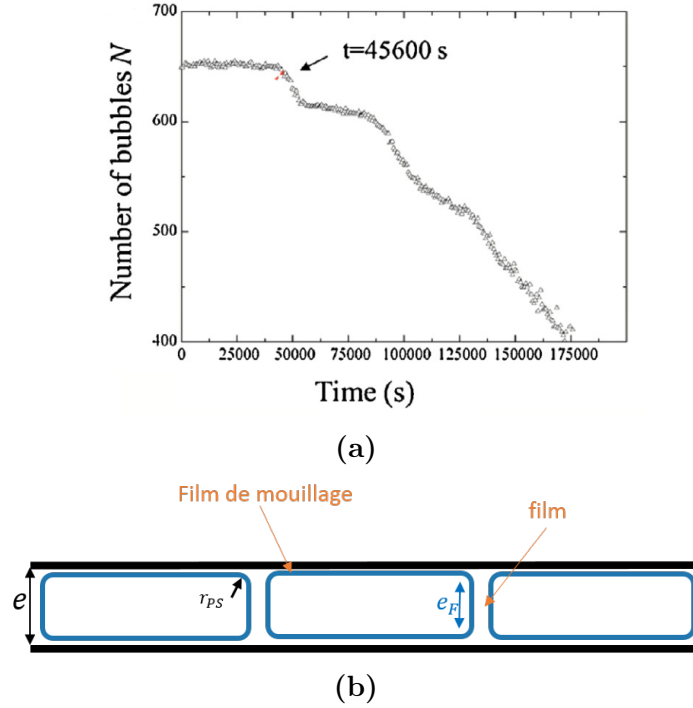


FIGURE 6.5: Méthode du temps catastrophique : a) le nombre de bulles normalisées en fonction du temps, extrait de [64]. b) schéma d'une mousse 2D confinée entre deux plaques séparées d'une distance e . La hauteur du film e_F est calculée à partir de r_{PS} [26]

En intégrant la loi de von Neumann (6.2) pour les bulles à cinq côtés, on obtient :

$$D_{\text{eff}} = \frac{t_{\text{cat}}}{\langle A_5, t=0 \rangle} \quad (6.11)$$

avec $\langle A_5, t=0 \rangle$, l'aire moyenne des bulles à cinq voisines à $t = 0$ et D_{eff} le coefficient effectif de diffusion. La perméabilité des films est calculée avec l'équation suivante :

$$RT\kappa = \frac{3D_{\text{eff}}eP_i}{2\pi e_F\gamma} \quad (6.12)$$

2

La fraction liquide est prise en compte dans la perméabilité par l'intermédiaire de la hauteur des films e_F qui est donnée par (Figure 6.5b)

$$e_F = e - 2r_{PS} \quad (6.13)$$

2. dans cette équation κ est défini par l'équation 6.1. Cette définition est différente de celle utilisée par Saulnier *et al.* [64] du facteur RT .

Les auteurs mesurent la perméabilité des films de mousse de SDS à différents gaz (Ar, N₂, air). Les valeurs de perméabilité trouvées avec cette méthode sont en accord avec celles trouvées par Ramanathan et al [58].

Nous venons d'exposer différentes méthodes permettant de mesurer la perméabilité d'un film de savon en fonction du gaz et de la composition chimique du film. Les perméabilités de films de SDS à différents gaz mesurées avec ces expériences sont en bon accord et montrent l'influence de la taille et de la solubilité des gaz utilisés.

Les trois méthodes de mesure présentées (bulles diminuante, film verticaux et mousse 2D) tiennent uniquement compte de la diffusion du gaz à travers le film. Les études analytiques et numériques réalisées par Schimming permettent d'aller plus loin et de considérer des mousses humides avec une diffusion à travers les bords de Plateau non négligeable.

6.4 Mesure de la perméabilité des films

Nous allons mesurer la perméabilité de films dans des mousses réalisées avec une solution de TTAB de concentration 5 g/L et de l'air et ce pour différentes tailles de pseudo-bords de Plateau comprises entre 0.29 mm et 0.40 mm grâce à la méthode du temps catastrophique en utilisant l'équation de von Neumann puis l'amélioration réalisée par Schimming.

A partir du calcul de von Neumann

Nous avons vu dans la section précédente (6.3.4) qu'il est nécessaire de mesurer le temps catastrophique et la hauteur des films e_F séparant les bulles par le nombre de bulles initial afin de calculer la perméabilité des films. Pour mesurer t_{cat} , il faut

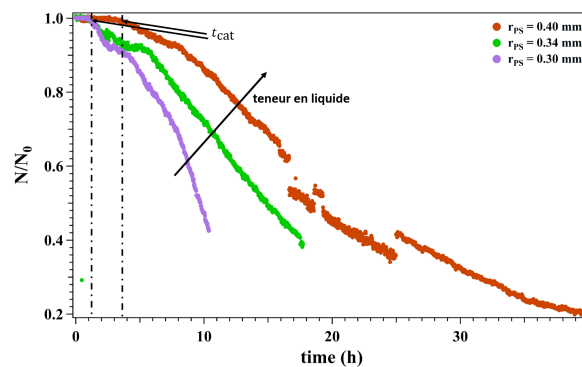


FIGURE 6.6: Le nombre de bulles normalisé par le nombre de bulles sur la première image en fonction du temps pour différentes valeurs de r_{PS} : 0.40 mm, 0.35 mm et 0.30 mm

tracer le nombre de bulles normalisé en fonction du temps (Figure 6.6) afin de trouver le temps auquel se produit la première rupture de pente. En effet, la mousse étant initialement monodisperse, toutes les bulles à cinq côtés vont disparaître en même temps, provoquant une brusque diminution du nombre de bulles. Pour mesurer le temps catastrophique, nous prenons le temps auquel le nombre de bulles est inférieur à 95 % sans remonter par la suite. Ainsi pour les courbes présentées sur la figure 6.6, $t_{cat} = 3.60$ h, $t_{cat} = 1.25$ h respectivement et $t_{cat} = 1.25$ h pour $r_{PS} = 0.40$ mm, $r_{PS} = 0.34$ mm et $r_{PS} = 0.30$ mm. Nous pouvons donc remarquer que le temps catastrophique croît avec la taille des pseudo-bords de Plateau et donc avec l'humidité.

Après avoir calculé la hauteur des films grâce à l'équation 6.13, il est possible de calculer la perméabilité en utilisant l'équation 6.12. Les résultats de la perméabilité des films de TTAB à l'air sont donnés par les cercles verts sur la figure 6.7. Sur cette figure est représentée la perméabilité en fonction de la taille des pseudo-bords de Plateau. Nous pouvons remarquer que la taille des pseudo-bords de Plateau a une faible influence sur la perméabilité. En effet, pour $r_{PS} \in [0.14, 0.4]$, la perméabilité varie entre 0.6 ± 0.2 mm/s et 1.5 ± 0.4 mm/s. Dans tous les cas, la valeur est plus faible que la valeur de la perméabilité des films de TTAB qui vaut 1.9 mm/s obtenues par des méthodes plus classique [5]. Cette dépendance de κ avec r_{PS} de même que la différence par rapport à la valeur de la littérature peut-être due au fait que les mousses sont très humides et que la perméabilité des bords de Plateau et des pseudo-bords de Plateau est non négligeable. Nous allons donc comparer nos données au modèle proposé par Schimming *et al.*

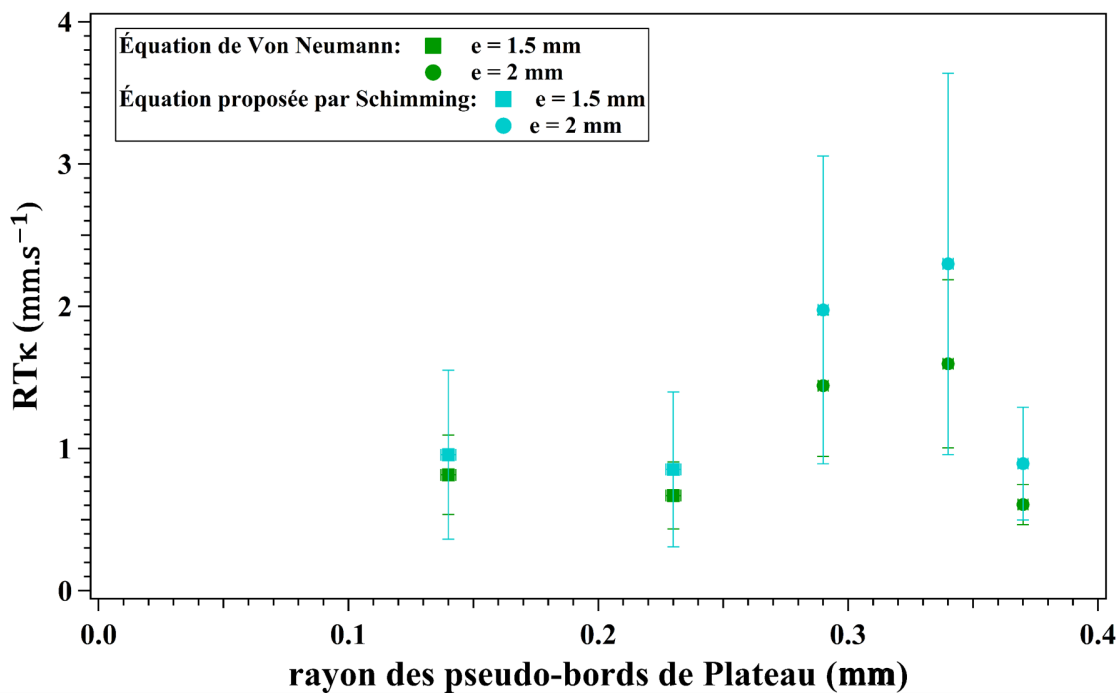


FIGURE 6.7: Perméabilité des films de mousses de TTAB en fonction de la taille des pseudo-bords de Plateau. Les points bleus sont des données expérimentales calculées à l'aide de l'équation de von Neumann et les cercles verts sont les calculs de perméabilités obtenus grâce à l'équation de par Schimming *et al.* [65].

A partir du calcul de Schimming

Dans l'équation 6.4, il est supposé que le flux de gaz se produit uniquement à travers le film et qu'il n'y a pas de diffusion à travers les pseudo-bords de Plateau. Cependant, plus la fraction liquide de la mousse augmente, plus les films sont petits et moins la diffusion du gaz par les pseudo-bords de Plateau, les bords de Plateau et les vertex est négligeable. Afin de tenir compte de ces paramètres dans le calcul de la perméabilité, nous avons analysé les mêmes expériences que dans le paragraphe 6.4 en utilisant l'équation 6.5 proposée par Schimming.

Sachant que $\frac{dV}{dt} = e \frac{dA}{dt}$, il est possible de calculer une valeur de K_0 à partir de l'équation 6.5. Or, $K_0 \equiv \kappa \gamma$, nous pouvons donc obtenir une valeur de κ . Afin de

comparer avec les données du paragraphe 6.4, il faut multiplier κ par RT . On obtient les points bleus sur la figure 6.7. De la même manière que pour la méthode précédente, les carrés bleus sont obtenus pour $e = 1.5$ mm et les cercles bleus pour $e = 2$ mm. On peut remarquer qu'il existe toujours une dépendance avec la taille des pseudo-bords de Plateau et donc la hauteur de film. Par ailleurs, les valeurs calculées avec l'amélioration de Schimming, sont plus élevées que celles calculées avec von Neumann. Il y a ainsi un écart entre ces deux valeurs compris entre 15 % et 30 % en fonction des expériences. Cette différence peut être attribuée à la présence du terme 2.2 de l'équation 6.5 permettant de tenir compte du rôle des pseudo-bords de Plateau et changeant la pente de la décroissance. Ces nouvelles valeurs sont en accord avec la valeur de la perméabilité des films de TTAB obtenue par d'autres méthodes qui est de 1.9 mm/s [5].

À partir des valeurs de r_{PS} des différentes expériences, il est possible de calculer la pression capillaire ($96 < P_c < 254$ Pa) et d'utiliser ces pressions pour trouver l'épaisseur des films l . Pour cela, nous pouvons utiliser par exemple la courbe de pression de disjonction réalisée par Bergeron [1], on obtient ainsi $40 < l < 45$ nm. En 2005, Stubenrauch *et al.*[69] ont réalisé des expériences mesurant la pression de disjonction en fonction de l'épaisseur de films de TTAB, trouvant des épaisseurs de film similaire pour les mêmes pressions capillaires. La valeur théorique de la perméabilité peut alors être calculée en utilisant $\kappa = \frac{DH_e}{l}$. Pour le TTAB, avec $40 < l < 45$ nm, $D = 2.6 \cdot 10^{-9}$ m²/s et $H_e = 0.013$ [5] d'où $0.74 < \kappa < 0.84$ mm/s. Il y a donc un facteur 2 entre la valeur théorique et les valeurs expérimentale qui peut être dû à une erreur sur l'épaisseur du film ou à la présence d'autres gaz en plus du N₂ dans l'air.

Si nous nous intéressons maintenant aux barres d'erreur sur les deux méthodes, nous pouvons voir que l'erreur sur les rayons des pseudo-bords de Plateau est plus faible que la taille des points alors que l'erreur sur la perméabilité est grande notamment sur celle calculée avec l'amélioration de Schimming. Les deux points obtenus pour $r_{PS} = 0.30$ mm et $r_{PS} = 0.30$ mm ont des barres d'erreur très grande parce que l'erreur sur le temps catastrophique est important. En effet, le $t_{cat} \sim 1.13 \pm 0.5$ h. Dans les deux calculs la plus grande source d'erreur vient du calcul du coefficient de diffusion effectif notamment à cause de la difficulté à mesurer précisément le temps catastrophique. Cette erreur étant présente pour les deux méthodes elle n'explique pas l'erreur plus importante sur la mesure de κ avec l'amélioration de Schimming. Celle-ci vient de l'addition erreurs sur les différents termes de l'équation 6.5. Finalement, en tenant compte de barres d'erreur sur les mesures, les valeurs trouvées avec l'équation de von Neumann sont dans l'erreur de l'amélioration de Schimming *et al.*.

Nous nous sommes donc intéressés à la valeur du coefficient de diffusion effectif. Nous avons donc calculé les valeurs de D_{eff} à partir de la valeur obtenue par une méthode classique [5] de la perméabilité de film de TTAB en utilisant l'équation de von Neumann et l'équation 6.5 et nous avons comparé ces valeurs à celles mesurées (Figure 6.8). On peut ainsi remarquer que lorsque la hauteur des films est petite ($e_F < 1.3$ mm), le coefficient de diffusion effectif est en bon accord avec celui de Schimming. Lorsque que la hauteur des films augmente ($e_F > 1.3$ mm), la valeur mesurée de D_{eff} est dans les barres d'erreur de la valeur calculée avec l'équation de von Neumann. Cela confirme que la loi de von Neumann est valable concernant les mousses suffisamment sèches pour qu'il y ait des films de hauteur assez grande pour négliger l'influence des bords de Plateau. À l'inverse, lorsque les mousses deviennent plus humides et que les pseudo-bords de Plateau s'épaississent l'utilisation de l'amélioration par Schimming de l'équation von Neumann s'applique et donne de bons résultats en accord avec la théorie.

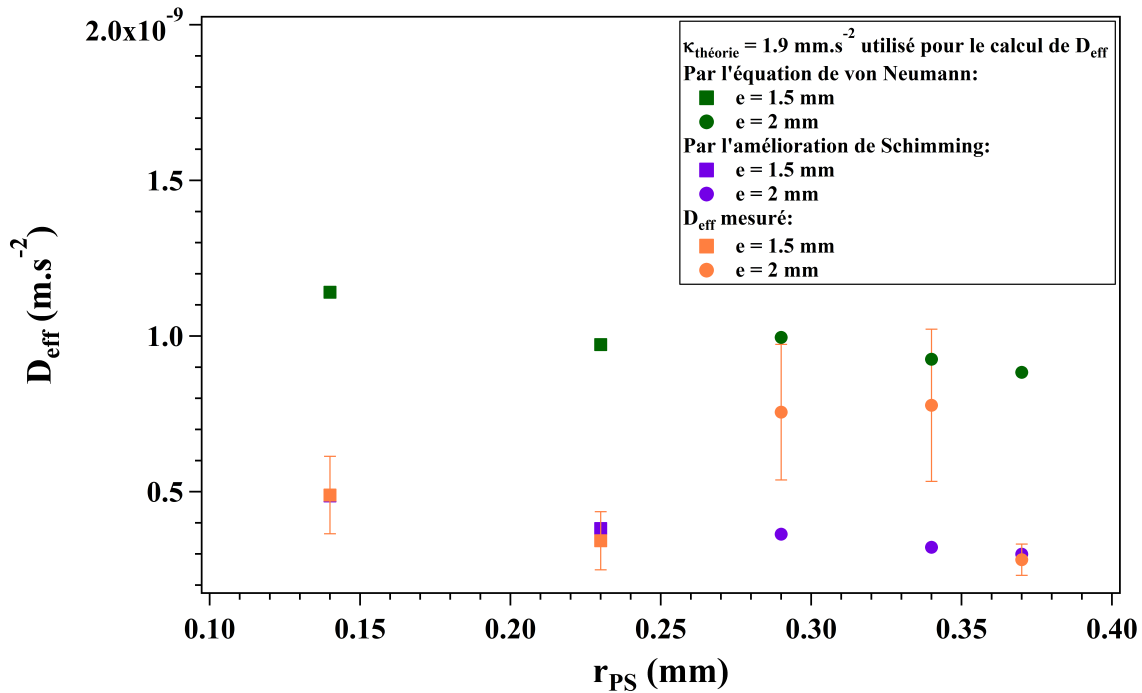


FIGURE 6.8: Coefficient de diffusion effectif en fonction du rayon des pseudo-bords de Plateau. Les données représentées par des carrés sont pour un espace entre les plaque de 1.5 mm et celles représentées par des cercles sont pour un écartement de 2 mm. De plus, les données en vert, bleu et orange sont respectivement calculées à l'aide de l'équation de Von Neumann , de l'amélioration de Schimming et les valeurs de D_{eff} mesurées.

6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié le mûrissement de mousses 2D humides. Nous avons ainsi calculé la perméabilité des films de mousses de TTAB et d'air en utilisant la méthode du temps catastrophique pour trouver un coefficient de diffusion effectif, D_{eff} et en déduire une valeur de la perméabilité, $RT\kappa$ à l'aide de l'équation de von Neumann. Les résultats obtenus sont comparés aux valeurs de perméabilité calculés à l'aide de l'équation 6.5, qui est une modification de la loi de von Neumann pour les mousses humides et permet de tenir compte des contributions du film mais également des vertex, bords de Plateau et pseudo-bords de Plateau. La perméabilité mesurée avec l'équation de von Neumann dépend de la taille des pseudo-bords de Plateau ce qui semble indiquer que la contribution des bords de Plateau et pseudo-bords de Plateau n'est pas négligeable dans les mousses humides. L'équation de von Neumann est donc peu adaptée pour la mesure de perméabilité dans les mousses humides. L'amélioration de Schimming *et al.* ne permet pas de perdre complètement la dépendance en r_{PS} . Cependant, les valeurs de perméabilité mesurées sont plus proches de celles obtenues dans la littérature même si l'erreur sur cette valeur est très importante car les multiples sources d'erreur s'additionnent.

Le calcul des valeurs de D_{eff} à partir de la valeur de κ pour les films de TTAB, obtenue par une méthode classique [5], et avec les deux méthodes permet de s'affranchir de cette difficulté et met en évidence une limite de validité de l'équation de von Neumann. En conclusion, l'amélioration de Schimming *et al.* de l'équation de von Neumann permet de tenir compte de la présence des pseudo-bords de Plateau ce qui n'est pas le cas de l'équation classique de von Neumann qui n'est valable que dans les mousses sèches.

Chapitre 7

Coalescence

Sommaire

4.1 Montage expérimental	30
4.1.1 Description de la cellule 2D	30
4.1.2 Acquisition d'image	32
4.2 Caractérisation de la mousse 2D	33
4.2.1 Montage expérimental de caractérisation	33
4.2.2 Protocole expérimental	34
Calcul de la taille des bulles initiales	34
Mesure de la hauteur de liquide dans le réservoir	35
4.2.3 La fraction liquide surfacique	36
Détermination de la fraction liquide surfacique	36
Résultats pour la fraction liquide surfacique	37
Influence de l'espacement entre les deux plaques	37
Influence de la taille des bulles	37
4.2.4 Rayon de courbure des pseudo-bords de Plateau	38
Détermination de la largeur des Pseudo-bords de Plateau	38
Résultats	38
4.2.5 Lien entre la fraction liquide surfacique et le rayon des pseudo-bords de Plateau	40
4.2.6 Mousse monodisperse et mousse polydisperse	40
La fraction liquide surfacique	41
Le rayon des pseudo-bords de Plateau	41
4.3 Conclusion sur le montage expérimental	42

La coalescence est l'un des trois processus de déstabilisation d'une mousse. Elle est due à la rupture d'un film séparant deux bulles voisines. Ce phénomène est très mal compris. Les trois hypothèses les plus répandues dans la littérature sont : une pression capillaire critique au-dessus de laquelle le film, trop fin, rompt [40], une fraction liquide critique en-deçà de laquelle il devient difficile pour les bulles de se réarranger [3, 8] ou une taille de bulle critique au-delà de laquelle la probabilité d'un film de casser devient plus grande [13, 70]. Dans ce chapitre, nous reviendrons tout d'abord plus en détail sur ces trois hypothèses. Ensuite, nous donnerons quelques pistes les concernant dans le cas d'une mousse 2D.

7.1 Pistes pour expliquer la coalescence

7.1.1 Pression capillaire critique

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, plusieurs pressions sont en jeu dans les mousses. Parmi elles, la pression capillaire, P_c et la pression de disjonction Π_d . Ces deux pressions, présentes respectivement dans les bords de Plateau et dans les films, se compensent à l'équilibre. Cependant, si $P_c > \Pi_d$ alors le liquide contenu dans le film est aspiré dans les bords de Plateau provoquant l'amincissement et éventuellement la rupture du film. De nombreuses études ont été effectuées pour mettre en évidence ce mécanisme.

L'expérience, couramment utilisée pour cela est la balance à film [40] dans laquelle un film horizontal est créé dans un poreux comprenant un trou central. Cette cellule est confinée dans une boîte étanche afin de contrôler la pression du gaz. Une mesure de la pression de disjonction est donc possible. Cette mesure est effectuée lorsque le film est à l'équilibre donc lorsque $P_c = \Pi_d$. Ensuite, la pression du gaz est progressivement augmentée jusqu'à la rupture du film. On obtient alors la pression capillaire de rupture du film.

En 2002, Khristov *et al.* [40] réalisent une étude à la fois sur la rupture de films isolés grâce à la balance à film, et sur la rupture dans des mousses. L'étude de la pression capillaire critique dans les mousses est réalisée grâce à la "Foam pressure drop technique". Cette expérience consiste à fabriquer une mousse 3D dans une colonne avec une paroi semi-perméable qui permet au liquide de s'écouler mais pas à la mousse. Sous cette membrane, il est possible d'appliquer une pression P_r permettant d'avoir une différence de pression $\Delta P = P_0 - P_r$ avec P_0 la pression atmosphérique. Si $\Delta P \gg \rho g H$ avec H la hauteur de mousse, le liquide contenu dans la mousse s'écoule à travers la membrane jusqu'à l'obtention d'un équilibre des pressions entre ΔP et la pression capillaire, $P_c \approx \rho g H$, dans la colonne. Ainsi, en variant progressivement la pression P_r , il est possible de déterminer la valeur de la pression capillaire à partir de laquelle les films cassent. En comparant les résultats obtenus avec ces deux expériences, les auteurs montrent un comportement différent en fonction du tensio-actif utilisé (synperonic P85 et SDS). En effet, dans le cas du synperonic P85, les pressions critiques des films et de la mousse sont identiques. Au contraire, pour la mousse et les films de SDS, ces deux pressions sont différentes. Les auteurs expliquent cette différence par la polydispersité de la mousse permettant à certains films de casser sous une pression plus faible. L'étude a également été réalisée pour différentes tailles de films. Ils montrent ainsi une diminution de la pression capillaire critique pour les films et la mousse lorsque la taille du film augmente. Cette dernière observation tend à montrer que la pression capillaire critique n'est pas un bon paramètre puisqu'elle varie avec la taille des films.

7.1.2 Fraction liquide critique

La deuxième hypothèse est celle d'une fraction liquide critique. Deux études ont été réalisées dans ce sens. En 2003, Carrier *et al.* [9] réalisent une expérience montrant une fraction liquide critique partir de laquelle la mousse coalesce. Dans cette expérience, il s'agit de laisser une mousse 3D drainer dans une colonne. Au début de l'expérience, la mousse est libre de drainer. Des électrodes placées à différentes hauteurs dans la cellule permettent de mesurer la fraction liquide. Ainsi, il est possible d'obtenir la fraction liquide critique lorsque la mousse casse. Les auteurs trouvent une valeur de $\sim 0.06\%$.

Ils ont également montré que la fraction liquide critique ne dépend pas de la taille des bulles.

Dans la seconde expérience réalisée par Bianco *et al.* [3], une mousse monodisperse draine jusqu'à l'équilibre. Une fois à l'équilibre, une petite quantité de gaz est injectée dans une bulle afin de provoquer un réarrangement T1. Cette expérience est réalisée pour différentes fractions liquides, permettant ainsi de déterminer une fraction liquide à partir de laquelle le réarrangement entraîne la rupture des films. Les auteurs mesurent une fraction liquide critique de $\sim 0.08\%$ (proche de celle trouvée par Carrier *et al.*) indépendante de la taille des bulles. Dans cet article, les auteurs proposent un mécanisme expliquant que la fraction liquide critique est due à une impossibilité pour la mousse de se réarranger. Sachant que, durant un T1, le volume de liquide entre les bords de Plateau et le film fabriqué est conservé, il est possible de calculer la quantité de liquide minimale nécessaire pour créer un nouveau film et donc une fraction liquide critique :

$$\phi_{\text{coal}} = \left(\frac{1.9\beta_1}{4\delta\sqrt{3}} \right)^2 \left(\frac{\eta\beta_1 R}{\tau\gamma} \right)^{4/3} \quad (7.1)$$

avec $\beta_1 = \frac{L}{R}$, le rapport entre la longueur du nouveau côté (L) et le rayon R de la bulle, la constante géométrique $\delta = 3 \left(\frac{\pi}{6} - \frac{1}{\sqrt{3}} \right)$, η la viscosité, γ la tension de surface et τ le temps de réarrangement. Les auteurs comparent ϕ_{coal} à la valeur trouvée expérimentalement et aboutissent à des valeurs similaires.

7.1.3 Taille de bulles critique

La dernière hypothèse est la taille de bulle au-delà de laquelle la bulle casse. On peut en effet penser que plus une bulle augmente de taille, plus la probabilité de casser est grande, ce qui est montré par Deminiere *et al.* [13]. Dans cet article, les auteurs utilisent des émulsions qui coalescent pour regarder l'évolution de la taille des gouttes en fonction du temps. Ils mettent ainsi en évidence que la fréquence ω à laquelle un film casse est proportionnelle à la surface de contact entre deux gouttes. En 2006, une seconde étude est réalisée par Tcholakova *et al.* [70] sur l'influence de la taille des bulles dans la rupture des films dans les émulsions montre que la pression capillaire nécessaire pour casser la goutte diminue avec l'augmentation de la taille de celle-ci.

Il existe donc trois hypothèses pour expliquer la coalescence. Une pression capillaire critique $P_c \propto \frac{\gamma}{r_{\text{PB}}}$, une fraction liquide critique donnée par $\phi \approx \frac{r_{\text{PB}}}{R}$ et une taille de bulles critique, R_c . Les trois paramètres que sont ϕ , r_{PB} et R sont liés pour discriminer ces différentes théories, il est nécessaire de faire varier indépendamment R et r_{PB} . Or, le contrôle de ces paramètres est possible grâce à la cellule 2D. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 4.

7.2 Étude de l'influence des paramètres sur la coalescence

Dans la suite, nous nous intéresserons à l'influence des rayons de pseudo-bords de Plateau, r_{PS} et de la fraction liquide surfacique (ϕ_s) et discuterons de l'influence de la taille des bulles, R . Nous verrons ensuite qu'il est pertinent d'introduire des paramètres

plus locaux. Pour commencer, nous allons présenter les résultats moyens à l'échelle de la mousse.

7.2.1 Analyse globale, à l'échelle de la mousse

Dans la section 5.1 du chapitre 5, nous avons vu qu'il est possible de caractériser la coalescence à l'échelle de la mousse grâce au paramètre de convexité C_v et au temps de coalescence, t_{coal} . Pour rappel, t_{coal} est le temps pour lequel $C_v > 2$ sans décroître immédiatement. Nous utilisons donc dans cette partie le temps de coalescence afin d'étudier la coalescence.

Influence de la pression capillaire via le rayon des pseudo-bords de Plateau

Comme nous l'avons vu dans la section 7.1, l'une des hypothèses pour expliquer la coalescence est une pression capillaire critique. Celle-ci est liée à la taille des bords de Plateau en 3D et donc à celle des pseudo-bords de Plateau à 2D.

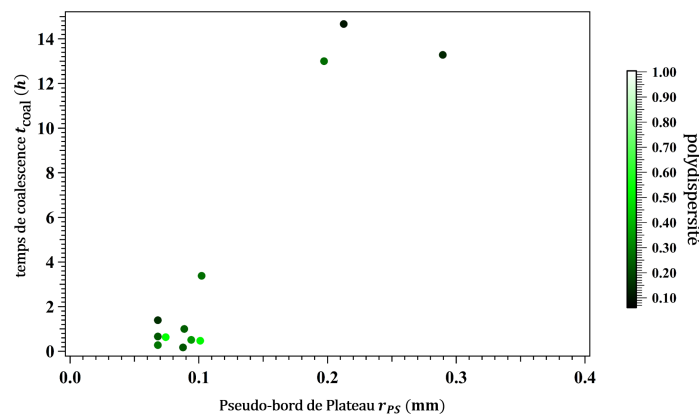


FIGURE 7.1: Temps de coalescence en fonction de rayon des Pseudo-bords de Plateau pour différentes valeurs de polydispersité initiale

Sur la figure 7.1 est représenté le temps de coalescence tel que défini dans la section 6.3.4, en fonction du rayon des pseudo-bords de Plateau. Lorsque les pseudo-bords de Plateau s'épaississent, la pression capillaire diminue, leur épaisseur augmente et le temps de coalescence augmente. Lorsque l'épaisseur des pseudo-bords de Plateau augmente, il est plus difficile pour un film de casser et cela demande donc plus de temps. Ainsi, il semble que la première hypothèse donnant la pression capillaire comme paramètre clé de la coalescence ne soit pas contredite.

Influence de la fraction liquide de surface

La seconde hypothèse est celle d'une fraction liquide critique. Il est difficile à 2D de définir cette fraction, nous utilisons donc la fraction liquide surfacique telle que définie dans la section 4.2.3. En effet, un lien existe entre la fraction liquide surfacique et la fraction liquide volumique. Nous avons pu établir ce lien à 3D mais pas encore à 2D.

Sur la figure 7.2 est représenté le temps de coalescence en fonction de la fraction liquide surfacique pour différentes mousses de polydispersités diverses. Le temps nécessaire pour avoir des avalanches de coalescences augmente lorsque la fraction liquide surfacique augmente et ce quel que soit la polydispersité. Ce paramètre semble donc également prometteur dans l'étude de la coalescence.

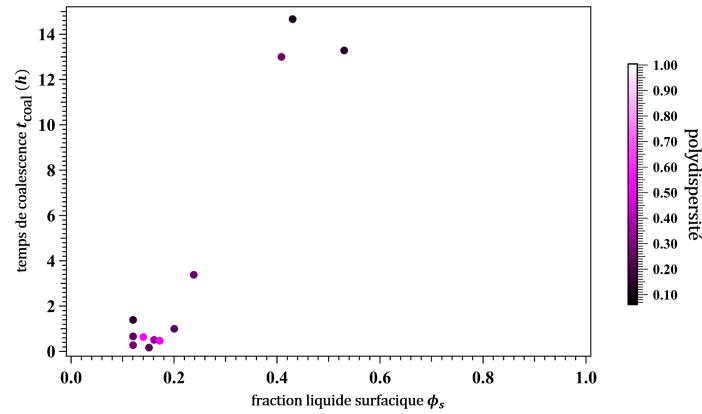


FIGURE 7.2: Temps de coalescence en fonction de la fraction liquide surfacique tel que défini dans la sous-section 4.2.3 pour différentes valeurs de polydispersité initiales

Influence du rayon des bulles

En suivant le même principe que précédemment, la figure 7.3 montre le temps de coalescence en fonction de l'aire moyenne des bulles.

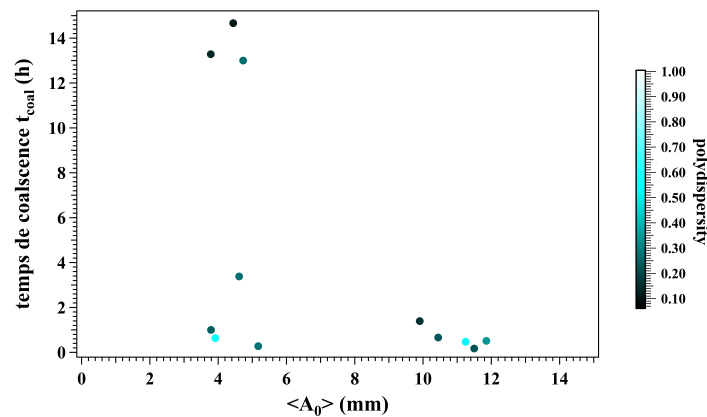


FIGURE 7.3: Temps de coalescence en fonction de l'aire initiale des bulles et pour diverses polydispersités de départ.

Ainsi, nous pouvons voir que l'influence de la taille initiale n'est pas claire. En effet, lorsque $\langle A_0 \rangle > 9.5 \text{ mm}^2$, le temps de coalescence est toujours court, $0.17 \text{ h} < t_{\text{coal}} < 1.4 \text{ h}$ ce qui est prédit par l'hypothèse d'une taille de bulles critique. Mais pour $\langle A_0 \rangle < 5.7 \text{ mm}^2$, la polydispersité semble jouer un rôle puisque lorsque l'on a une faible polydispersité, le temps de coalescence est d'environ 14 h alors qu'il est compris entre 0.27 h et 3.38 h pour les mousses initialement plus polydisperses.

Il semble donc que la taille des bulles mais également la polydispersité de la mousse jouent un rôle dans la coalescence.

Influence de la polydispersité

Si nous nous intéressons maintenant à la figure 7.4, où $r_{\text{PS}} = 0.07 \text{ mm}$, il semble que dans un certain intervalle de polydispersité ($\sigma < 0.30$), le second régime intervienne plus rapidement lorsque la mousse est plus polydisperse comme le montrent les courbes correspondant aux mousses avec $\sigma = 0.28$, $\sigma = 0.25$ et $\sigma = 0.15$. Cependant, lorsque $\sigma = 0.53$, le temps auquel se met en place le second régime augmente. Il est donc

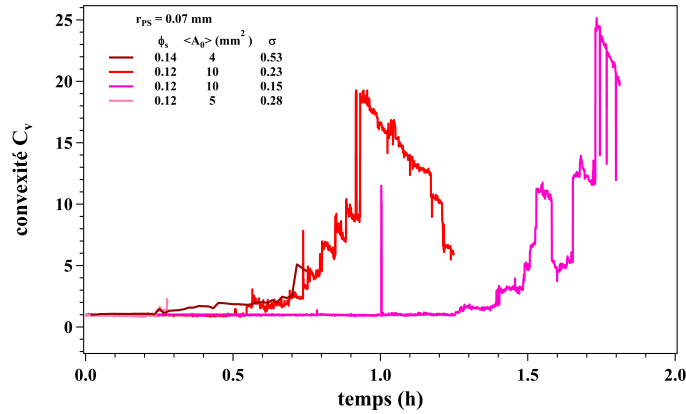


FIGURE 7.4: Influence de la polydispersité la taille initiale des bulles sur le paramètre de convexité pour $r_{PS} = 0.07$ mm

difficile de conclure définitivement sur l'influence de la polydispersité d'autant que la taille des bulles varie également.

En conclusion, en regardant à l'échelle globale de la mousse, il n'est pas possible de décrire la coalescence avec un seul paramètre. En effet, r_{PS} et ϕ_s sont dépendants l'un de l'autre via la taille des bulles. Nous allons montrer dans le prochain paragraphe qu'une étude similaire à une échelle locale est plus prometteuse.

7.2.2 Analyse locale, à l'échelle d'une bulle

Comme nous venons de le voir, l'étude de la mousse à l'échelle globale ne permet pas de conclure sur les paramètres impliqués dans la coalescence. Nous allons donc étudier ces éléments à l'échelle locale afin de déterminer l'influence de la taille des bords de Plateau, des bulles et de la fraction liquide sur la coalescence. Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons aux bulles de manière individuelle. Ainsi, pour chaque bulle, le rayon est calculé à l'aide de l'aire de la bulle et la fraction liquide surfacique est calculée de manière à avoir une valeur pour chaque bulle en fonction de sa taille et de la taille des pseudo-bords de Plateau. Seul r_{PS} reste constant tout au long de l'expérience puisqu'il est fixé par la hauteur de liquide dans la cellule et est indépendant de la bulle considérée.

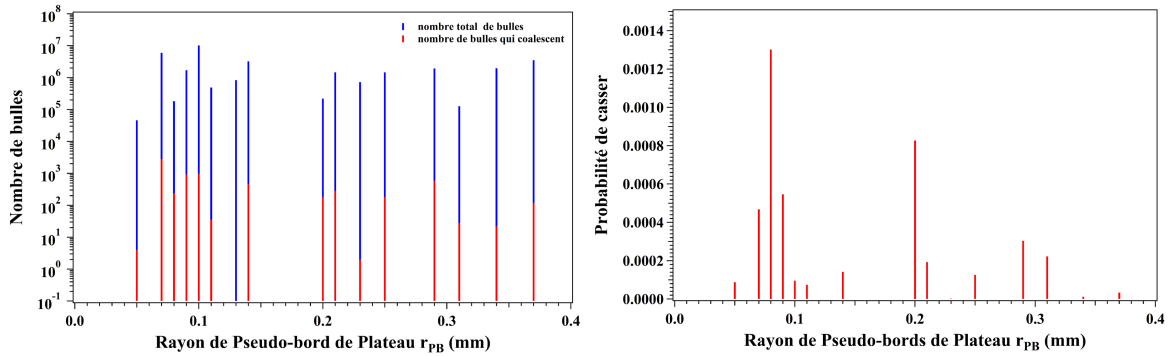
Informations concernant les expériences

Les résultats présentés dans cette partie ont été réalisés à partir de 36 expériences au cours desquelles nous avons fait varier la taille des pseudo-bords de Plateau et la taille des bulles. Le tensio-actif utilisé est du TTAB à 5 g/L et le gaz est de l'air. L'ensemble de ces expériences représente un nombre total de bulles d'environ 3.4×10^7 avec 6838 évènements de coalescence. Pour obtenir ces chiffres, nous avons compté les bulles à chaque instant t des expériences.

Influence de la pression capillaire via le rayon des pseudo-bords de Plateau

Nous allons commencer par l'influence du rayon des pseudo-bords de Plateau (figure 7.5). La figure 7.5a montre l'évolution du nombre de bulles total (en bleu) et des bulles qui coalescent (en rouge) en fonction de r_{PS} . On peut ainsi constater la présence d'évènements de coalescence pour toutes les tailles de pseudo-bords de Plateau étudiées

sauf pour $r_{PS} = 0.13$ mm. Cette observation semble indiquer que la taille des pseudo-bords de Plateau n'a pas d'influence sur la coalescence puisque quel que soit r_{PS} , il y a des événements de coalescence. Si l'on s'intéresse maintenant à la probabilité d'un film de casser en fonction de r_{PS} , figure 7.5b, cela semble confirmer l'observation précédente puisque r_{PS} influence peu la probabilité de casser. Néanmoins, on note une légère augmentation de cette probabilité lorsque r_{PS} diminue.



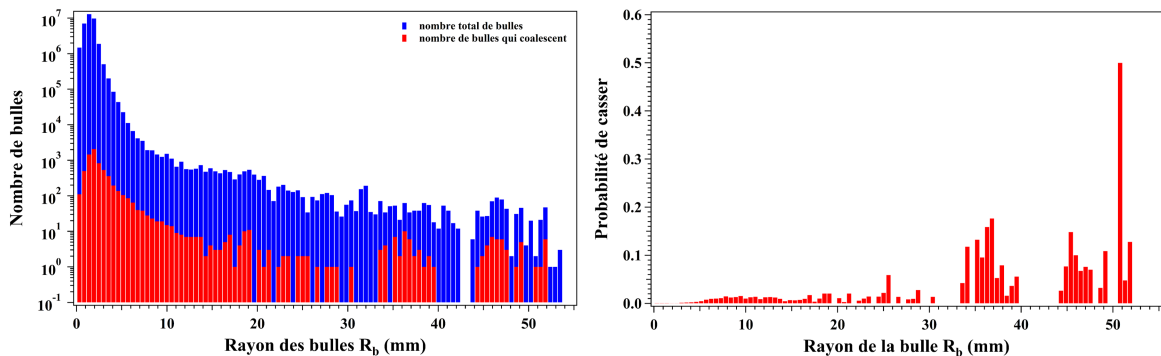
(a) Nombre de bulles en fonction de rayon des Pseudo-bords de Plateau, r_{PS} (b) Probabilité de casser en fonction de rayon des Pseudo-bords de Plateau, r_{PS}

FIGURE 7.5: Influence de la taille des Pseudo-bords de Plateau et donc de la pression capillaire sur la coalescence. L'ensemble des bulles est en bleu et en rouge uniquement les bulles qui ont coalescé.

Influence du rayon des bulles

Le paramètre que nous étudions ensuite est la taille des bulles. Pour cela, comme précédemment, nous traçons le nombre total de bulles (en bleu sur la 7.6) et de bulles qui coalescent (en rouge sur la 7.6) ainsi que leur probabilité de casser en fonction de la taille des bulles (Figure 7.6). La taille des bulles est calculée à partir de l'aire des bulles mesurée sur les squelettes des images : $R = \sqrt{\frac{\text{Aire}}{\pi}}$.

La figure 7.6a permet de mettre en évidence qu'il y a des événements de coalescence pour toutes les tailles de bulles. Cependant, on peut voir que les plus grande bulles ont une plus forte probabilité de casser (Figure 7.6b).



(a) Nombre de bulles en fonction du rayon des bulles, R_b (b) Probabilité de casser en fonction du rayon des bulles, R_b

FIGURE 7.6

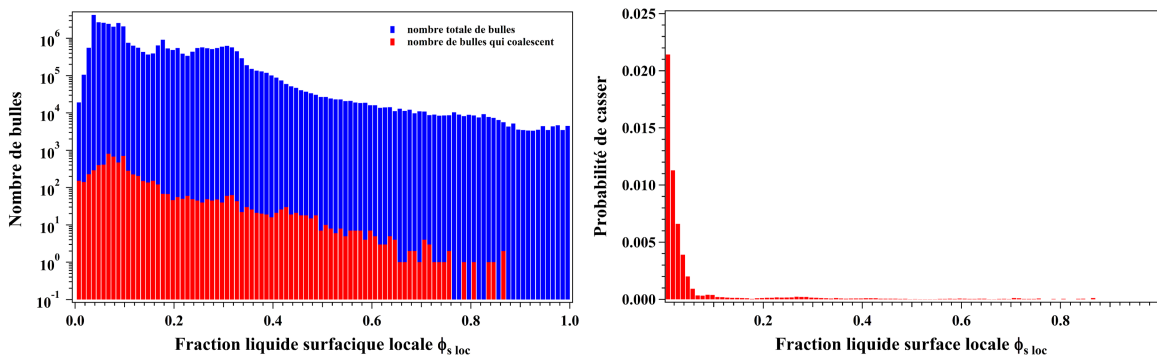
Il semble donc qu'il n'y ait pas de taille critique des bulles. Néanmoins, la probabilité de casser augmente avec la taille des bulles.

Influence de la fraction liquide de surface

Le dernier paramètre est donc la fraction liquide surfacique locale appelé $\phi_{s \text{ loc}}$. Sachant que la fraction liquide surfacique est définie comme le rapport entre l'aire de liquide et l'aire totale de la mousse, la fraction liquide surfacique locale est donnée par l'aire de liquide entourant la bulle considérée sur l'aire totale de la bulle.

$$1 - \phi_{s \text{ loc}} = \frac{(R - r_{\text{PS}})^2}{R^2} = \left(1 - \frac{r_{\text{PS}}}{R}\right)^2 \quad (7.2)$$

Une fois cette définition donnée, il est possible d'étudier l'influence de ce paramètre sur la coalescence.



(a) Nombre de bulles en fonction de la fraction liquide surfacique locale, $\phi_{s \text{ loc}}$ (b) Probabilité de casser en fonction de la fraction liquide surfacique locale, $\phi_{s \text{ loc}}$

FIGURE 7.7: Influence de la fraction liquide surfacique locale sur les événements de coalescences, comme précédemment, l'ensemble des bulles est en bleu et en rouge uniquement les événements de coalescence.

Sur la figure 7.7a, on peut remarquer que l'intervalle de valeurs de $\phi_{s \text{ loc}}$ pour lequel des bulles existent est compris entre 1 % et 100 %. Pour chacune de ces valeurs, le nombre de bulles varie entre 3.34×10^4 et 4.26×10^6 . Si l'on s'intéresse maintenant aux événements de coalescences, on peut constater que le nombre de bulles qui coalescent diminue avec la fraction liquide surfacique locale. Lorsque $\phi_{s \text{ loc}}$ passe au-dessus de 87 %, il n'y a plus de coalescence du tout. Cette observation est confirmée par la figure 7.7b qui montre la probabilité de casser en fonction de $\phi_{s \text{ loc}}$. Par ailleurs, plus la fraction liquide surfacique locale est faible, plus la probabilité de casser est grande. Il semble donc que le bon paramètre responsable de la coalescence soit la fraction liquide surfacique locale.

À partir de cette fraction liquide critique, il est possible de calculer s'il existe toujours un film entre les bulles. Pour $\phi_{s \text{ loc}} \approx 86$ % et $\langle A_0 \rangle \approx 0.4$ mm la hauteur des films est d'environ 1.56 mm. La largeur du film est calculée en comparant la longueur du côté, $L \approx 0.45$ mm et le rayon des bords de Plateau, $r_{\text{PB}} \approx 0.26$ mm. Ainsi, pour $\phi_{s \text{ loc}} \approx 86$ %, $L \sim r_{\text{PB}}$, il n'y a alors plus de film entre les bulles. La coalescence ne se produit donc que s'il existe un film entre les bulles.

Enfin, si l'on regarde la probabilité de casser en fonction de la fraction liquide surfacique locale (Figure 7.7b), on peut voir que la probabilité augmente fortement.

Toutefois, lorsque $\phi_{s \text{ loc}} < 6 \%$. À partir des informations obtenues grâce à la caractérisation de l'expérience dans la section 4.2, il est possible d'obtenir une valeur de hauteur de liquide dans le réservoir et donc une valeur de fraction liquide dans la mousse 3D grâce à l'équation 2.6 développé par Maestro *et al.*. Nous obtenons ainsi $\phi = 0.056 \%$ qui est très proche de la valeur de fraction liquide trouvée par Bianco *et al.* et Carrier *et al.*.

7.3 Conclusion

Ensuite nous nous sommes servi du programme Matlab décrit dans le chapitre 5 afin d'étudier les paramètres, R , r_{PS} et ϕ , qui sont supposés être responsables de la coalescence. Pour cela, il est nécessaire de les étudier séparément. Nous avons, tout d'abord, réalisé une étude globale de la mousse grâce au temps catastrophique. Ainsi, l'influence de r_{PS} sur la coalescence est confirmée par l'étude de l'influence de la taille des pseudo-bords de Plateau sur le temps de coalescence. On montre ainsi qu'à l'échelle de la mousse, la pression capillaire joue un rôle dans la coalescence. Concernant l'influence de la taille moyenne initiale des bulles, on peut également constater que lorsque la taille initiale augmente le temps de coalescence diminue ce qui laisse penser que la taille des bulles joue un rôle dans la coalescence. Enfin, lorsque la fraction liquide surfacique augmente, le temps de coalescence augmente également. Il semble donc qu'à cette échelle, l'analyse ne permette pas de privilégier un paramètre pour expliquer la coalescence. Nous avons donc procédé à une analyse locale des paramètres c'est-à-dire au niveau de chaque bulle. On peut alors observer que les bulles coalescent, quels que soient le rayon de bulles. De même il existe des bulles de toutes les tailles qui coalescent. Cependant, la probabilité de casser est plus grande lorsque le rayon des bulles augmente. Cette augmentation est moins visible avec la diminution de r_{PS} . Le calcul de la fraction liquide surfacique locale pour les différentes bulles montre l'existence d'une valeur critique au-delà de laquelle il n'y a plus de coalescence car le film entre les bulles n'existe plus. De plus, en observant la probabilité de casser en fonction de la fraction liquide surfacique, on peut constater que cette probabilité devient très faible pour $\phi_{s \text{ loc}} > 6 \%$ soit $\phi > 0.056 \%$. Cette valeur est proche des valeurs de ϕ_{coal} trouvée par Bianco *et al.* et Carrier *et al.*.

Pour aller plus loin dans cette étude, il serait également intéressant d'étudier la corrélation entre les événements de coalescence, la fraction liquide et les réarrangements T1. Cependant, même si l'option de compter les réarrangements T1 est possible dans notre programme, le taux de détection de ces réarrangements n'est pour l'instant pas suffisant pour poursuivre l'étude et devra être investigué par la suite.

Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié le mûrissement et la coalescence de mousses 2D. Ces études ont été réalisées dans une cellule dont la particularité est d'être connectée à un réservoir permettant de **contrôler la taille des pseudo-bords de Plateau et donc la pression capillaire en fixant la hauteur de liquide dans la cuve**. Dans un premier temps, nous avons défini un nouveau paramètre permettant de déterminer si une mousse avait évolué majoritairement par mûrissement ou par coalescence. Pour cela, **nous avons défini un paramètre de convexité C_v qui reste de l'ordre de un au cours du temps pour les mousses qui évoluent principalement par mûrissement mais qui croît rapidement dans le cas de mousses qui coalescent**. En étudiant l'évolution de ce paramètre au cours du temps, nous avons pu constater la présence de deux régimes : un régime régi par le mûrissement et des événements de coalescence isolés et un régime dans lequel quelques grosses bulles provoquent la coalescence. Le temps auquel il y a passage entre les deux régimes correspond à $C_v > 2$ et est appelé le temps de coalescence.

Ensuite, nous nous sommes intéressés au mûrissement de mousses humides via la mesure de perméabilité. Nous avons utilisé ce montage afin de mesurer le coefficient de diffusion effectif de mousses humides de TTAB à l'aide de la méthode du temps catastrophique développée par Saulnier *et al.*. Grâce à ce coefficient, la perméabilité est calculée en utilisant soit la loi de von Neumann (eq. 6.4), soit la loi modifiée récemment par Schimming *et al.* (eq. 6.5) qui permet de tenir compte de la présence des pseudo-bords de Plateau, des bords de Plateau et des vertex. Les valeurs de perméabilité calculées avec l'équation 6.5 sont plus proches de la valeur de la perméabilité des films de TTAB mesurée par d'autre méthode [5]. Enfin, le calcul de D_{eff} à partir de la perméabilité théorique avec les deux méthodes montre que lorsque les pseudo-bords de Plateau s'épaississent, D_{eff} mesuré expérimentalement est plus proche de celui calculé avec l'amélioration de Schimming. **Nous avons ainsi montré que la modification apportée récemment par Schimming *et al.* sur l'équation von Neumann permet d'améliorer la détermination de la perméabilité des films des mousses humides**, par rapport à l'équation classique de von Neumann qui donne toutefois de bons résultats dans le cas des mousses sèches.

Enfin, nous avons étudié la coalescence afin de tester les trois hypothèses de la coalescence, à savoir une pression capillaire critique, une fraction liquide critique ou une taille de bulle critique. Tout d'abord, nous avons réalisé une analyse globale de ces trois paramètres et observé qu'il n'était pas possible de conclure sur la prédominance d'une hypothèse sur les autres. Nous avons poursuivi cette étude par une analyse locale de la mousse. Cette analyse a été rendue possible grâce à un programme MATLAB permettant de suivre les bulles individuellement et donc d'identifier chaque événement de coalescence. Nous avons pu constater que la coalescence est présente, quel que soit le rayon des pseudo-bords de Plateau (lié à la pression capillaire) et pour toutes les tailles de bulles. **En revanche, il n'y a plus de coalescence pour une fraction**

liquide surfacique locale supérieure à 86 %. Pour cette valeur, nous avons pu montrer qu'il n'y avait plus de film entre les bulles. Enfin, nous nous sommes intéressés à la probabilité de coalescencer en fonction de la fraction liquide surfacique locale, nous avons pu constater que la probabilité de casser est proche de 0 pour $\phi_{s \text{ loc}} > 6 \%$ ce qui correspond à $\phi > 0.054 \%$ dans une mousse 3D. Cette valeur de fraction liquide bien que, très approximative, est comparable aux valeurs trouvées par Biance *et al* et Carrier *et al.*.

Troisième partie

Mousse 3D

Introduction et problématique

Dans la partie précédente, nous nous sommes intéressés au vieillissement des mousses 2D qu'il est possible de visualiser directement. Dans le cas des mousses 3D, la visualisation directe n'est pas possible, il est donc indispensable d'utiliser d'autres techniques pour étudier l'évolution de la mousse au cours du temps. Dans cette partie, nous nous focaliserons sur les mousses 3D.

Dans le premier chapitre, nous verrons qu'il est possible d'obtenir des informations sur les propriétés en volume en utilisant la surface de la mousse et nous nous intéresserons plus précisément à la mesure de la fraction liquide. Nous avons en effet mis en place une nouvelle technique basée sur la visualisation de la surface de la mousse pour obtenir des informations sur le volume. Cette technique similaire à celle utilisée dans le chapitre 4 permet de faire un lien entre fraction liquide surfacique et fraction liquide volumique.

Dans le deuxième chapitre, nous ferons un rappel sur la loi de croissance dans les mousses 3D qui est donnée par $\langle R \rangle \propto t^\beta$ avec $\beta = 1/2$ pour les mousses sèches et $\beta = 1/3$ pour les liquides bulleux. Nous ferons également un résumé des techniques expérimentales qu'il est possible d'utiliser afin d'étudier l'évolution de la taille des bulles au cours du temps et nous comparerons les résultats expérimentaux obtenus dans la littérature avec les valeurs prédites par la théorie. Nous nous intéresserons notamment à une expérience réalisée par Isert *et al.* [36] mettant en évidence une transition entre les deux valeurs du coefficient β .

Dans un troisième chapitre, après un bref rappel du principe de la diffusion multiple de la lumière, permettant de mesurer les coefficients β , nous présenterons les expériences faites au laboratoire. Les résultats seront comparés à la théorie mais également aux résultats expérimentaux disponibles dans la littérature. Afin de réaliser cette étude, la mousse sera confinée dans une cellule afin de compenser les effets de la gravité par la capillarité. L'évolution de la taille des bulles au cours du temps est obtenue par transmission diffuse de la lumière. L'étude est réalisée avec des mousses de TTAB, TTAB/dodécanol, TTAB/dodécanol/glycérol et TTAB/glycérol pour différentes fractions liquides allant de 5 % à 30 %.

Dans le dernier chapitre, nous présenterons un projet expérimental ayant pour objectif l'étude du mûrissement et du réarrangement des bulles dans les mousses humides en utilisant un montage expérimental réalisé par Airbus Defence and Space en collaboration avec l'ESA et avec une équipe scientifique dont le LPS fait partie. Cette expérience devrait être envoyée sur l'ISS en 2018. Après un rapide historique et l'explication du montage expérimental, nous verrons les protocoles de remplissage et de nettoyage réalisés en collaboration avec Airbus. Nous regarderons également une méthode pour mesurer automatiquement la taille des bulles à partir d'une image de la surface de la mousse. Enfin, nous vérifierons que la taille initiale des bulles est conforme à celle souhaitée par l'équipe scientifique. Pour cela, nous testerons les différents paramètres de contrôle de la génération afin de trouver la meilleure combinaison.

Chapitre 8

Relation entre la fraction liquide volumique et surfacique

Sommaire

5.1 Paramètre de convexité	44
5.1.1 Définition de l'enveloppe convexe	45
5.1.2 Convexité des bulles	46
5.2 Réalisation des expériences	47
5.2.1 Protocole de nettoyage et préparation des solutions	47
Protocole de nettoyage de la cellule	47
Protocole de préparation des solutions	47
Solution de TTAB :	47
5.2.2 Protocole expérimental	47
5.3 Étude de la compétition entre mûrissement et coalescence grâce au paramètre de convexité	48
5.3.1 Paramètre de convexité et nombre cumulé d'évènements de coalescence	48
5.3.2 Définition du temps de coalescence	49
5.4 Programme MATLAB : suivi de bulles	50
5.4.1 Prétraitement avec une macro d'ImageJ	50
5.4.2 Identification des bulles	51
Trouver les vertex	51
Trouver les côtés	51
Information sur les bulles	51
5.4.3 Élimination des fausses bulles	52
Les bulles 3D	52
Les autres bulles	53
Supprimer les côtés ou les vertex et les bulles	53
5.4.4 Suivi des bulles	54
5.4.5 Identification des évènements de coalescence	55
Critère d'aire	55
Critère de nombre de pixels communs	56
Critère de persistance dans le temps	56
Discussion sur la limitation des différents critères	58

5.4.6	Informations sauvegardées pour l'ensemble des bulles et les bulles impliquées dans la coalescence	59
5.4.7	Faux évènements de coalescence	59
5.5	Conclusion	61

De précédents travaux sur les propriétés de surface des mousses ont portés sur la relation entre la taille des bulles et la distribution des taille de bulles à la surface et dans le volume [11, 76]. Ici nous nous concentrons sur la question de la relation entre les fractions liquides volumique et surfacique, ϕ et ϕ_s . Cette étude a été réalisée en collaboration avec Wiebke Drenckhan, maintenant à l'institut Charles Sadron à Strasbourg, et avec Denis Weaire et Stephan Hutzler du Trinity College à Dublin.

Les mousses ou les émulsions sont respectivement constituées de bulles de gaz ou de gouttelettes de liquide dispersées dans une phase liquide (chapitre 1. La fraction liquide ϕ de la phase continue va de zéro dans la limite de bulles polyédriques très compactées jusqu'à une valeur critique ϕ_c dans la limite où les bulles sont sphériques et sont au contact [7, 71, 78]. Beaucoup de propriétés physiques dépendent fortement de ϕ . Par exemple, en rhéologie, le module élastique d'une mousse ou d'une émulsion décroît jusqu'à zéro lorsque la fraction liquide atteint ϕ_c [4, 7, 32, 54, 78].

De nombreuses techniques expérimentales existent pour déterminer la valeur de ϕ . Nous pouvons citer par exemple, la mesure de la conductivité électrique [21] ou de la capacité [35], une méthode de transmission optique [73] ou encore des techniques de rayons X [66]. Ici nous montrons que ϕ peut être déterminée par une visualisation directe de la fraction liquide surfacique ϕ_s . Dans ce chapitre, nous verrons que la relation entre les fractions liquides volumique et surfacique dépend de l'énergie interfaciale E de la mousse. Ce travail a été publié en 2016 [22].

8.1 Dispositif expérimental

Dans ces expériences, nous utilisons des mousses générées avec une solution de dodécyle sulfate de sodium (SDS) de concentration 6 g/L avec du glycérol (0.5 wt%) et du dodécanol (0.06 g/L) de façon à améliorer la stabilité de la mousse formée. Le gaz utilisé pour faire la mousse est de l'air ou de l'azote avec des traces de C_6F_{14} afin de ralentir la diffusion du gaz entre les bulles.

8.1.1 Génération de la mousse et mesure de la taille des bulles

Génération de la mousse Afin de générer des mousses avec une grande diversité de taille de bulles R ($0.1 < \langle R \rangle < 2$ mm) et de polydispersité $\sigma = \frac{\sqrt{\langle R^2 \rangle - \langle R \rangle^2}}{\langle R \rangle}$ ($1 < \sigma < 64$ %), nous avons utilisé différentes techniques de génération de mousse. Pour les mousses polydisperses, nous appliquons trois méthodes. Le FoamScan est un appareil commercial composé d'une colonne. En bas de celle-ci, se trouve **un disque poreux** plongé dans la solution moussante et dans lequel on injecte le gaz. Les bulles montent et s'accumulent en haut de la colonne créant une mousse. Avec cette méthode, les mousses créées ont une polydispersité de $\sigma \approx 5 - 10$ % et des bulles de rayon $\langle R \rangle \approx 1$ mm. Les mousses peuvent également être créées en agitant le liquide dans un récipient fermé. Cette technique donne des mousses de dispersité $\sigma \approx 60$ % et de rayon $\langle R \rangle \approx 3$ mm. Nous utilisons aussi **la méthode des doubles seringues** [16] dans laquelle le gaz et la solution sont placés dans une seringue connectée à une seconde seringue de même

capacité. La mousse est générée en faisant passer les fluides d'une seringue à l'autre jusqu'à l'obtention d'une mousse homogène. Cette technique donne des bulles de taille $\langle R \rangle \approx 0.1$ mm et une polydispersité $\sigma \approx 40$ %.

Pour les mousses monodisperses, nous utilisons deux techniques. La plus simple consiste à **injecter le gaz dans la solution avec une aiguille** de diamètre 0.4 mm. L'aiguille est placée en bas de la colonne du FoamScan. Le rayon des bulles est alors de 0.3 mm et la polydispersité est d'environ 5 %. La seconde méthode est une technique de micro-fluidique appelée "**flow focusing**". Pour la mettre en œuvre, nous utilisons une jonction T. La solution est injectée dans une première branche et le gaz dans la seconde branche de la jonction. Les deux fluides se rencontrent à la jonction où des bulles de même volume sont générées et sortent par la troisième branche. Le FoamScan est rempli avec cette mousse grâce à une ouverture au sommet de la colonne. Avec cette méthode, il est possible de générer un intervalle de tailles de bulles de 1 à 2 mm avec une polydispersité de 1 – 2 %.

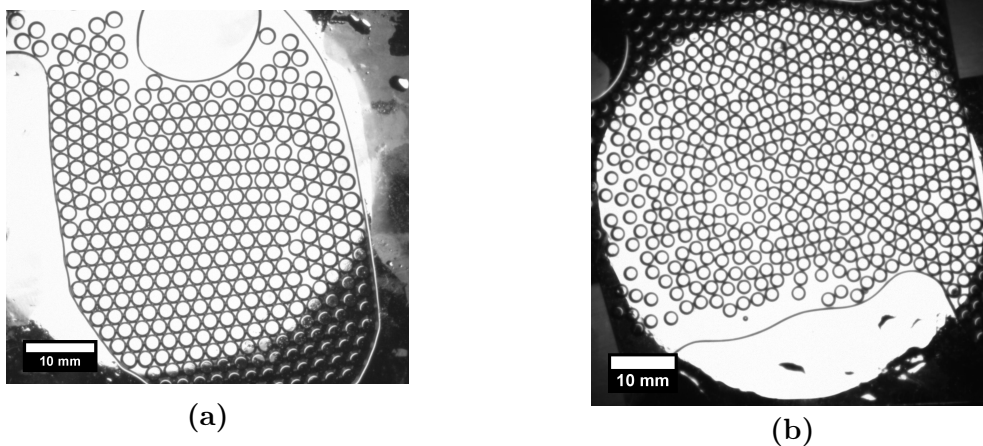


FIGURE 8.1: Photographies de bulles entre deux plaques de verre prises avec une caméra placée au-dessus de l'échantillon, illuminé avec un faisceau lumineux circulaire situé en-dessous. (a) Bulles de $\langle R \rangle = 2.2$ mm et $\sigma = 1$ %. (b) Bulles de $\langle R \rangle = 1$ mm et $\sigma = 8$ %.

Mesure de la taille des bulles et de la polydispersité Afin de mesurer la taille des bulles et la polydispersité des mousses, nous prenons un échantillon dans la colonne du FoamScan et le diluons avec la même solution moussante. L'échantillon est placé entre deux plaques de verre séparées par un intervalle connu (lamelle du microscope) plus petit que la taille des bulles. La dilution de l'échantillon de mousse permet de bien séparer les bulles les unes des autres et de voir chacune d'elles individuellement sans déformation comme le montre la figure 8.1. Une caméra est positionnée au-dessus de l'échantillon qui est illuminé par au-dessous avec une lumière circulaire. Cette caméra permet de prendre des photographies des bulles. Sur ces images, le contour des bulles apparaît en noir (Figure 8.1). Grâce à un traitement d'image basique réalisé avec ImageJ, il est possible d'obtenir le rayon interne des bulles, R_c , comme décrit en détail par Gaillard *et al.* [24]. Connaissant la distance entre la source de lumière et l'échantillon, L_l , le rayon du faisceau lumineux, R_l , l'intervalle, h , entre les deux plaques de verre et le rayon interne des bulles, il est possible de calculer le rayon réel des bulles avec l'équation (17) de cette référence [24].

Il est ensuite possible de déterminer la polydispersité de la mousse $\sigma = \frac{\sqrt{\langle R^2 \rangle - \langle R \rangle^2}}{\langle R \rangle}$. Ainsi, pour la Fig. 8.1a, $\langle R \rangle = 2.2$ mm et $\sigma = 1$ % alors que pour la Fig. 8.1b,

$\langle R \rangle = 1 \text{ mm}$ et $\sigma = 8 \%$.

8.1.2 Mesure de la fraction liquide

Les mousses ainsi générées sont placées dans la colonne de l'appareil commercial FoamScan (TECLIS, Lyon, France) qui a une section carrée ($25 \times 25 \text{ mm}$) et une hauteur de 200 mm.

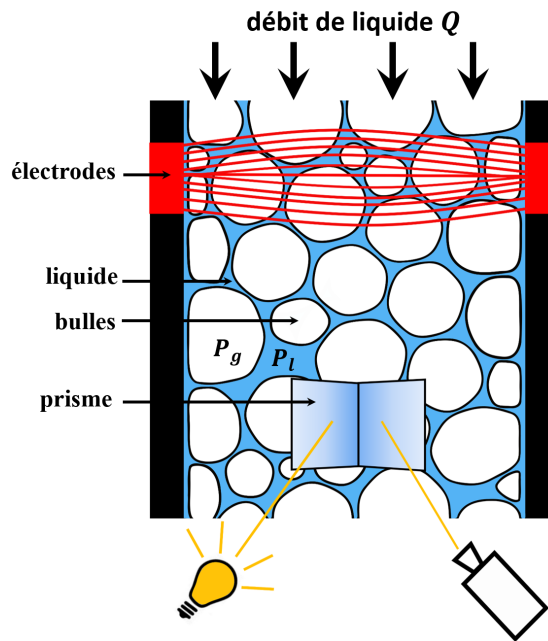


FIGURE 8.2: Représentation schématique du FoamScan, un appareil commercial de TECLIS. La mousse est contenue dans une colonne de base carrée. De part et d'autre de la colonne se trouvent plusieurs paires d'électrodes (une de ces paires est en rouge sur la figure) afin de mesurer la conductivité électrique locale de la mousse ce qui permet d'en déduire la fraction liquide volumique. Entre chaque paire d'électrodes se trouve un prisme pour des images de la surface de la mousse. La mousse peut être générée à l'aide de l'appareil ou placée dans la colonne après génération. Dans le cas de l'étude de mousse à l'état statique, la solution moussante est injectée au sommet de la colonne à débit constant afin d'assurer une fraction liquide également constante au cours du temps et dans toute la colonne.

De la solution, contenant le même tensio-actif que la mousse, est injectée à débit constant en haut de la colonne (drainage forcé en régime stationnaire) afin d'avoir une distribution uniforme de la fraction volumique [78] le long de la colonne (Figure 8.2). La valeur de la fraction volumique est obtenue en mesurant la conductivité électrique à travers la colonne en utilisant des paires d'électrodes placées sur les parois de part et d'autre de la cellule (figure 8.2). Cette méthode repose sur une relation empirique liant la conductivité électrique à la fraction liquide volumique :

$$\phi = \frac{3\Omega(1 + 11\Omega)}{1 + 25\Omega + 10\Omega^2} \quad (8.1)$$

Dans l'équation 8.1, $\Omega = \frac{\Omega_{\text{mousse}}}{\Omega_{\text{liquide}}}$ est la conductivité relative. Cette équation, bien établie, est sujette à une erreur expérimentale relative d'environ 5 % sur la fraction volumique ϕ [21].

8.1.3 Mesure de la fraction liquide surfacique

La technique expérimentale décrite par la suite a été tout d'abord développée dans les années 1990 pour déterminer la distribution de taille des bulles [25, 47]. Nous étendons son application à la mesure de la fraction surfacique.

La colonne du FoamScan est dotée de prismes à angle droit qui sont collés sur la surface entre les électrodes successives (Figure 8.2). Les photos de bulles à la paroi sont prises à travers le prisme en utilisant une caméra avec un objectif télécentrique tel que présenté dans la section 4.2.3 du chapitre 4.

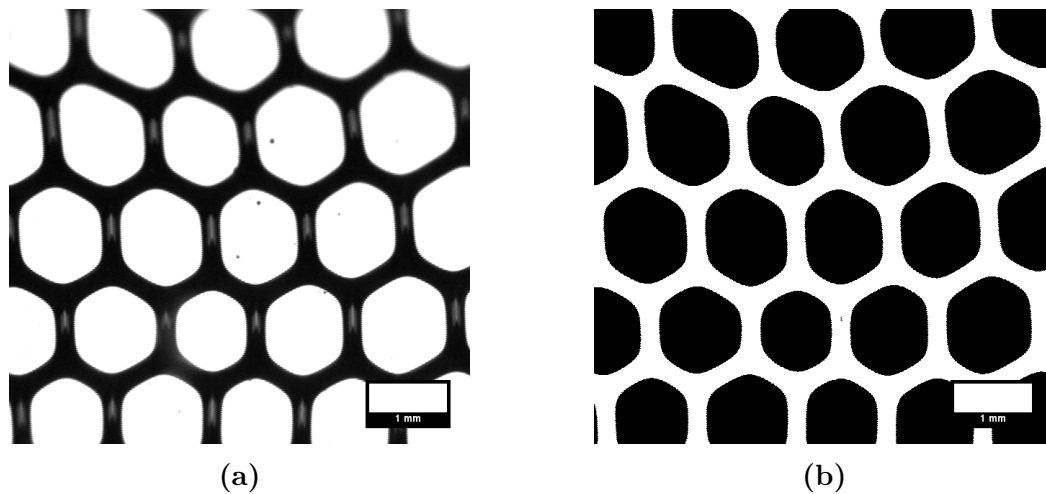


FIGURE 8.3: Photographies de bulles à la paroi de la colonne du FoamScan. (a) Photographie originale prise avec une caméra et un objectif télécentrique (b) Même image binarisée et inversée. La phase liquide est alors en blanc et la phase gazeuse en noir.

Nous utilisons ensuite le logiciel ImageJ pour binariser et inverser les photographies (figure 8.3b). La binarisation est une étape délicate du traitement d'image. En effet, il est important de choisir un seuil permettant de respecter le plus fidèlement possible l'image originale. Le choix du seuillage peut notamment être complexe dans les mousses très polydisperses ou les mousses composées de petite bulles ($< 50 \mu\text{m}$) car il devient difficile de savoir si les bulles sont réellement à la surface ou légèrement plus loin. De plus, un éclairage trop faible, entraînant un manque de contraste, ou un éclairage non homogène, créant une grande hétérogénéité dans le contraste, peuvent également engendrer une erreur sur la fraction liquide surfacique. Une fois cette étape réalisée, la fraction liquide surfacique est déterminée grâce au rapport entre nombre de pixels noirs et le nombre total de pixels sur l'image. La figure 8.3 montre un exemple de surface d'une mousse avec une fraction volumique de $\phi = 1.8 \%$. Pour cette mousse, la fraction surfacique est $\phi_s = 34 \%$.

Cette technique de mesure comporte une tendance systématique à sous-estimer légèrement la fraction de surface. D'une part, la lentille télécentrique permet une petite variation dans l'angle des rayons lumineux détectés. D'autre part, le seuil, qui sert à transformer la photographie en une image en noir et blanc a tendance à réduire légèrement la limite des zones noires. Nous estimons que la combinaison des deux erreurs entraîne une sous-estimation allant jusqu'à 5 % de la fraction liquide de surface.

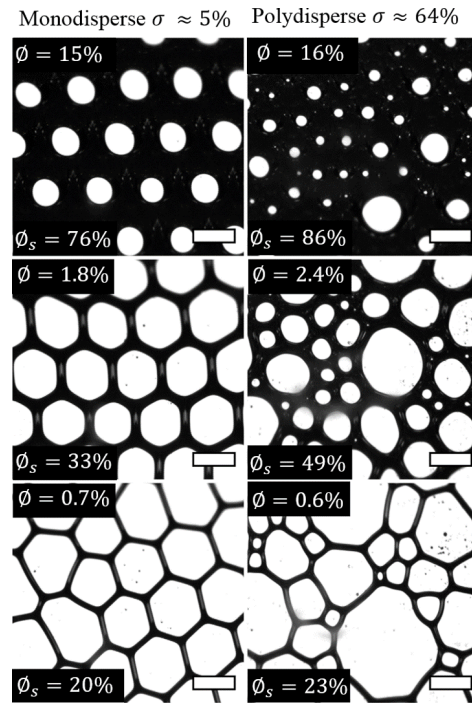


FIGURE 8.4: Exemple de photographies prises à la surface de la mousse à travers le prisme pour trois fractions liquides volumiques différentes (15 %, 2 % et 0.6 %) et pour deux polydispersités σ différentes (5 % et 64 %). L'échelle est de 1 mm.

8.2 Résultats expérimentaux

Grâce à ce montage expérimental, il est donc possible d'étudier l'évolution de la fraction liquide surfacique avec la fraction liquide volumique, en faisant varier différents paramètres tels que la polydispersité et la taille des bulles.

Sur la figure 8.4 sont représentées différentes photographies de la surface pour deux mousses de différentes polydispersités. La colonne de gauche correspondent à une mousse dont la polydispersité est $\sim 5\%$ et celle de droite, à une mousse de polydispersité $\sim 64\%$. En allant du haut vers le bas, la fraction liquide volumique diminue pour les deux mousses. On peut remarquer que lorsque ϕ diminue, ϕ_s diminue aussi. On voit également que les bulles sont de plus en plus polyédriques et que les pseudo-bords de Plateau sont de plus fins. Ces observations correspondent à ce que l'on attend lors de la diminution de la quantité de liquide dans une mousse.

La figure 8.5 montre les données expérimentales pour la fraction surfacique ϕ_s en fonction de la fraction volumique ϕ sur un ordre de grandeur de tailles de bulles ($0.1 \text{ mm} < \langle R \rangle < 2 \text{ mm}$) et une large gamme de polydispersités ($1\% < \Omega < 64\%$). Les symboles pleins correspondent à des mesures effectuées une fois la mousse en équilibre, c'est-à-dire une fois que la fraction volumique est constante pour un débit Q donné du liquide injecté (expériences de drainage forcé en régime stationnaire). Chacun des points est obtenu en faisant la moyenne de ϕ_s sur 10 images. Les images utilisées ont été prises à une distance de 5 cm du bas du réservoir. La valeur de ϕ est obtenue en faisant une moyenne sur les 10 valeurs mesurées au moment où ces images ont été prises. Les symboles ouverts correspondent à des conditions dynamiques, c'est-à-dire que la fraction liquide volumique change au cours du temps, car la fraction liquide varie continuellement pendant la mesure. Dans ce cas, chaque point correspond à une seule mesure. Ces derniers sont donc plus enclins aux erreurs résultant d'effets dyna-

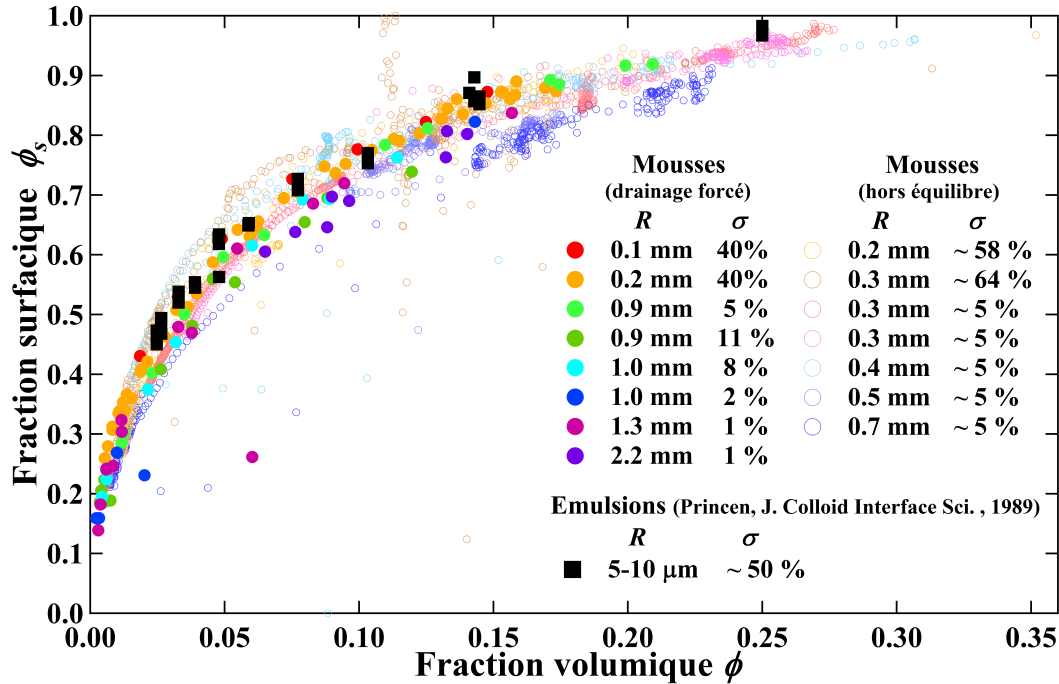


FIGURE 8.5: Résultats expérimentaux reliant la fraction liquide surfacique ϕ_s à la fraction liquide volumique ϕ pour un grand intervalle de tailles de bulles, $\langle R \rangle$ (0.1 – 2 mm) et de polydispersité σ (1 – 64 %). Nous avons également ajouté les données obtenues par Princen [52] en utilisant des émulsions de $\langle R \rangle \approx 5 - 10 \mu\text{m}$ et $\sigma \approx 50 \%$.

miques ou au simple manque de statistique. On constate que les données générées par les deux protocoles se regroupent sur une seule courbe sans influence systématique de la taille des bulles, de la polydispersité ou du protocole de mesure. Cependant, un certain nombre de points des expériences en drainage libre ne sont pas sur la courbe ce qui peut être dû à un problème de traitement d'image. En effet, les bulles se déplacent dans la mousse lors du drainage ce qui peut rendre ces images floues.

Nous avons également ajouté un ensemble de données obtenues en 1984 par H. Princen pour des émulsions avec des tailles de gouttelettes beaucoup plus petites ($\langle R \rangle = 5 - 10 \mu\text{m}$) et dans la même gamme de polydispersités ($\sigma = 50 \%$) [52]. Cet ensemble de données coïncide (carrés noirs) avec nos données sur les mousses, indiquant une relation sous-jacente commune.

8.3 Interprétation des résultats et modélisation

Pour interpréter ces résultats, nous proposons deux approches. La première est un modèle basé sur les relations entre les pressions présentes dans une mousse et l'énergie interfaciale. Ce modèle conduit à une solution numérique. La seconde approche est une approximation géométrique permettant de relier ϕ et ϕ_s de façon simple. Cette seconde approche est rendue possible par le fait que la taille des bulles et la polydispersité n'interviennent pas dans la relation entre ϕ et ϕ_s .

8.3.1 Description basée sur l'énergie

Afin de comprendre et d'interpréter ces résultats expérimentaux, il faut considérer les principales relations entre les pressions dans une mousse. Dans cette expérience,

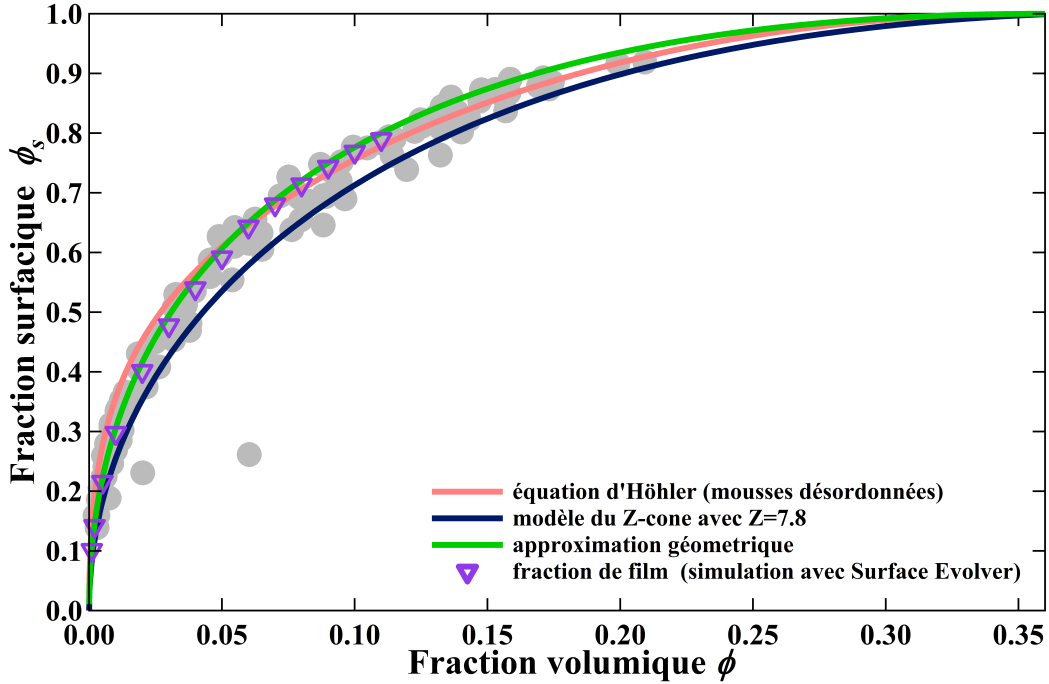


FIGURE 8.6: Différents modèles théoriques en accord avec les données expérimentales (en gris sur la figure). Les résultats de simulation de fraction de film en fonction de la fraction liquide volumique sont représentés par les triangles violets. Ces simulations ont été réalisées avec Surface Evolver (A. M. Kraynik et D. A. Reinelt, non publié)

les mesures sont réalisées à une même hauteur, il est donc possible de négliger la variation de pression hydrostatique. De plus, le drainage forcé en régime stationnaire permet d'avoir une fraction liquide volumique homogène dans toute la mousse. Ainsi, on peut considérer que la pression du liquide P_l est homogène dans la zone de mesure considérée. Dans une mousse désordonnée avec une faible polydispersité, la pression du gaz, P_g varie légèrement entre les bulles [7, 78]. Puisque cette variation est petite en comparaison avec $P_g - P_l$, nous considérerons P_g constant à travers la mousse. Il en va de même pour les bulles en contact avec la paroi. Nous verrons que la comparaison avec nos résultats expérimentaux (Figure 8.6) semble justifier cette hypothèse même si une étude plus approfondie des conséquences de cette approximation serait nécessaire. Enfin, P_g est suffisamment petit ($P_g < 1000$ Pa) pour pouvoir estimer le gaz comme incompressible. Ceci implique une pression capillaire constante à travers la mousse.

Les bulles en contact avec la paroi créent un film plat avec la surface solide. Ce film draine par succion capillaire jusqu'à ce qu'un équilibre avec les forces de répulsion entre la surface des bulles et de la paroi soit atteint. Or à l'équilibre, une bulle exerce une force sur la paroi égale au produit de la pression de disjonction pour la surface de contact avec la paroi. Une paroi en contact avec une mousse de fraction surfacique ϕ_s subit donc une pression $\Pi_d = (1 - \phi_s)P_c$.

Cette pression macroscopique exercée par les bulles sur une paroi est la pression osmotique Π vue dans la section 2.3. Ceci permet d'écrire une relation reliant la pression capillaire, P_c , la pression osmotique et la fraction surfacique, ϕ_s :

$$(1 - \phi_s)P_c = \Pi(\phi). \quad (8.2)$$

Par ailleurs, dans une mousse, la pression osmotique est proportionnelle à la dérivée de l'énergie interfaciale, E par rapport au volume pour un volume de gaz, V_g constant,

soit

$$\Pi = - \left[\frac{\partial E}{\partial V} \right]_{V_g = \text{const}}. \quad (8.3)$$

De plus, de nombreuses études [14, 31, 53] montrent que la pression capillaire P_c et la pression osmotique Π d'une mousse de volume V sont reliées par

$$\Pi(\phi) = (1 - \phi)P_c - \frac{2}{3} \frac{E}{V}. \quad (8.4)$$

En injectant l'équation 8.2 dans l'équation 8.4, nous pouvons écrire

$$\frac{(1 - \phi)}{(1 - \phi_s)} = 1 + \frac{2}{3} \frac{E}{\Pi V}. \quad (8.5)$$

Une forme approximative de l'équation 8.5, valable pour la limite sèche avait déjà été donnée par D. Weaire et S. Hutzler (équation (3.42) dans [78]). Il est intéressant de remarquer que dans le cas d'une mousse 2D ordonnée, l'équation 8.5 peut être dérivée rigoureusement. on obtient une expression similaire sauf que le pré-facteur $2/3$ est remplacé par $1/2$.

L'équation (8.5) et l'équation (8.3) suggèrent que nous devons connaître $E(\phi)$ ou $\Pi(\phi)$ pour un échantillon donné afin de relier la fraction surfacique et la fraction volumique. De nombreuses expériences et simulations numériques [16] ont montré que $E(\phi)$ et $\Pi(\phi)$ sont remarquablement indépendants de la structure détaillée de la mousse pour un grand nombre d'échantillons. Il s'ensuit la possibilité de choisir une fonction représentative pour $E(\phi)$ ou $\Pi(\phi)$, après quoi une estimation de la relation surface-volume peut être déduite. Dans ce qui suit, nous proposons deux choix possibles.

R. Höhler *et al.* [33, 44] suggèrent une expression semi-empirique pour la pression osmotique :

$$\Pi = k \frac{\gamma}{R_{32}} \frac{(\phi_c - \phi)^2}{\sqrt{\phi}}, \quad (8.6)$$

avec $R_{32} = \frac{\langle R^3 \rangle}{\langle R^2 \rangle}$ le rayon moyen de Sauter. Pour cette étude, nous avons considéré $R_{32} = \langle R \rangle$. Le pré-facteur k dépend du type de la mousse. $k \approx 3.2$, pour une mousse polydisperse désordonnée ($\phi_c \approx 0.36$) et $k = 7.3$, pour une mousse monodisperse ordonnée ($\phi_c = 0.26$) [33, 44]. L'intégration numérique de l'équation (8.6) donne l'énergie interfaciale $E(\phi)$, ce qui permet d'obtenir la relation entre les fractions surfacique et volumique via l'équation 8.5.

Les prédictions résultantes pour des mousses désordonnées sont représentées sur la figure 8.6. Les points gris représentent les données expérimentales obtenues par les expériences de drainage forcé en régime stationnaire. Le modèle décrit très bien les données expérimentales jusqu'à $\phi = 0.15$. Si ceci est attendu pour les mousses polydisperses, qui sont par nature désordonnées, cela peut sembler surprenant pour les mousses monodisperses. En effet, sur la colonne de gauche de la figure 8.4, la mousse monodisperse semble parfaitement ordonnée. Cependant, un effet de bord intervient [46]. Ainsi, la présence des parois augmente l'ordre à la surface alors que la mousse est plus désordonnée dans le volume.

Une autre expression de l'équation (8.5) peut être obtenue en utilisant le modèle des Z cônes [34, 50, 79] qui considère une bulle à Z faces comme étant composée de Z cônes de volume égal. Ceci permet d'avoir une expression analytique de l'énergie interfaciale

et de la pression osmotique en fonction de la fraction volumique pour un nombre Z donné de contacts d'une bulle (Annexe A de la référence [79]). Ce modèle s'applique pour des mousses monodisperses ordonnées mais donne une approximation raisonnable pour les mousses polydisperses désordonnées que nous étudions, à condition de choisir judicieusement la valeur de Z .

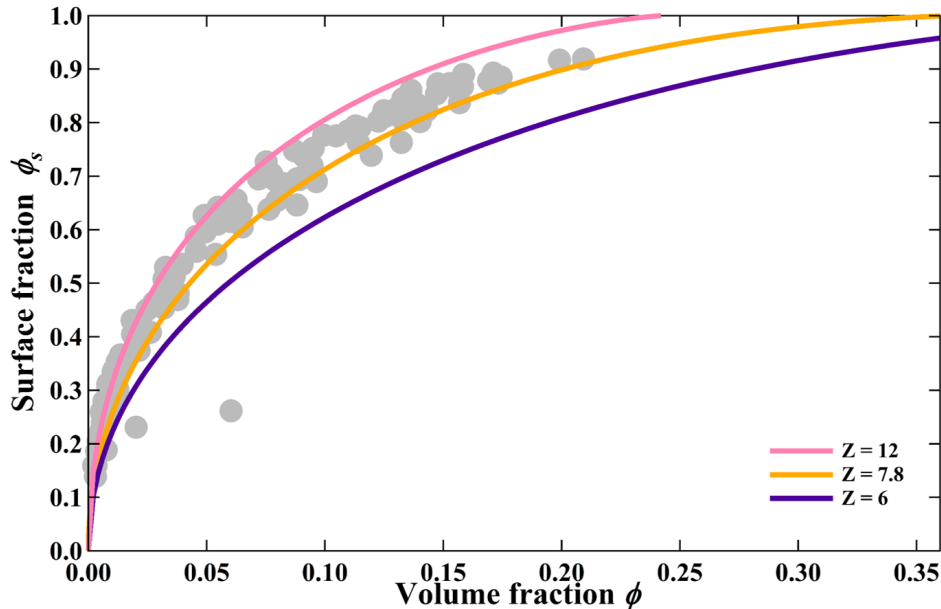


FIGURE 8.7: Fraction surfacique en fonction de la fraction volumique pour le "Z-cone model" avec trois valeurs Z ($Z = 6, 7.8$ and 12). Les points en gris sont les données expérimentales extraites de la figure 8.5.

Puisque Z représente le nombre de cônes d'égal volume ou le nombre de faces des bulles constituant la mousse, c'est aussi le nombre moyen de voisins des bulles. Par exemple, si $Z = 6$ cela signifie qu'en moyenne les bulles ont 6 voisins. La figure 8.7 montre la fraction surfacique, ϕ_s , en fonction de la fraction volumique, ϕ , pour $Z = 6$ en violet, $Z = 12$ en rose et $Z = 7.8$ en orange. Cette dernière valeur de Z permet le meilleur accord entre le modèle des Z cônes et les données expérimentales. Les points gris sont les données expérimentales pour les expériences de drainage forcé en régime stationnaire. Pour $Z = 12$, il y a un bon accord entre le modèle des Z cônes et les données expérimentales pour les faibles fractions volumiques. Cette bonne corrélation est due au fait que dans une mousse sèche, les bulles ont de nombreux voisins. Dans la limite d'une mousse monodisperse avec une fraction liquide élevée $Z = 6$ car les bulles ont un nombre de voisins moins important. Sur la figure 8.7, on peut voir que l'accord entre le modèle calculé pour $Z = 6$ et les données est peu concluant. Néanmoins le montage expérimental ne nous permet pas d'avoir $\phi > 25\%$. Enfin, pour $Z = 7.8$, valeur intermédiaire entre les deux limites, les variations de la fraction surfacique avec la fraction volumique sont bien décrites sur l'ensemble des données expérimentales.

8.3.2 Approximation géométrique

Les comparaisons de la figure 8.6 montrent qu'il existe un suffisamment bon accord pour permettre de justifier l'utilisation de la mesure en surface afin d'estimer la fraction volumique. L'utilisation des modèles permettant de déterminer $E(\phi)$ et $\Pi(\phi)$, conduit à des expressions complexes. Nous avons poursuivi notre analyse par une approximation

basée uniquement sur des arguments géométriques. Ces arguments sont stimulés par le fait que l'équation (8.5) peut être écrite en termes d'aire surfacique et de fraction de surface/volume uniquement, en utilisant $E = \gamma S$ et l'équation (8.3). Dans ce modèle simplifié, la mousse est considérée comme un réseau de canaux liquides de largeur caractéristique w et de longueur caractéristique proche du rayon R des bulles [7, 78], ainsi $\phi \propto w^2 R/R^3 = (w/R)^2$. De même, pour la fraction surfacique, il est possible d'écrire $(1 - \phi_s) \propto (1 - w/R)^2$. En combinant ces deux équations et sachant que $1 - \phi_s = 0$ quand $\phi = \phi_c$, on obtient la relation (8.7)

$$1 - \phi_s = \left(1 - \sqrt{\frac{\phi}{\phi_c}}\right)^2. \quad (8.7)$$

Ce genre de relation avait déjà été proposé par Princen [52, 54] et Hilgenfeldt [30], mais avec une légère différence dans les pré-facteurs. Les valeurs de ϕ_s calculées avec l'équation 8.7 sont montrées sur la figure 8.6, et s'avère être une bonne approximation des données expérimentales et en bon accord avec les autres modèles. La simplicité de cette relation peut surprendre mais le calcul analytique complet (Annexe I dans [52]) pour une mousse 2D ordonnée donne la même relation avec une puissance "1" au lieu de "2". Pour des raisons pratiques, l'utilisation de cette relation (8.7) peut être suffisante.

8.4 Conclusion et perspectives

En conclusion, nos mesures expérimentales montrent qu'il existe une relation bien définie entre les fractions liquides volumique et surfacique. Nous avons démontré que cette relation peut être modélisée grâce aux différentes pressions en jeu dans la mousse et à sa surface et conduit à l'équation 8.5. Cette expression semble indépendante de la polydispersité et de la taille des bulles tout du moins dans l'intervalle testé. Une dépendance avec la polydispersité est attendue pour des valeurs de fraction liquide proches de la fraction liquide critique ϕ_c , mais notre montage expérimental ne permet pas d'approcher suffisamment cette valeur.

La prise d'images de mousses en contact avec une paroi transparente peut ainsi remplacer d'autres techniques de mesure telles que la mesure de la conductivité ou la mesure de masse pour obtenir la fraction liquide volumique. L'un des avantages de cette technique est de ne pas tenir compte de la physico-chimie de l'échantillon contrairement à la conductivité. Par exemple, elle s'avère très utile dans l'analyse de mousses d'émulsions, dotées de gouttes d'huile non conductrice. Pour des raisons pratiques, la relation géométrique donnée par l'équation 8.7 peut être utilisée pour lier les deux fractions liquides avec une bonne précision pour des mousses avec $\phi < 15\%$.

Dans cette étude, nous nous sommes focalisés sur les mousses. Cependant, nos arguments sont valables pour toutes les dispersions liquides dans lesquelles la tension interfaciale est constante et dans lesquelles l'énergie pertinente est l'énergie interfaciale. Ceci est en accord avec les données sur les émulsions de Princen et al [52] montrées sur la figure 8.6.

Dans le domaine des dispersions, une question liée à celle posée dans ce chapitre est de savoir quelle est la fraction de surface d'une bulle ou d'une goutte couverte par la phase continue. Ou, à l'inverse, quelle est la fraction surfacique de bulles/gouttes qui n'est pas couverte par la phase continue et correspond donc aux films. Ce paramètre est d'une grande importance pour la description de la rhéologie et du vieillissement des

mousses. Sur la figure 8.6, nous avons représenté la fraction surfacique moyenne de films pour une mousse périodique de Kelvin obtenue grâce à des simulations réalisées avec Surface Evolver par A.M. Kraynik et D.A. Reinelt. Nous pouvons voir un bon accord entre ces données et la fraction liquide surfacique. De plus, des expressions similaires à l'équation 8.7 ont déjà été utilisées pour modéliser le vieillissement de mousses [30]. Ceci semble indiquer que notre expression à la fraction liquide surfacique peut être étendue, avec une bonne approximation, pour la fraction liquide à la surface des bulles/gouttes en volume. Néanmoins, une plus ample analyse sur cette question est nécessaire.

Chapitre 9

Diffusion multiple de la lumière et loi de croissance dans le régime auto-similaire de mousses sèches et humides

Sommaire

6.1	Mûrissement de mousses 2D	62
6.1.1	Loi de von Neumann	62
	Loi de Laplace à 2D	63
6.1.2	Modification apportée par Schimming à la loi de von Neumann pour les mousses humides	63
6.2	Perméabilité des films : Modèle du sandwich	65
6.3	Méthodes de mesure de la perméabilité	66
6.3.1	Méthode de la bulle diminuante	66
6.3.2	Appareil de mesure de la perméabilité des films	67
6.3.3	Diffusion au travers de films dans un cylindre	67
6.3.4	Méthode du temps catastrophique	68
6.4	Mesure de la perméabilité des films	69
	A partir du calcul de von Neumann	69
	A partir du calcul de Schimming	70
6.5	Conclusion	72

Dans le régime auto-similaire (section 6.1) toutes les distributions adimensionnées (taille de bulles et nombre de voisins) restent constantes au cours du temps. Cependant, les bulles continuent de grossir à cause du mûrissement. Dans ce chapitre, nous rappellerons dans un premier temps, la technique de la diffusion multiple de la lumière et ses conditions de validité. Dans un second temps, nous allons nous intéresser à la loi de croissance : $\langle R \rangle \propto t^\beta$ des bulles pour les mousses sèches et humides. La théorie prédit que $\beta = 1/2$ pour les mousses sèches et $\beta = 1/3$ pour $\phi \gg \phi_c$. Après un retour sur la théorie liée aux lois de croissance, nous ferons un résumé des différentes méthodes expérimentales qu'il est possible d'employer afin de mesurer l'évolution de la taille des bulles. Enfin, nous comparerons différents résultats expérimentaux de la littérature avec la théorie.

9.1 Diffusion multiple de la lumière

Les méthodes optiques sont très utiles pour étudier les propriétés structurales des milieux. Ainsi, dans les milieux dilués, il est possible d'utiliser des méthodes issues de la diffusion simple pour obtenir des informations sur la taille des particules, par exemple. Dans les milieux concentrés tels que les mousses, les théories de la diffusion simple ne sont plus applicables car la lumière est diffusée plus d'une fois par les particules composant le milieu. Une technique dérivée de la diffusion simple de la lumière a été développée dans les années 90 et permet d'étudier la structure des milieux très diffusants. Cette technique s'appelle la diffusion multiple de la lumière, nous en présenterons deux versions : la transmission diffuse de la lumière ou DTL (pour Diffusive Transmission Light) et la diffusion dynamique de la lumière ou DWS (pour Diffusive Wave Spectroscopy). Dans la diffusion multiple de la lumière, une grandeur importante est le libre parcours moyen de transport l^* . Cette longueur correspond à la distance nécessaire pour qu'un photon n'ait plus aucune mémoire de sa direction de propagation initiale (Figure 9.1).

Les mousses sont des milieux très diffusants car la lumière est réfléchiée et réfractée par les multiples interfaces liquide/gaz. La diffusion multiple de la lumière est donc un bon outil pour étudier leur structure.

9.1.1 Libre parcours moyen de transport

En 2001, Vera *et al.* [73] ont montré que le libre parcours moyen de transport est proportionnel au rayon des bulles et décroît quand la fraction liquide croît. Les

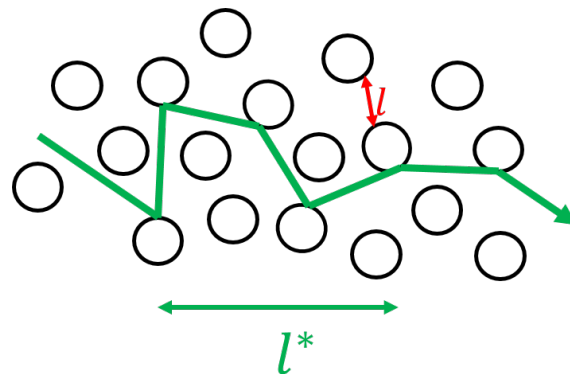


FIGURE 9.1: Représentation du parcours d'un photon au travers un milieu diffusant. l^* est le libre parcours moyen de transport et l la distance entre chaque particule diffusante.

auteurs ont réalisé des expériences au cours desquelles, ils ont mesuré l^* pour différentes tailles de bulles, différentes fractions liquide mais également pour plusieurs épaisseurs de cellule. Ils montrent que le rapport entre l^* et le diamètre des bulles D diminue lorsque la fraction liquide augmente. En considérant que la lumière est majoritairement diffusée par les bords de Plateau ce qui semble raisonnable puisqu'ils contiennent la plus grande partie du liquide, on peut écrire que :

$$\frac{l^*}{2R} = \sqrt{\frac{1}{\phi}}. \quad (9.1)$$

Or, d'après les expériences menées par Vera *et al.*, les données semblent être bien décrites par l'équation empirique suivante :

$$\frac{l^*}{2R} = 1.5 + \frac{0.4}{\phi}, \quad (9.2)$$

ce qui peut signifier que la diffusion au niveau des vertex ou des films est non négligeable. Une autre possibilité est que les photons n'ont pas une marche aléatoire dans les mousses. En 2003, Gittings *et al.* [27] se sont intéressés à cette dernière hypothèse et ont réalisé des expériences et simulations permettant de mettre en évidence le chemin parcouru par les photons dans la mousse. Ils montrent que les photons se trouvent principalement dans les bords de Plateau mais qu'ils possèdent une marche aléatoire uniquement à l'échelle locale. l^* est plus grand dans le gaz que dans le liquide. Il semble donc qu'il y ait une corrélation entre la direction de propagation des photons et la structure locale de la mousse. Néanmoins, par la suite, nous utiliserons l'équation 9.1 comme beaucoup d'autres auteurs.

9.1.2 Transmission diffuse de la lumière

La transmission diffuse de la lumière ou DTL est une technique de diffusion de la lumière permettant d'étudier le mûrissement des mousses 3D. Dans cette technique, l'intensité transmise d'un laser collectée après le passage dans le milieu diffusant (Figure 9.2) est donnée par :

$$T = \frac{1 + z_e}{\frac{e}{l^*} + 2z_e}, \quad (9.3)$$

où e est l'épaisseur du milieu diffusant traversée par le laser. Le paramètre z_e est

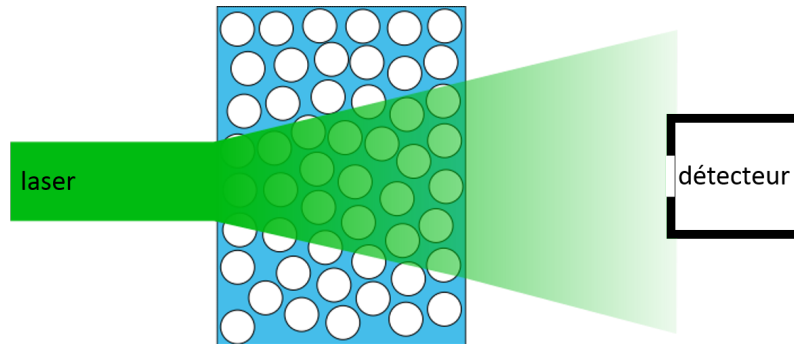


FIGURE 9.2: Représentation de la transmission dynamique de la lumière. Le laser traverse la mousse et est diffusé par les interfaces. Un détecteur est situé de l'autre côté de la mousse.

déterminé à l'aide de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence du laser et dépend de la composition de l'échantillon et des plaques transparentes (taille et indice optique) confinant l'échantillon. Dans la limite $e \gg l^*$

$$T \approx \frac{l^*}{e} \approx \frac{R}{e\sqrt{\phi}}. \quad (9.4)$$

Cette limite est l'approximation de diffusion multiple et peut être utilisée lorsque les photons sont considérés comme des marcheurs aléatoires dont la longueur de pas est le libre parcours moyen de transport l^* , ce qui donne lieu à un coefficient de diffusion $D = \frac{cl^*}{3}$ où c est la vitesse de la lumière dans le milieu. Sachant que l^* est donné par

l'équation 9.1, l'intensité transmise est proportionnelle à la taille moyenne des bulles et diminue lorsque la fraction liquide augmente. Ainsi en connaissant la fraction liquide, il est possible de déduire la taille des bulles et inversement. Cette technique est donc très utile pour regarder l'évolution de la taille des bulles au cours du temps et donc effectuer l'étude du mûrissement et des lois de croissance dans les mousses sèches et humides.

9.1.3 Diffusion dynamique de la lumière

La diffusion dynamique de la lumière ou DWS est une seconde technique de diffusion de la lumière permettant de mettre en évidence les réarrangements dans les milieux diffusants concentrés. Pour cela, ce n'est plus l'intensité transmise qui est utilisée mais la dynamique de l'intensité transmise ou rétrodiffusée. Les "speckles" sont un ensemble de taches dont l'intensité fluctue rapidement au cours du temps. Ils sont dus à la diffusion d'un faisceau cohérent, tel qu'un laser, à travers un milieu composé de nombreuses particules diffusantes. En effet, les déplacements dans le milieu, par exemple des bulles dans une mousse, entraînent des fluctuations (temporelles et spatiales) de ces speckles. Cette technique est mise en œuvre pour étudier les réarrangements T1 et T2 dans la mousse. La DWS peut être réalisée en transmission, ce qui permet d'avoir des informations sur le volume ou en rétrodiffusion, ce qui permet d'obtenir des informations sur la mousse proche des parois.

9.1.4 Conditions nécessaires pour la diffusion multiple de la lumière

Comme nous l'avons vu précédemment, il est nécessaire d'être dans des conditions particulières afin de s'assurer que la lumière est suffisamment diffusée. En effet, en DWS, la principale condition est l'approximation dite de diffusion multiple. En 1993, Kaplan et al [38] ont déterminé expérimentalement qu'il était nécessaire d'avoir une cellule d'épaisseur e telle que $\frac{e}{l^*} > 10$ pour que l'approximation de diffusion multiple soit valable. Pour déterminer cette valeur, ils ont mesuré l^* pour différentes épaisseurs grâce à l'intensité transmise. Ils ont également déterminé l'épaisseur de la cellule en fonction de le diamètre du faisceau en mesurant l^* pour différentes tailles de faisceaux laser et de cellules et ils ont montré que la taille du faisceau laser doit être au moins 5 fois plus petite que l'épaisseur de la cellule.

Nous avons réalisé un montage expérimental respectant ces conditions et nous utiliserons la transmission diffuse de la lumière pour étudier le mûrissement de mousses de différentes compositions chimiques. La technique de DWS est employée dans le montage expérimental "Soft Matter Dynamics" de l'ISS que nous verrons dans le chapitre 11.

9.2 Évolution de la taille moyenne des bulles au cours du temps dans le régime auto-similaire

De nombreuses études ont été réalisées dans les années 80-90 dans le domaine de la métallurgie afin de déterminer la vitesse de grossissement des domaines lors d'une séparation de phase. Il existe deux cas limites selon la densité des domaines. Le premier cas est obtenu dans la limite de domaines en contact les uns avec les autres, ce qui

est analogue à une mousse sèche. Le second cas est obtenu dans la limite de domaines sphériques, analogue à un liquide bulleux.

9.2.1 Loi de croissance dans une mousse sèche

Lors du mûrissement, la taille des bulles augmente ou diminue à cause de la loi de Laplace. En faisant l'hypothèse que cette augmentation ou diminution de volume est proportionnelle au flux de gaz qui diffuse au travers des films, on obtient :

$$u = k\Delta P \quad (9.5)$$

où $u = \frac{dr}{dt}$ est la vitesse de grossissement, k est une constante et ΔP la différence de la pression entre deux bulles. En utilisant la loi de Laplace, on a $\frac{dr}{dt} \propto \frac{1}{r}$. L'intégration de cette équation permet d'obtenir la loi de croissance pour les mousses sèches :

$$\langle r \rangle \propto t^{1/2} \quad (9.6)$$

9.2.2 Loi de croissance dans un liquide bulleux ($\phi > \phi_c$)

Dans les liquides bulleux, il est possible d'utiliser la même méthode afin d'obtenir la loi de croissance des bulles. Il faut prendre en compte la présence d'un volume de liquide entre les bulles, ce qui revient à prendre en compte la diffusion de gaz dans le liquide grâce à la loi de Fick soit :

$$j = \frac{dN}{Adt} = D\nabla c_i \quad (9.7)$$

avec j le flux molaire, c_i la concentration molaire de gaz dans le liquide, D le coefficient de diffusion et A la surface d'échange entre deux bulles. Grâce à la loi des gaz parfaits, il est possible d'écrire $\frac{1}{V_m} \frac{dV}{dt} = \frac{A}{V_m} \frac{dr}{dt} = \frac{DA}{RT} \frac{d\Delta P}{dr}$ avec V_m le volume molaire. Comme précédemment, la différence de pression étant donnée par la loi de Laplace, on obtient :

$$\frac{dr}{dt} \propto \frac{d(\frac{1}{r})}{dr} \propto \frac{1}{r^2} \quad (9.8)$$

La loi de croissance pour les liquides bulleux est alors donnée par :

$$\langle r \rangle \propto t^{1/3} \quad (9.9)$$

On s'attend à ce que le changement d'exposant se produise au voisinage de ϕ_c .

9.2.3 Hypothèse d'autosimilarité

Afin de confirmer les valeurs du coefficient β , il est nécessaire d'avoir une distribution auto-similaire c'est-à-dire que les distributions adimensionnées restent constantes et que la pression capillaire soit le moteur du phénomène de diffusion. En 1986, Mullins [48] a testé l'hypothèse de l'auto-similarité pour différents cas et calculé ainsi les vitesses de grossissement de particules. Il a ainsi montré que dans la majorité des cas l'autosimilarité n'est pas prouvée alors même que les lois de croissance sont observées. Ceci signifie qu'il est nécessaire d'être dans le régime auto-similaire pour observer la loi de croissance mais que d'observer cette loi n'est pas suffisant pour dire que la mousse est dans le régime auto-similaire.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons nous intéresser aux différentes expériences qui ont été réalisées pour mettre en évidence cette loi de croissance dans les mousses sèches et les mousses humides.

9.3 Expériences mettant en évidence les lois de croissance

Des expériences ont été réalisées afin de mettre en évidence la loi de croissance dans les mousses. La plupart d'entre elles ont été faites sur des mousses sèches mais quelques expériences ont été réalisées sur des mousses humides. Outre la TDL présentée précédemment, d'autres méthodes ont été mises en œuvre.

9.3.1 Tomographie

La tomographie est une technique d'imagerie permettant d'obtenir des photographies à des profondeurs différentes de la mousse. Ces images permettent ensuite de reconstruire une image 3D de la mousse et d'obtenir le volume et le nombre de faces de chaque bulle. En 2009, Lambert *et al.* [42] ont étudié la structure de mousses de Dreft (un produit vaisselle) et de mousses à raser Gillette.

9.3.2 Imagerie par résonance magnétique

L'imagerie par résonance magnétique ou IRM va pouvoir de réaliser des images de l'intérieur d'un objet à l'aide d'un champ magnétique (de l'ordre de 1.8 T) permettant l'alignement des moments magnétiques de spin et d'un champ faiblement oscillant offrant la possibilité de modifier cet alignement et donc la mesure des signaux. Gonatas *et al.* [29] utilisent cette technique pour étudier une mousse stabilisée par de la gélatine et contenant un sel paramagnétique permettant une meilleure visualisation de la phase liquide (la seule phase visible). Une telle mousse a un temps de vie d'une semaine. Les auteurs utilisent l'IRM pour obtenir la position et la taille des bulles.

9.3.3 Mesure par DTL

La diffusion multiple de la lumière est une technique couramment utilisée dans l'étude des mousses car elle permet d'obtenir des informations sur la taille et le déplacement des bulles en utilisant l'intensité transmise et les fonctions d'autocorrélation (section 9.1). En effet, l'intensité transmise du laser est proportionnelle à la taille des bulles. De nombreuses expériences ont été réalisées pour étudier le mûrissement de mousses. Dans la plupart de ces expériences, il s'agit de l'étude de mousses à raser [19, 20, 68] dont la fraction liquide est d'environ 8 %. Quelques études réalisées avec une cellule tournante afin de garder la fraction liquide constante, ont néanmoins été réalisées à des fractions liquides plus élevées (15 % ou 20 %) à l'aide de mousses de SDS ou de caséine [10, 61, 62] mais dans ces articles, le but n'est pas de mettre en évidence la loi de croissance. Enfin une dernière étude systématique sur des mousses de SDS de différentes fractions liquides a été réalisée par Isert *et al.* [36]. Cette étude a été permise grâce à la lévitation magnétique qui élimine le drainage. Ils ont ainsi mis en évidence le changement de valeur de β entre les mousses sèches et humides.

9.4 Comparaison des différents coefficients obtenus dans la littérature

Afin de comparer les différentes valeurs de β de la littérature, nous avons retracé les courbes de tendance à partir des points expérimentaux pour les traiter tous de la même manière. Ainsi nous avons pu déterminer β pour chacune des références trouvées dans la littérature. Ces résultats sont représentés sur les figures 9.3, 9.4 et 9.5 et dans le tableau 9.1. Comme nous l'avons vu précédemment, la tomographie peut être utilisée pour mesurer β [42]. A partir des données expérimentales, nous trouvons la même loi de puissance que dans l'article avec $\beta = 0.5$.

De nombreuses études ont été réalisées avec la mousse Gillette qui permet d'avoir facilement une mousse avec de petites bulles et dont la fraction liquide est contrôlée ($\phi = 8\%$). Des études par Durian *et al.* [19, 20] utilisent cette mousse afin de comparer différentes méthodes de mesure de la croissance des bulles. Ainsi, en mesurant la taille des bulles avec des images prises au microscope optique, ils obtiennent $\beta = 0.5$ alors que lorsqu'ils utilisent différentes mesures par DWS ils obtiennent une valeur de β de 0.45 – 0.49. Une dernière étude sur la Gillette a été réalisée par Stocco *et al.* [68] et donne $\beta = 0.52$ (Figure 9.3c)

Des études utilisant la DTL ont également été réalisées par Saint-Jalmes *et al.* [61, 63] et Cervantes-Martinez [10] avec des solutions de SDS en utilisant une forme dérivée de $\langle R \rangle \propto t^\beta$ permettant d'obtenir le coefficient β en considérant régime auto-similaire les auteurs obtiennent $\beta = 0.42$ pour le SDS (Figure 9.4c). Cependant, le faible intervalle de mesure rend difficile l'analyse de ces données.

Concernant, les mousses de SDS de diverses fractions liquides effectuées en lévitation magnétique par Isert *et al.* [36], nous retrouvons avec notre traitement les mêmes valeurs de β que dans leur article (Figure 9.5). De plus, dans cet article, ils mettent en évidence une transition entre $\beta = 1/2$ et $\beta = 1/3$ pour une fraction liquide inférieure à la fraction liquide critique (environ 30%), ce qui n'est pas ce que nous attendions d'après la théorie. Nous avons réalisé des expériences avec des mousses de TTAB ont été réalisées avec cette méthode. Nous ne sommes pas parvenus à obtenir des résultats similaires à ceux obtenus avec le SDS. Cependant, le montage expérimental n'ayant pas été utilisé depuis longtemps, les résultats obtenus lors de cette série d'expériences ne sont pas concluants. Un résumé de la campagne d'expérience menée est proposé en Annexe 12.

9.5 Conclusion

De nombreuses études ont été réalisées afin de retrouver expérimentalement les valeurs de β de la loi de croissance dans les mousses sèches principalement mais également dans les mousses humides. La comparaison des différents résultats semble indiquer que dans le cas des mousses sèches, la prédiction théorique est retrouvée expérimentalement. Cependant, certaines techniques de mesure paraissent être plus précises que d'autres. De plus, il est difficile d'obtenir des valeurs de coefficient β fiables car le rayon de bulles varie sur moins d'un ordre de grandeur à cause du drainage. Seule l'étude de Isert *et al.* portant sur une analyse systématique de la valeur de β pour différentes fractions liquides met en évidence un changement de valeur entre les mousses sèches et humides. De plus, des simulations par le modèle de Potts [23] confirment également un changement de valeur de β . Cependant, la fraction liquide de transition entre les deux valeurs de β est moins franche et intervient pour une mousse plus sèche que chez Isert *et al.*

tensioactif	ϕ (%)	variable d'intérêt	technique expérimentale	temps de début	coefficient β	référence
Dreft	2 ± 0.5	$V^{2/3}$	tomographie	250 min	0.5	[42]
Mousse à raser Gillette	8	$2R$	microscope	20 min	0.52	[20]
Mousse à raser Gillette	8	l^*	DWS	20 min	0.45	[20]
Mousse à raser Gillette	8	$2R$	DTL	20 min	0.42	[19]
Mousse à raser Gillette	8	$2R$	DWS	20 min	0.42	[19]
Mousse à raser Gillette	8	$\frac{I}{I_0}$	DTL	20 min	0.52	[68]
SDS	15	$\frac{d}{d_0}$	DTL	500 s	0.42	[63]
SDS	15	$\frac{r_{PB}}{r_{PB, t=0}}$	DTL	500 s	0.43	[61]
SDS	25	$\frac{R}{R_0}$	DTL	500 s	0.35	[10]
SDS	20	$\langle R \rangle$	microscope	15 min	0.41	[36]
SDS	10	I_t	DTL	15 min	0.49	[36]
SDS	22	I_t	DTL	15 min	0.52	[36]
SDS	30	I_t	DTL	15 min	0.39	[36]
SDS	38	I_t	DTL	15 min	0.32	[36]
SDS	47	I_t	DTL	15 min	0.33	[36]

TABLEAU 9.1: Tableau récapitulant les résultats expérimentaux de la littérature.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter une étude que nous avons réalisée au cours de laquelle le drainage est éliminé par confinement de la mousse 3D. Les mesures de β sont faites par DWS.

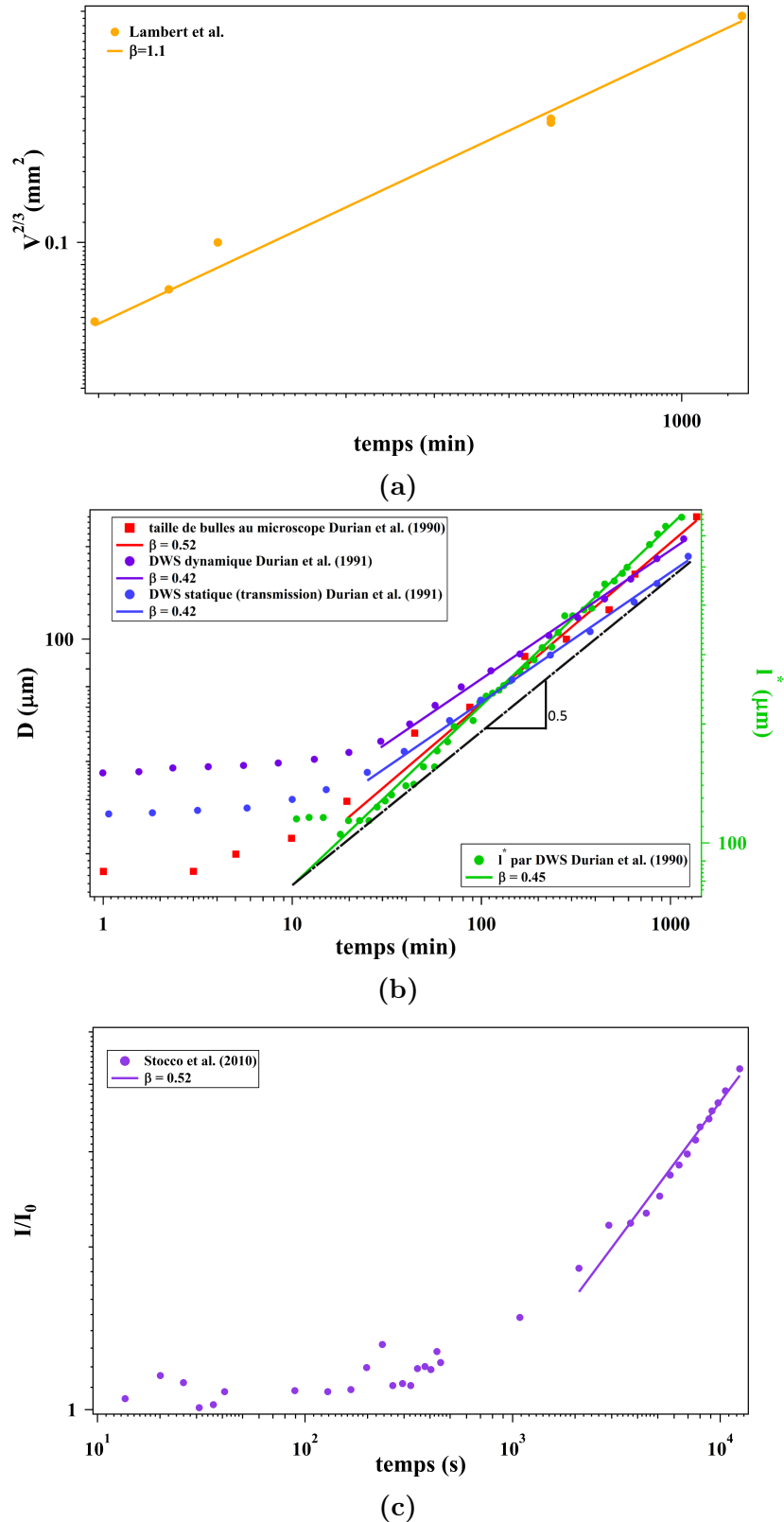


FIGURE 9.3: Résultats des expériences sur l'évolution de la taille des bulles au cours du temps. Les lois de puissance ont été extraites grâce à des courbes de tendance et en utilisant différentes données de la littérature. a) $V^{2/3}$ en fonction du temps pour une mousse de Drest de fraction liquide 2 % d'après la référence [42]. b) Diamètre en fonction du temps (axe à gauche) et I^* (axe à droite) en fonction du temps pour de la mousse à raser Gillette. Les données sont extraites des références [19, 20]. c) Intensité normalisée en fonction du temps pour une mousse à raser Gillette [68].

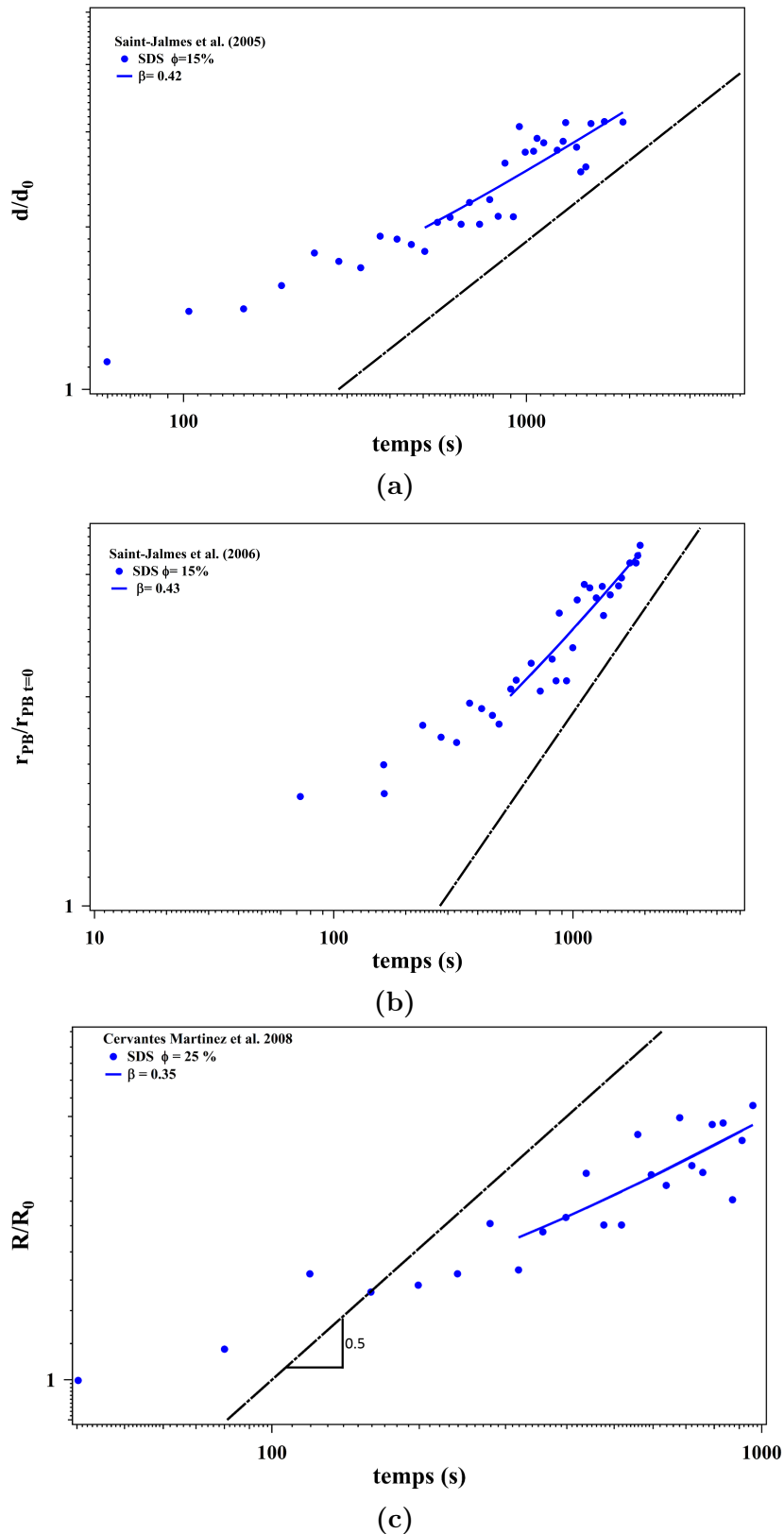


FIGURE 9.4: Deuxième partie des résultats des expériences sur l'évolution de la taille des bulles au cours du temps. Les lois de puissance ont été extraites grâce à des courbes de tendance et en utilisant différentes données de la littérature. a) Diamètre normalisé des bulles en fonction du temps pour des mousses de SDS et de caséine de fraction liquide 15 % [63]. b) Rayon des bords de Plateau normalisé en fonction du temps pour des mousses de SDS et des mousses de caséine de fraction liquide 15 % [61] c) Rayon normalisé des bulles en fonction du temps pour une mousse de SDS de fraction liquide 15 % [10].

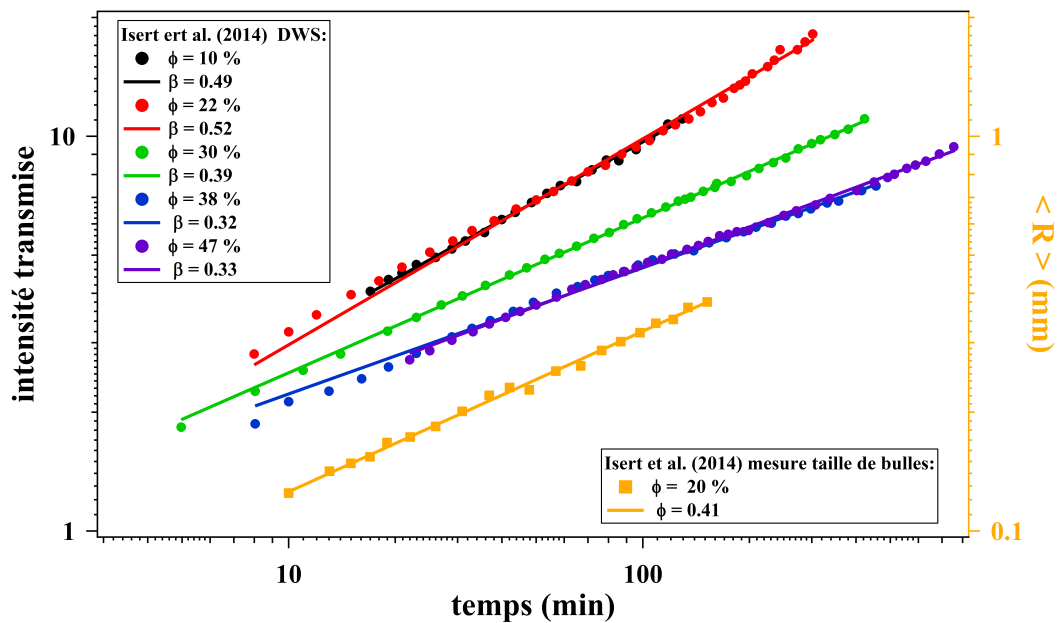


FIGURE 9.5: Troisième partie des résultats des expériences sur l'évolution de la taille des bulles au cours du temps. Les lois de puissance ont été extraites grâce à des courbes de tendance et en utilisant différentes données de la littérature. Intensité (axe à gauche) et rayon (axe à droite) des bulles en fonction du temps pour des mousses de SDS de différentes fractions liquides (10 %, 20 %, 22 %, 30 %, 38 % et 47 %) [36].

Chapitre 10

Loi de croissance dans le régime auto-similaire de mousses humides confinées

Sommaire

7.1 Pistes pour expliquer la coalescence	74
7.1.1 Pression capillaire critique	74
7.1.2 Fraction liquide critique	74
7.1.3 Taille de bulles critique	75
7.2 Étude de l'influence des paramètres sur la coalescence . .	75
7.2.1 Analyse globale, à l'échelle de la mousse	76
Influence de la pression capillaire via le rayon des pseudo- bords de Plateau	76
Influence de la fraction liquide de surface	76
Influence du rayon des bulles	77
Influence de la polydispersité	77
7.2.2 Analyse locale, à l'échelle d'une bulle	78
Informations concernant les expériences	78
Influence de la pression capillaire via le rayon des pseudo- bords de Plateau	78
Influence du rayon des bulles	79
Influence de la fraction liquide de surface	80
7.3 Conclusion	81

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, de nombreuses études ont été effectuées pour déterminer les valeurs de coefficients β des lois de croissance du rayon moyen des bulles. La majorité a été réalisée par transmission diffuse de la lumière (DTL). Dans ce chapitre, nous étudions le mûrissement de mousses humides 3D en utilisant la DTL. Le drainage est éliminé en utilisant une faible épaisseur de mousse ($e < l_c$). Après avoir analysé la validité des valeurs des β obtenues en fonction des conditions expérimentales, nous comparerons ces valeurs à celle de la littérature.

10.1 Cellule confinée

10.1.1 Principe

Le principe de cette technique est de compenser les forces liées à la gravité par les forces capillaires. Pour cela, il est nécessaire d'avoir de petites bulles. En effet, la pression capillaire étant inversement proportionnelle à la taille des bulles, plus celles-ci sont petites, plus les forces capillaires sont grandes. Les forces de gravité sont données par la pression hydrostatique qui est proportionnelle à l'épaisseur e de la cellule. Ainsi, l'augmentation de e entraîne l'augmentation des forces de gravité. Il faut donc minimiser e pour minimiser l'effet de la gravité, et réaliser la condition $l_c \geq e$.

10.1.2 Montage expérimental

Nous avons donc réalisé une expérience permettant de suivre l'évolution de la taille des bulles au cours du temps grâce à l'intensité transmise d'un laser. Nous avons fabriqué une cellule correspondant aux critères nécessaires afin d'éviter le drainage pour un intervalle de rayon donné qui dépend de la fraction liquide de la mousse dans la cellule (colonne 3 des tableaux 10.1 et 10.2). Les cellules sont faites de deux plaques de plexiglas dont la plaque supérieure est amovible. L'épaisseur entre ces plaques est fixée à l'aide d'un joint plat d'une épaisseur de 1 mm ou 2 mm. Les dimensions des cellules sont de $8 \times 8 \text{ cm}^2$ et permettent d'assurer que les bords de la cellule n'aient pas d'influence sur l'intensité transmise.

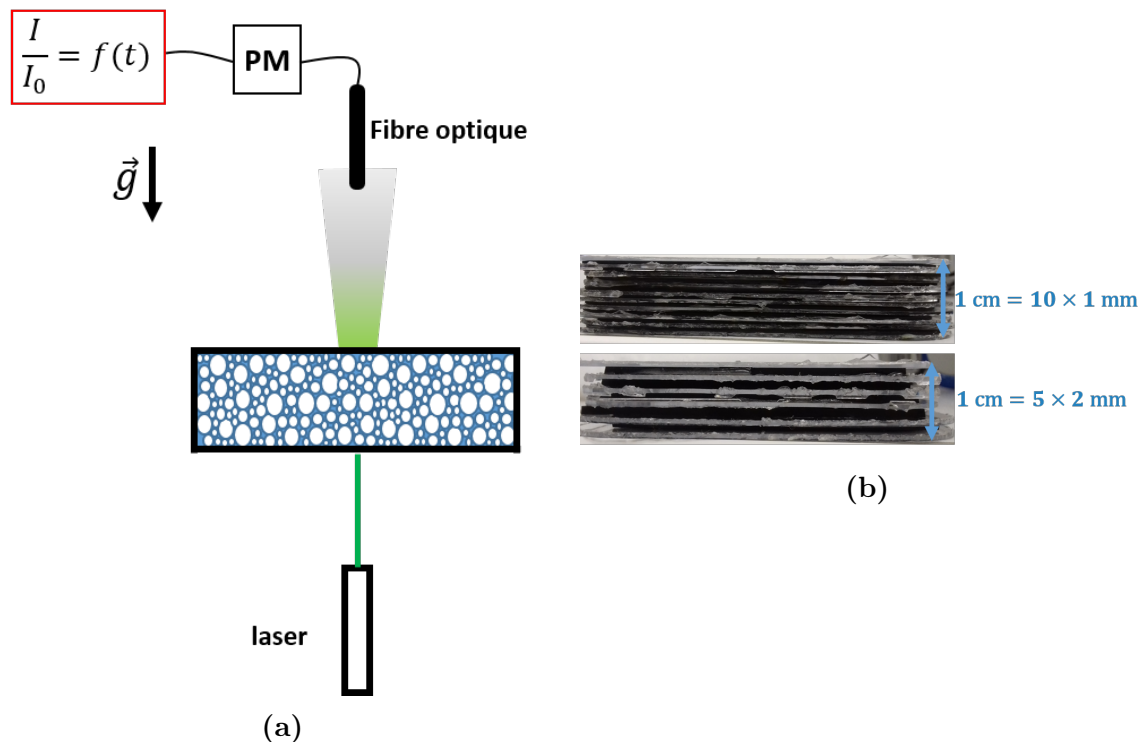


FIGURE 10.1: Montage expérimental : a) ensemble du montage composé d'un laser vert de longueur d'onde 532 nm éclairant la cellule placée horizontalement. Une fibre optique connectée à un photomultiplicateur permet de mesurer l'intensité transmise par le laser au travers de l'échantillon de mousse. b) Deux types de cellules sont utilisés. Elles mesurent 1 cm, l'une est composée de 10 cellules de 1 mm (en haut) et l'autre est composée de 5 cellules de 2 mm (en bas)

Cependant, avec une cellule d'épaisseur 1 mm ou 2 mm, les conditions de la diffusion multiple ne sont pas remplies. En effet, nous avons vu précédemment que l'épaisseur e de la cellule doit être tel que $\frac{e}{l^*} > 10$ et que la taille du faisceau laser doit être de moins de $5e$. Des cellules sont donc empilées les unes sur les autres afin de créer une cellule d'épaisseur finale de 1 cm comme le montre la figure 10.1b. L'empilement de cellules est maintenu en place par des pinces. Le reste du montage schématisé sur la figure 10.1a est composé d'un laser Compass 315M de Coherent, de longueur d'onde 532 nm et de puissance 100 mV et d'un photomultiplicateur permettant de collecter l'intensité transmise. De plus, la mesure de l'intensité transmise à travers des cellules de 10×1 mm et 5×2 mm à vide a été réalisée afin de vérifier que leur intensité intervient bien comme une simple bruit de fond.

10.1.3 Protocole expérimental

Génération de la mousse

La mousse est générée à l'aide de la méthode des doubles seringues que nous avons vue dans la section 8.1.1. Nous utilisons des solutions de TTAB, TTAB/dodécanol, TTAB/dodécanol/glycérol et TTAB/glycérol. La phase gazeuse est toujours composée d'air. Les solutions de TTAB et TTAB/dodécanol sont réalisées selon les procédures décrites dans la section 5.2.1. L'ajout de glycérol dans les solutions permet de changer la viscosité de la solution.

Remplissage de la cellule confinée

Il est nécessaire d'être deux intervenants pour cette étape car il faut à la fois continuer à mélanger la mousse dans les seringues et remplir les couches successives de cellules. La première cellule est remplie à l'aide d'une seringue en faisant attention à ne pas créer de grosses bulles puis la seconde cellule est posée sur la première, en écrasant la mousse de manière à être certain que la répartition est homogène et d'égale épaisseur. On remplit alors la cellule suivante et ainsi de suite jusqu'à obtenir une cellule complète. Ainsi, nous pouvons obtenir deux cellules différentes : 10×1 mm et 5×2 mm (Figure 10.1b). La cellule est ensuite maintenue fermée à l'aide de pinces sur tout son pourtour.

Mesure de l'évolution au cours du temps

La cellule, remplie de mousse selon le protocole décrit précédemment, est placée horizontalement sur le trajet d'un faisceau laser. Deux filtres en sortie du laser permettent d'atténuer l'intensité initiale du faisceau. Le laser est diffusé dans la mousse. Une partie de l'intensité transmise est récupérée par un photomultiplicateur relié à un auto-corrélateur permettant, d'une part, d'avoir la valeur de l'intensité transmise et, d'autre part, de mesurer l'autocorrélation et ainsi de mettre en évidence les réarrangements dans les mousses. Nous nous intéresserons ici uniquement à l'intensité transmise. En effet, comme nous l'avons vu dans la section 9.1.2, l'intensité transmise est proportionnelle à la taille des bulles. Ainsi, en regardant son évolution au cours du temps, on peut obtenir celle du rayon moyen des bulles à condition d'avoir un temps t_1 auquel l'intensité transmise et la taille des bulles sont connues et de considérer la fraction liquide comme constante au cours du temps, ce qui est rendu possible par le confinement.

En parallèle à cette étude, une cellule semblable est placée sous une caméra afin d'observer par imagerie l'évolution d'une mousse au cours du temps. Cette observation directe permet de mettre en évidence de potentiels évènements de coalescence ou des effets liés au drainage.

Mesure de la taille des bulles

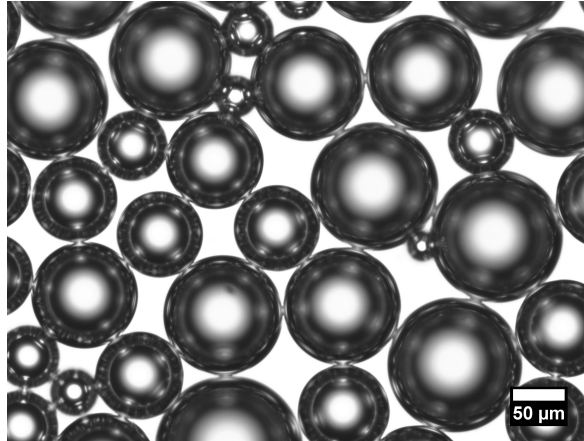


FIGURE 10.2: Image prise au microscope optique avec un objectif $\times 10$ d'une mousse de TTAB/Dodécanol de fraction liquide 30 %.

Après la génération de la mousse, une petite quantité est prélevée et placée entre lame et lamelle en ajoutant de l'eau pour séparer les bulles les unes des autres. Des images des bulles sont prises à l'aide d'un microscope optique (Figure 10.2). La taille des bulles est alors mesurée grâce à ImageJ. Nous pouvons ainsi faire le lien entre l'intensité transmise et le rayon moyen des bulles.

10.2 Homogénéité de la fraction liquide

Afin de vérifier que la fraction liquide est bien uniforme sur la hauteur dans les cellules de 1 mm et 2 mm et ce pour différentes tailles de bulles, nous avons calculé des profils de fraction liquide grâce à un programme MATLAB créé par Wiebke Drenckhan utilisant l'équation 2.6 [44]. Ces profils sont réalisés sur deux hauteurs (1 mm ou 2 mm), pour trois fractions liquides initiales (15 %, 20 % et 30 %) et pour des tailles de bulles comprises entre 10 μm et 460 μm . Les tableaux 10.1 et 10.2 résument ces résultats pour des cellules de 1 mm et 2 mm respectivement.

On tolère que la fraction liquide varie de ± 1 % entre le haut et le bas de la cellule par rapport à la fraction liquide considérée. L'intervalle de taille de bulles autorisé est alors reporté dans les tableaux 10.1 et 10.2. Comme attendu, il est plus grand pour la cellule de 1 mm que pour celle de 2 mm. Par exemple, pour $\phi = 15$ %, la taille de bulles maximale acceptable est de 460 μm pour la cellule de 1 mm alors que dans la cellule de 2 mm, le rayon à partir duquel le drainage a une influence est de 210 μm . Néanmoins, pour les mousses de fraction liquide 30 %, l'intervalle autorisé est faible et identique pour les deux hauteurs de cellules. Ces différentes analyses permettent ainsi de connaître la limite en rayon au-dessus de laquelle le drainage dans les cellules n'est plus négligeable et de confirmer la validité de l'utilisation des cellules confinées pour éviter le drainage.

Fraction liquide ϕ	cellule 1 mm	intervalle de R (μm)
15		10 – 410
20		10 – 260
30		10 – 60

TABLEAU 10.1: Tableau énumérant les intervalles de rayons possibles pour des fractions liquides de 15 %, 20 % et 30 % ainsi que les graphiques représentant la hauteur dans la cellule en fonction de la fraction liquide pour une cellule de 1 mm.

Fraction liquide ϕ	cellule 2 mm	intervalle de R (μm)
15		10 – 210
20		10 – 110
30		10 – 30

TABLEAU 10.2: Tableau énumérant les intervalles de rayons possibles pour des fractions liquides de 15 %, 20 % et 30 % ainsi que les graphiques représentant la hauteur dans la cellule en fonction de la fraction liquide pour une cellule de 2 mm.

10.3 Étude du mûrissement en fonction de la fraction liquide pour différentes solutions

Pour différentes solutions moussantes TTAB, TTAB/dodécanol, TTAB/glycérol et TTAB/dodécanol/glycérol, nous avons étudié la taille des bulles au cours du temps pour différentes fractions liquides dans les deux cellules de 1 mm et 2 mm quand cela était possible. Les expériences présentées sur les figures 10.3, 10.4 et 10.5 montrent les résultats. Les droites correspondent à l'ajustement de chacune des courbes par une loi de puissance.

10.3.1 Protocole d'ajustement de la loi de puissance

Les ajustements ont été réalisés grâce à un programme Matlab permettant de tracer une courbe de tendance dont la forme est choisie par l'utilisateur. Nous utilisons donc une loi de puissance de forme ax^β . Les points aux temps longs, qui sont plus sujets à erreur, sont progressivement retirés jusqu'à ce que l'erreur sur l'ajustement soit inférieure à une valeur choisie par l'utilisateur (ici l'écart-type au carré soit inférieur à 1000). Les courbes de tendance et les points expérimentaux sont montrés sur les figures 10.3, 10.4 et 10.5.

10.3.2 Protocole d'analyse des résultats

Pour chacune des compositions chimiques et des fractions liquides des mousses, nous commençons par regarder l'influence du drainage. Pour cela, nous utilisons les calculs numériques des profils de fraction liquide en fonction de la hauteur pour différentes tailles de bulles, présentés dans la section 10.2. Nous considérons une variation de $\pm 1\%$ et de $\pm 2\%$ sur la fraction liquide pour obtenir les limites supérieures autorisées pour les rayons des bulles, $R_{\max 1}$ et $R_{\max 2}$ et permettant de mesurer les temps $t_{R_{\max 1}}$ et $t_{R_{\max 2}}$ auxquels l'influence du drainage peut être pris en compte. Sur les figures 10.3, 10.4, et 10.5, ce temps correspond à l'intersection entre les droites horizontales et les courbes expérimentales.

L'influence de la coalescence est prise en compte grâce au temps auquel la première avalanche de coalescence a lieu dans la mousse (Figure 10.6). Ce temps est mesuré à l'aide des vidéos réalisées avec une cellule de 2 mm. Pour la cellule de 1 mm, nous utiliserons le même temps que pour les cellules de 2 mm, en faisant l'hypothèse que le temps d'avalanche de coalescence $t_{\text{avalanche}}$ est probablement inférieur à celui mesuré dans les cellules de 2 mm. En effet, une avalanche de coalescence correspond à la formation d'une grosse bulle se forme sur toute l'épaisseur de la cellule. Il semble donc raisonnable de penser que cela sera plus rapidement visible sur une cellule de 1 mm que sur celle de 2 mm.

Enfin, nous considérons que le temps t_{DTS} auquel les conditions de diffusion multiple ne sont plus valables correspond au temps où il ne reste plus que dix bulles dans l'épaisseur de la mousse. Sur les différentes figures (Figure 10.3, 10.4, 10.5a et 10.5a) cela correspond au temps à partir duquel pente commence à diminuer.

L'ensemble des données est résumé dans les tableaux 10.3, 10.4, 10.6 et 10.5. L'analyse des différents temps permet de choisir la gamme dans laquelle le coefficient β est valable.

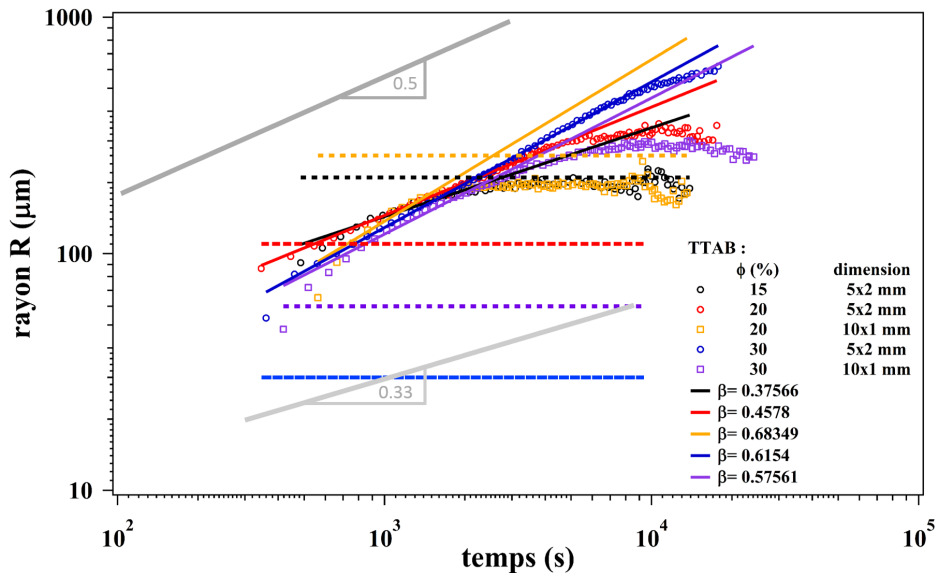


FIGURE 10.3: Taille moyenne des bulles en fonction du temps pour les deux cellules et pour différentes fractions liquides de mousses de TTAB. Les droites correspondent à l'ajustement de chacune des courbes par une loi de puissance. Les droites en pointillées représentent les limites de taille des bulles autorisées.

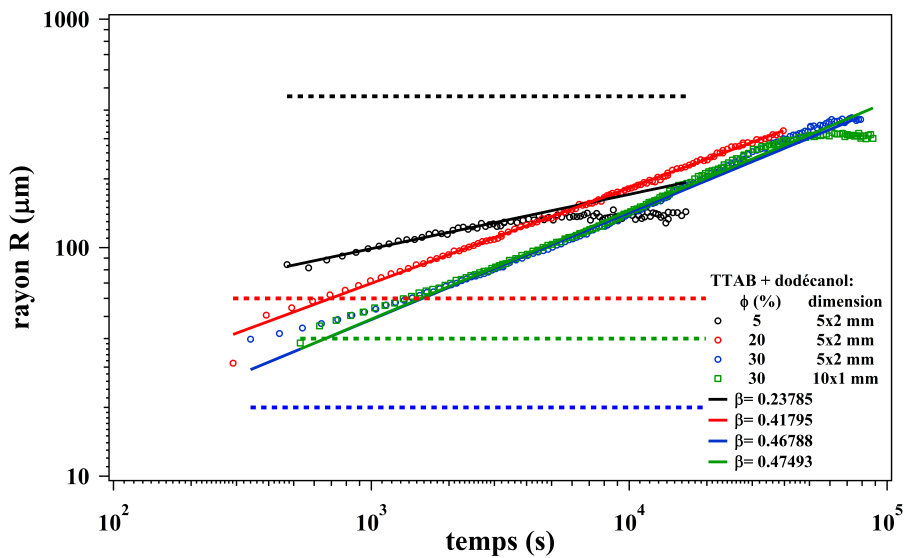


FIGURE 10.4: Taille moyenne des bulles en fonction du temps pour les deux cellules et pour différentes fractions liquide de mousses de TTAB/dodécaneol. Les droites correspondent à l'ajustement de chacune des courbes par une loi de puissance. Les droites en pointillées représentent les limites de taille de bulles autorisées.

10.3.3 Analyse de mousses de différentes compositions chimiques et différentes fractions liquides

Analyse des mousses de TTAB

Dans le tableau 10.3 sont présentés les résultats des différentes expériences réalisées avec du TTAB. Dans la limite de $\pm 1\%$ de variation sur la fraction liquide, seules les expériences à $\phi = 15\%$ et $\phi = 20\%$ pour la cellule de 5×2 mm et à $\phi = 20\%$ pour la cellule de 10×1 mm sont utilisables.

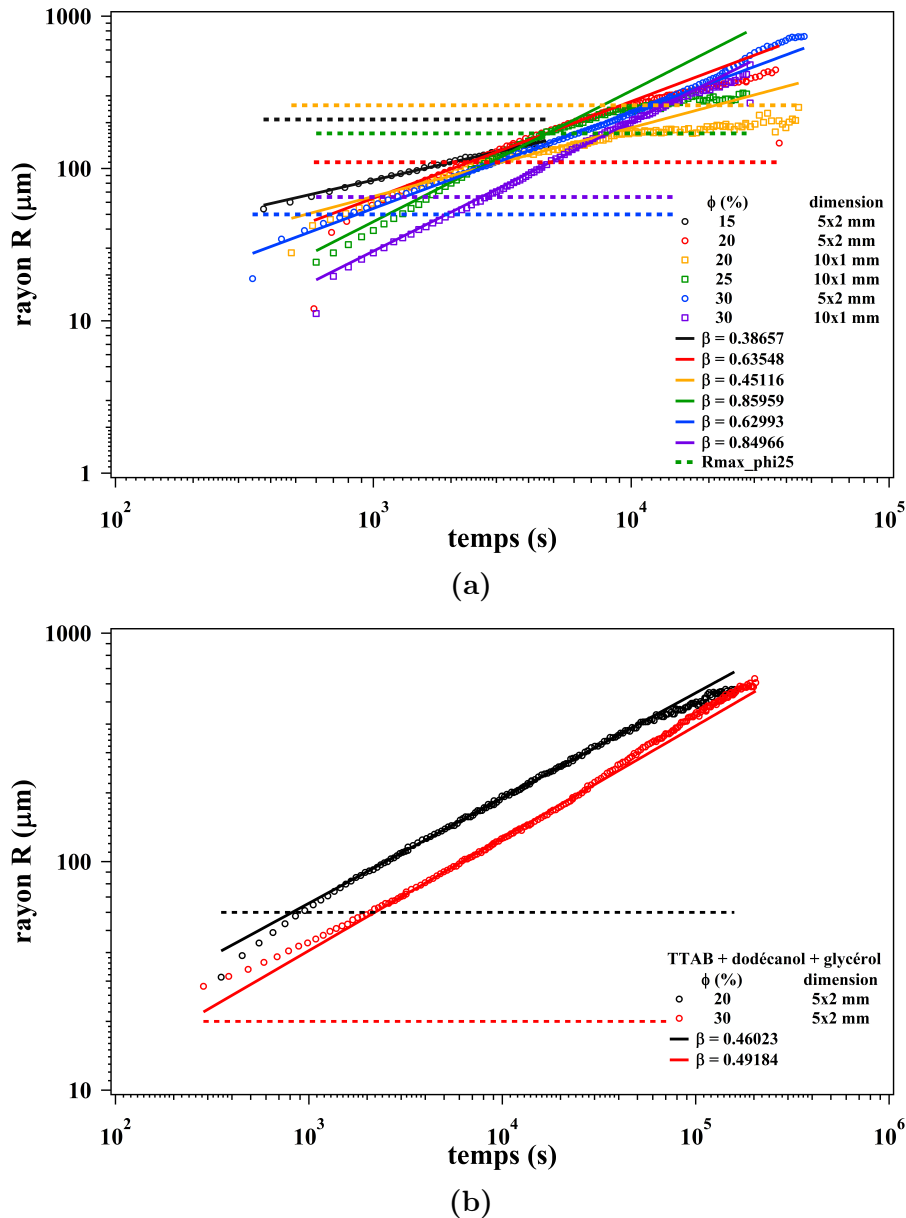


FIGURE 10.5: Rayon moyen des bulles en fonction du temps pour des mousses a) de TTAB/glycérol et b) TTAB/dodécanol/glycérol. Les droites en pointillés représentent les limites de taille de bulles autorisées.

Dans la limite de ± 2 % sur la fraction liquide, il est possible de garder l'expérience à $\phi = 30$ % pour la cellule de 10×1 mm.

Si l'on compare maintenant le temps de la première avalanche de coalescence et le temps de début de l'expérience, seule $\phi = 30$ % pour la cellule de 10×1 mm dans la limite des 2 % est toujours utilisable malgré le fait que $t_{\text{avalanche}}$ soit mal défini.

Analyse des mousses de TTAB + dodécanol

En analysant les données du tableau 10.4 qui récapitule les différents temps considérés des mousses de TTAB/dodécanol pour, nous pouvons voir que les expériences à $\phi = 5$ % et $\phi = 20$ % pour la cellule de 5×2 mm et à $\phi = 30$ % pour la cellule de 10×1 mm sont conservées dans la limite de ± 1 % sur la fraction liquide. Dans la limite de ± 2 % sur la fraction liquide, toutes les expériences sont valables.

ϕ	dimen- sion	β	t_0 (s)	$R_{\max 1}$ (μm)	$t_{R\max 1}$ (s)	$R_{\max 2}$ (μm)	$t_{R\max 2}$ (s)	$t_{\text{avalanche}}$ (s)	t_{DTS} (s)	valable à 1 %	valable à 2 %	valable $t_{\text{avalanche}}$
15	5×2	0.38	485	210	2785	410	$> t_{\text{exp}}$	2100	2185 ± 200	oui	oui	non
20	5×2	0.46	345	110	545	250	$> t_{\text{exp}}$	1800	5643 ± 400	non	non	non
30	5×2	0.61	360	50	0	60	400	8760	9360 ± 400	non	non	non
20	10×1	0.68	563	260	$> t_{\text{exp}}$	460	$> t_{\text{exp}}$	< 1800	9360 ± 400	oui	oui	non
30	10×1	0.58	418	65	450	140	1218	< 8760	3518 ± 400	non	oui	oui

TABLEAU 10.3: Tableau énumérant les différentes informations concernant les mousses de TTAB de fractions liquide de 15 %, 20 % et 30 % pour les cellules de 1 mm et 2 mm.

ϕ	dimen- sion	β	t_0 (s)	$R_{\max 1}$ (μm)	$t_{R\max 1}$ (s)	$R_{\max 2}$ (μm)	$t_{R\max 2}$ (s)	$t_{\text{avalanche}}$ (s)	t_{DTS} (s)	valable à 1 %	valable à 2 %	valable $t_{\text{avalanche}}$
5	5×2	0.24	471	> 460	$> t_{\text{exp}}$	> 460	$> t_{\text{exp}}$	incon- nu	4071 ± 200	oui	oui	?
20	5×2	0.42	291	60	541	130	4391	8400	$> t_{\text{exp}}$	oui	oui	oui
30	5×2	0.47	340	20	0	50	840	4830	60940 ± 600	non	non	oui
30	10×1	0.47	530	40	530	80	2830	19500	40840 ± 600	oui	oui	oui

TABLEAU 10.4: Tableau énumérant les différentes informations concernant les mousses de TTAB/dodécanol de fractions liquide de 5 %, 20 % et 30 % pour les cellules de 1 mm et 2 mm.

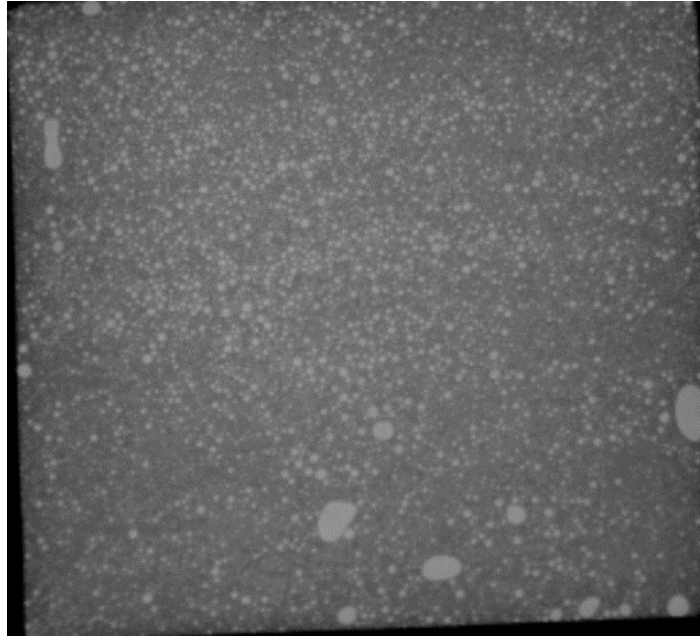


FIGURE 10.6: Image montrant la présence de coalescence dans une mousse de TTAB de fraction liquide 15 % dans une cellule de 5×2 mm prise environ 10 min après la génération de la mousse.

ϕ	dimen- sion	β	t_0 (s)	$R_{\max 1}$ (μm)	$t_{R\max 1}$ (s)	$R_{\max 2}$ (μm)	$t_{R\max 2}$ (s)	$t_{\text{avalanche}}$ (s)	t_{DTS} (s)	valable à 1 %	valable à 2 %	valable $t_{\text{avalanche}}$
20	5×2	0.46	352	60	952	130	4452	3000	80752 ± 200	oui	oui	non
30	5×2	0.49	285	20	0	50	1385	$> t_{\text{exp}}$	$> t_{\text{exp}}$	non	non	oui

TABLEAU 10.5: Tableau énumérant les différentes informations concernant les mousses de TTAB/dodécanol/glycérol de fractions liquide de 5 %, 20 % et 30 % pour les cellules de 1 mm et 2 mm.

Après comparaison entre le temps de coalescence et le temps de début d'expérience, toutes les valeurs de coefficient β sont conservées sauf celle obtenue pour $\phi = 5$ % dans la cellule de 5×2 mm car $t_{\text{avalanche}}$ n'est pas connu mais on peut estimer qu'il est inférieur à 8400 s.

Nous considérons donc comme valables les coefficients β des expériences à $\phi = 20$ % pour la cellule de 5×2 mm et à $\phi = 30$ % pour la cellule de 10×1 mm dans la limite de ± 1 % sur la fraction liquide et $\phi = 30$ % pour la cellule de 5×2 mm dans la limite de ± 2 % sur la fraction liquide.

Analyse des mousses avec du glycérol

Après comparaison des différents temps présentés dans les tableaux 10.6 et 10.5, les coefficients β valables pour les mousses de TTAB/glycérol sont ceux correspondant aux expériences à $\phi = 20$ % et à $\phi = 30$ % pour la cellule de 10×1 mm dans la limite de ± 1 % sur la fraction liquide et à $\phi = 30$ % pour la cellule de 5×2 mm dans la limite de ± 2 % . Pour les mousses de TTAB/dodécanol/glycérol, seule l'expérience à $\phi = 30$ % pour la cellule de 5×2 mm dans la limite de ± 2 % de fraction liquide est conservée.

ϕ	dimen- sion	β	t_0 (s)	$R_{\max 1}$ (μm)	$t_{R_{\max 1}}$ (s)	$R_{\max 2}$ (μm)	$t_{R_{\max 2}}$ (s)	$t_{\text{avalanche}}$ (s)	t_{DTS} (s)	valable à 1 %	valable à 2 %	valable $t_{\text{avalanche}}$
15	5×2	0.39	375	210	$> t_{\text{exp}}$	1800	$> t_{\text{exp}}$	4830	$> t_{\text{exp}}$	oui	oui	non
20	5×2	0.64	588	110	2338	250	9088	2700	9288 ± 600	oui	oui	non
30	5×2	0.63	340	50	840	60	1140	12180	$> t_{\text{exp}}$	non	oui	oui
20	10×1	0.45	481	260	$> t_{\text{exp}}$	460	$> t_{\text{exp}}$	< 2700	9181 ± 600	oui	oui	oui
25	10×1	0.86	600	170	4600	280	16000	incon- nu	5900 ± 600	oui	oui	non
30	10×1	0.85	600	65	2800	140	6250	< 12180	20200 ± 1200	oui	oui	oui

TABLEAU 10.6: Tableau énumérant les différentes informations concernant les mousses de TTAB/glycérol de fractions liquide de 5 %, 20 % et 30 % pour les cellules de 1 mm et 2 mm.

L'ensemble des coefficients β valables est résumé sur la figure 10.7 où β est tracé en fonction de la fraction liquide. Les cercles rouges sont les points expérimentaux pour des mousses sans glycérol et les cercles oranges pour des mousses avec glycérol. On remarque que les valeurs de β sont plus élevées en présence de glycérol : le rayon moyen des bulles augmente donc plus rapidement. Nous pouvons également comparer

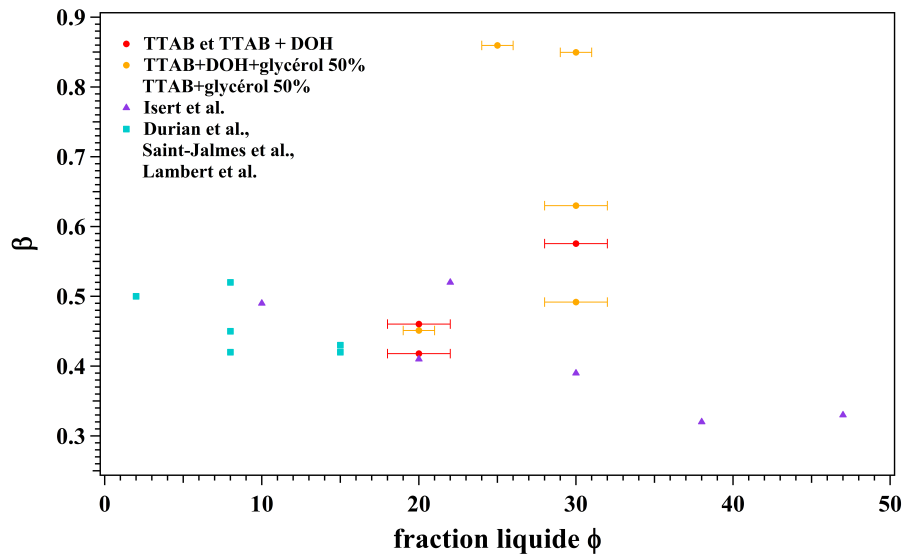


FIGURE 10.7: Coefficients β en fonction de la fraction liquide pour les différentes expériences réalisées en cellules confinées de 5×2 mm et de 10×1 mm sans glycérol (cercles rouges), avec glycérol (cercles oranges). Les coefficients issus de la littérature avec les mousses de tensioactif représentés par les carrés bleus. Enfin les expériences en lévitation magnétique de Isert *et al.* sont représentées par des triangles verts.

nos résultats avec les différentes valeurs de la littérature que nous avons vues dans le chapitre 9. Ainsi, les carrés bleus représentent les expériences de la littérature réalisées avec des tensioactifs. Nous pouvons constater que nos résultats sont en bon accord avec les valeurs de β de la littérature pour les tensioactifs. Enfin l'ensemble des valeurs de β semble en bon accord avec les résultats expérimentaux en lévitation magnétique de Isert *et al.* sauf pour $\phi = 30$ %. Il est donc nécessaire de faire d'avantages d'expériences afin d'obtenir plus de statistique sur les points. De plus, que ce soit avec les mousses

confinées ou des cellules tournantes, il est difficile de réaliser des expériences avec une fraction liquide supérieure à 30 %. Les expériences dans l'ISS seront donc utiles afin de pouvoir mesurer les valeurs de β sur tout l'intervalle de fraction liquide et ainsi de faire des comparaisons, d'une part, les résultats en lévitation magnétique et, d'autre part, les simulations numériques.

10.4 Conclusion

L'étude du mûrissement dans une mousse humide 3D est possible grâce à la diffusion multiple de la lumière. Cette technique permet de recueillir des informations sur la structure des milieux concentrés tels que les mousses. En effet, la Transmission Diffuse de Lumière (DTL) permet d'obtenir le rayon moyen des bulles au cours du temps par l'intermédiaire de l'intensité transmise. La diffusion dynamique de la lumière (DWS) donne des informations sur les temps de réarrangement T1 et T2. Dans ce chapitre, nous avons utilisé la DTL afin d'étudier le mûrissement de mousses humides et les lois de croissance $\langle R \rangle \propto t^\beta$. Pour cela, nous avons réalisé un montage expérimental comprenant un laser, un photomultiplicateur et deux cellules composées d'un empilement de cellules d'épaisseur de 1 mm pour l'une et de 2 mm pour l'autre. Ces cellules permettent à la fois d'éviter le drainage et de répondre aux conditions de validité de la DWS. Pour les différentes mousses, le coefficient $\beta \approx 0.45$ et ce quel que soit la fraction liquide considérée. Les écarts par rapport à cette valeur peuvent être expliqués par la présence de coalescence et du drainage. Cette valeur de β est proche du $\beta = 1/2$ prédite par la théorie et trouvée expérimentalement par Isert *et al.* à des fractions liquides inférieure à 25 %. Nos résultats expérimentaux sur les mousses de TTAB et de TTAB/dodécanol sont donc en bon accord avec les résultats issus de la littérature. De plus, une étude similaire réalisée avec une cellule tournante est actuellement élaborée par Arnaud Saint-Jalmes et François Graner montre des résultats identiques à ceux présentés dans ce chapitre. Nous avons également pu remarquer que l'ajout de glycérol entraîne une augmentation de la valeur de β . Cependant, si notre montage expérimental donne de bon résultats sur l'étude des mousses de fraction liquide inférieure ou égale à 20–30 %, il n'est plus possible de l'utiliser au-delà. Les méthodes usuelles pour éviter le drainage ne sont pas suffisantes pour étudier le mûrissement de mousses humides et qu'il soit indispensable de réaliser ces expériences dans l'ISS pour s'assurer l'absence totale de gravité.

Chapitre 11

Étude du mûrissement des mousses humides en microgravité

Depuis une vingtaine d'années, une expérience est en cours de réalisation entre l'ESA, "Airbus Defence and Space" et une équipe scientifique. Le but de cette expérience est l'étude du mûrissement de mousses 3D humides. En effet, comme nous l'avons déjà vu précédemment, il est difficile de procéder à une telle étude sur terre à cause du drainage. Dans ce projet appelé "Soft Matter Dynamics", un montage expérimental ainsi que des échantillons de physicochimie et de fractions liquides contrôlées seront envoyés dans la Station Spatiale Internationale. Une des questions posée est la suivante : la loi de croissance des bulles dans le régime auto-similaire est-il bien $\langle R \rangle \propto t^{1/2}$ pour les mousses sèches et $\langle R \rangle \propto t^{1/3}$ pour les mousses humides comme le prédit la théorie et comme l'ont observé Isert *et al.* [36]. Le second but de cette expérience portera également sur l'étude des réarrangements dans les mousses humides.

11.1 Le montage expérimental

Le dispositif expérimental créé pour mener à bien ce projet doit respecter un cahier des charges fixé par l'ESA, assurant que le montage soit aux normes imposées par les agences spatiales et un cahier des charges développé par l'équipe scientifique garantissant la valeur des résultats. Ce module originalement appelé FOAM-C a été rebaptisé "Soft Matter Dynamics" et est maintenant destiné à l'étude de trois systèmes : les mousses, les émulsions et les granulaires dans le module "Fluid Science Laboratory" (FSL) de la station spatiale internationale (ISS).

Comme le montre la figure 11.1, il s'agit d'une boîte de dimension $400 \times 270 \times 280$ mm et d'environ 32 kg (Figure 11.2a) contenant des cellules possédant chacune un système de génération de mousse et un système de mesure composé d'une caméra pour visualiser les mousses et d'un dispositif de diffusion multiple de la lumière (Figure 11.2b).

11.1.1 Génération de la mousse dans les cellules

L'espace dans le module expérimental étant réduit, il est nécessaire que le dispositif de génération de mousse soit compact. La solution qui a été choisie est l'oscillation d'un piston placé à l'intérieur de la cellule (Figure 11.3). Les oscillations du piston sont assurées par un champ magnétique et permettent de mélanger progressivement le liquide et le gaz contenus dans la cellule. On génère ainsi une mousse dont la fraction

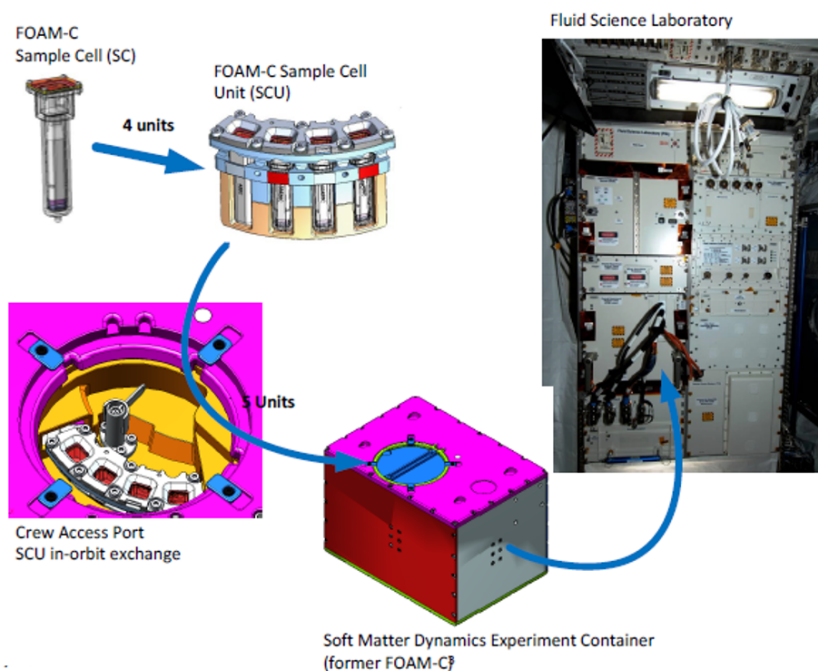


FIGURE 11.1: Montage expérimental aux différentes échelles : la cellule est placée dans un porte-échantillon qui est lui-même placé dans le carrousel à l'intérieur du conteneur "Soft Matter Dynamics". Ce dispositif sera ensuite inséré dans le module "Fluid Science Laboratory" de l'ISS.

liquide aura été fixée lors du remplissage de la cellule. Un aimant contenu dans le piston permet de l'actionner. Le champ magnétique nécessaire pour provoquer les oscillations est créé par des électro-aimants et un courant alternatif.

Dans le cahier des charges des scientifiques, il est demandé que la taille des bulles après génération soit inférieure à $50 \mu\text{m}$ et qu'aucune bulle n'ait une taille supérieure à cinq fois le diamètre moyen des bulles.

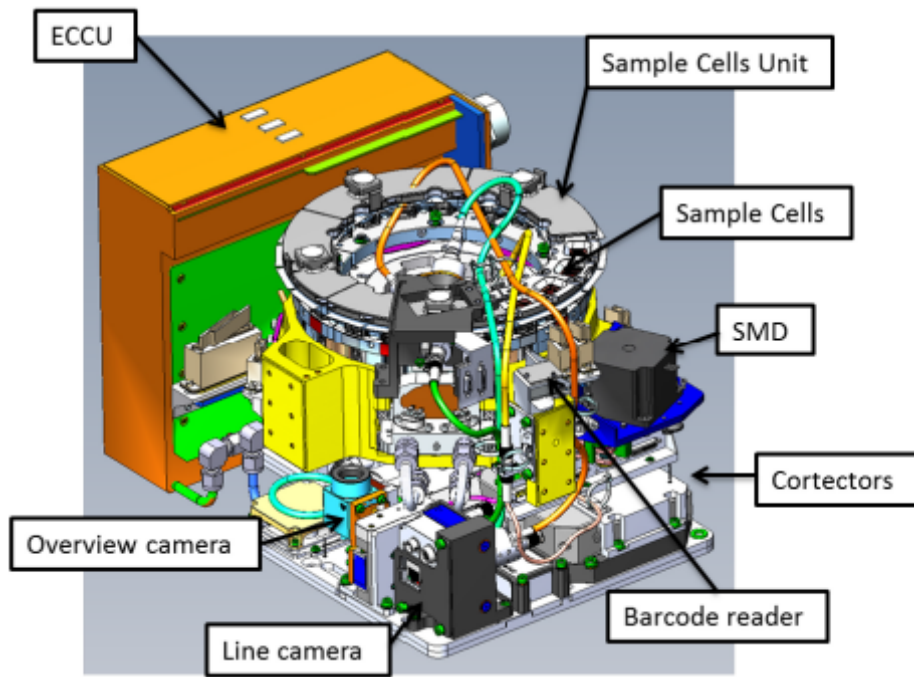
11.1.2 Système de visualisation

Une caméra placée au-dessus de la cellule permet de visualiser la partie supérieure de la cellule et donc la surface de la mousse. La caméra utilisée est une Ueye UI-1490SE de résolution $3840 \times 2748 \text{ pixel}^2$. Un système d'éclairage composé de trois LEDs disposées autour de la cellule assure un assez bon contraste. Ce contrôle visuel permet, d'une part, de vérifier l'homogénéité de la mousse après génération et, d'autre part, de mesurer la distribution de la taille des bulles.

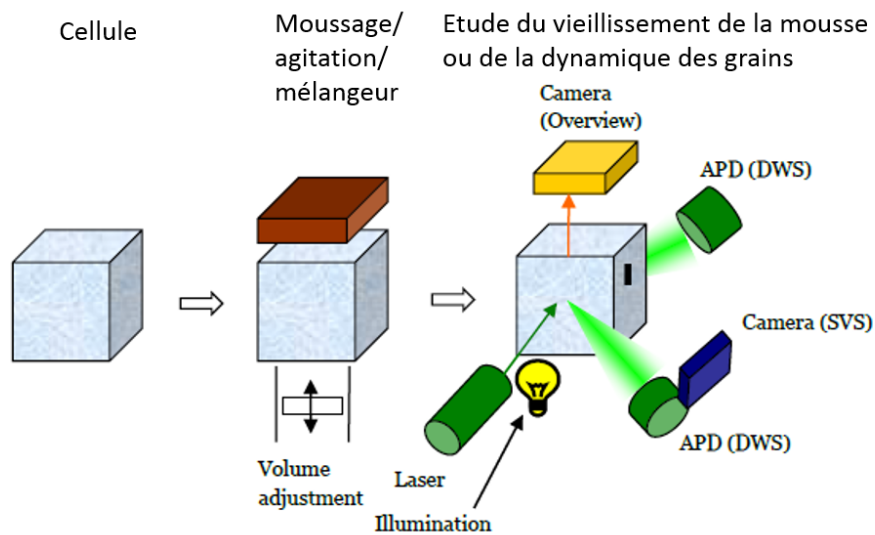
11.1.3 Mesure par diffusion multiple de la lumière

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 10, la diffusion multiple de la lumière permet d'avoir des informations sur le taux de grossissement des bulles mais également sur la vitesse de réarrangement des cellules dans la mousse. Ainsi trois analyses sont réalisées (Figure 11.2b) :

- La transmission diffuse de la lumière ou DTL permettant d'obtenir des informations sur la taille des bulles. En effet, l'intensité transmise est proportionnelle à la taille des bulles car la fraction liquide est constante (microgravité). Cette analyse



(a)



(b)

FIGURE 11.2: Représentation du dispositif expérimental : a) Schéma du dispositif expérimental "Soft Matter Dynamics" permettant l'étude du vieillissement des mousses et des émulsions et du réarrangement des grains. b) Schéma du principe de l'expérience. La mousse est créée dans la cellule puis une visualisation directe est possible grâce à une caméra. Sur le côté de la cellule un laser permet une analyse par diffusion multiple de la lumière.

vient en complément de la mesure de distribution de la taille des bulles effectuée avec la caméra.

- La diffusion dynamique de la lumière ou DWS utilisée en transmission permet de caractériser la dynamique de réarrangement des bulles dans le volume à l'aide de la fonction d'autocorrélation.
- La DWS en rétrodiffusion est également utilisée afin d'étudier l'influence des bords de la cellule sur le mûrissement et le réarrangement des bulles.

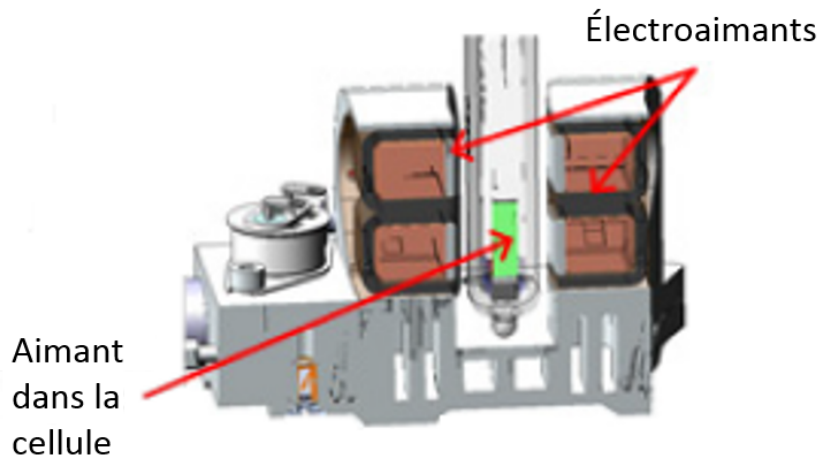


FIGURE 11.3: Schéma du dispositif permettant de générer la mousse. Il est composé d'un aimant placé dans le piston à l'intérieur de la cellule et d'électro-aimants actionnant le piston.

Le suivi du développement du montage expérimental de DWS et le traitement des résultats sont réalisés par Reinhard Höhler et Sylvie Cohen-Addad de l'Institut des Nanosciences à Paris.

11.2 Les cellules

11.2.1 Description de la cellule

Chaque cellule est en polycarbonate et a une capacité d'environ 3 mL. Elle est scellée à l'aide de deux joints toriques écrasés par une fenêtre supérieure et fermée avec quatre vis. Cette fenêtre permet de visualiser la mousse après sa génération afin de s'assurer que celle-ci soit conforme au cahier des charges des scientifiques. Sur l'un des côtés de la cellule se trouve une seconde fenêtre d'observation pour l'étude à l'aide de la diffusion multiple de la lumière. À partir de cette fenêtre la mousse est éclairée avec un laser. Deux détecteurs et une caméra linéaire permettent de récupérer les intensités transmises et réfléchies par la mousse.

Les cellules sont disposées sur un porte-échantillon appelé "Sample Cells Units" (SCU) qui contient quatre cellules (SC). Cinq porte-échantillons au maximum peuvent être disposés sur le carrousel. Ainsi, un total de vingt échantillons peut être disposé simultanément dans le module expérimental. Les porte-échantillons sont interchangeables. Enfin, un système de lecture de code barre permet de lire les codes disposés sur les cellules afin de les reconnaître.

L'un des rôles de l'équipe du LPS dans ce projet est la sélection et la préparation des échantillons ainsi que le remplissage des cellules comme nous allons le voir par la suite.

11.2.2 Protocole de nettoyage

Le protocole de nettoyage a été établi conjointement avec l'équipe d'Airbus. La cellule est tout d'abord nettoyée avec du "deconex" un produit de nettoyage commercial, puis rincée à l'eau du robinet avant d'être passée à l'éthanol et laissée dans un bain à ultrasons d'eau ultra-pure pendant 30 min. Enfin la cellule est séchée dans un four

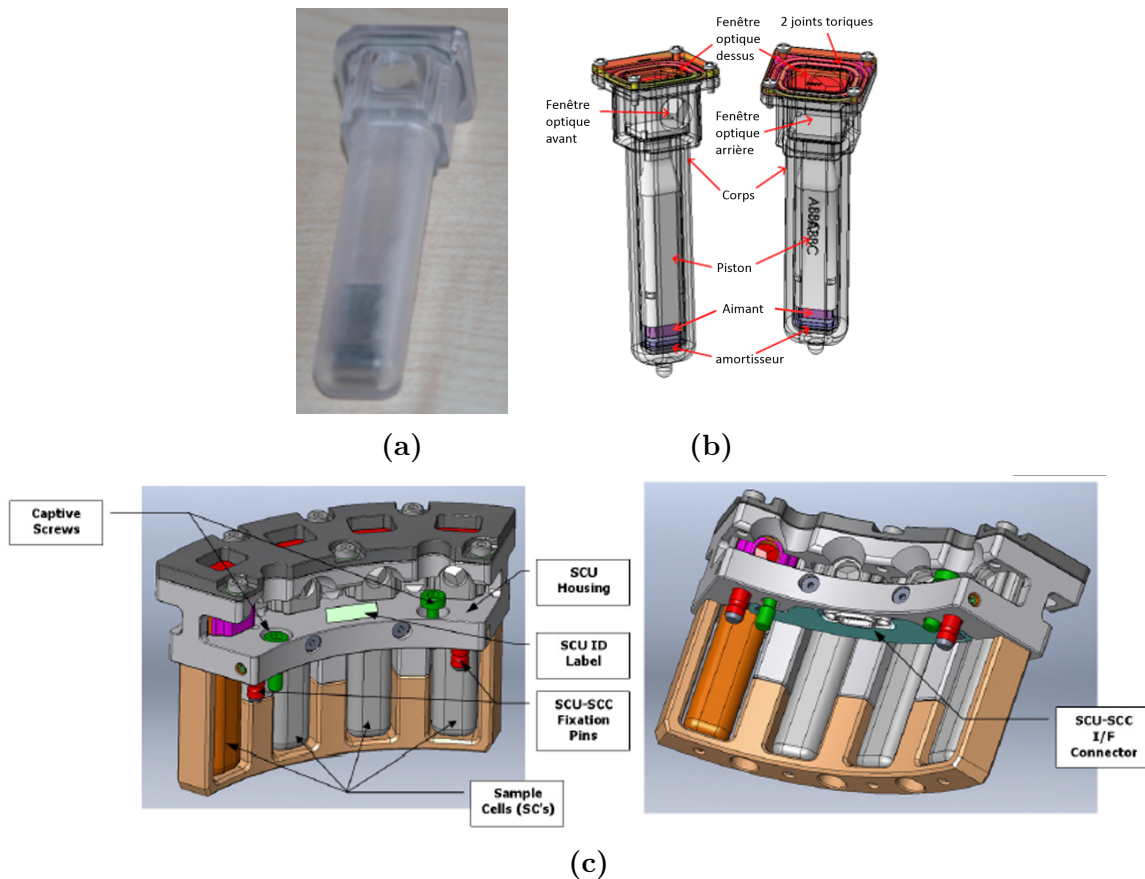


FIGURE 11.4: *Cellule et porte-échantillon : a) Photo d'une cellule en polycarbonate. b) Schéma d'une cellule montrant la face avant et la face arrière. On peut également voir la fenêtre du dessus fermée par 4 vis et dont l'étanchéité est assurée par deux joints toriques, l'aimant actionnant le piston ainsi que l'amortisseur permettant de diminuer les chocs. c) Porte-échantillon contenant quatre cellules et permettant de fixer les échantillons dans le carousel.*

à une température de 40 °C pendant le temps nécessaire pour le séchage complet. Le piston et la fenêtre supérieure sont nettoyés avec de l'éthanol et de l'eau ultra-pure avant d'être séchés à l'aide d'un pistolet à azote.

11.2.3 Propreté des cellules

Une fois cette procédure de nettoyage établie, nous avons testé la propreté des cellules afin de vérifier, d'une part, la propreté de celles-ci (donc l'efficacité de la procédure) et, d'autre part, que les cellules ne se dégradent pas au cours du temps au contact du liquide. Pour cela, les cellules ont été plongées pendant six mois dans un récipient d'eau dans le laboratoire d'Airbus. La tension de surface de cette eau a été mesurée chaque mois par mes soins. Ces tests ont été réalisés entre novembre 2016 et avril 2017. Selon le cahier des charges, la tension de surface doit être supérieure à 68 mN/m pour chaque test.

La tension de surface a été mesurée à l'aide d'un appareil commercial appelé, "Ki-bron". Pour chaque échantillon trois tests sont réalisés. Chaque test correspond à tension de surface dynamique mesurée pendant 20 min. Les mesures réalisées au cours des six mois sont conformes au cahier des charges.

11.2.4 Remplissage des cellules

Pour remplir les cellules, celles-ci doivent tout d'abord être démontées puis nettoyées selon la procédure vue dans le paragraphe 11.2.2. Ensuite, le volume réel des cellules est mesuré en les remplissant d'eau ultra-pure et en les pesant. Ceci permet d'ajuster le volume de solution à utiliser pour atteindre la valeur de ϕ voulue. Après avoir replacé les deux joints toriques, le volume de liquide nécessaire pour la fraction liquide souhaitée est injecté dans la cellule à l'aide d'une seringue. Le piston est ensuite délicatement inséré dans la cellule. Enfin, la fenêtre supérieure est vissée en prenant garde à ne pas trop serrer les vis. Pour cela, un espaceur est placé entre la fenêtre et le corps de la cellule et un tournevis incluant un Newton-mètre est utilisé.

11.3 Mesure de la taille des bulles

En 2016, des tests ont été réalisés avec le module expérimental, dans les locaux d'Airbus Defence and Space, par l'équipe scientifique en collaboration avec l'équipe de l'entreprise. Le but de ces essais était de tester les paramètres contrôlant la génération de la mousse et de vérifier le bon fonctionnement général du montage. Les paramètres de contrôle lors de la génération sont la puissance d'agitation du piston, sa fréquence, son temps de fonctionnement et le nombre d'agitations. L'efficacité de ces paramètres est contrôlée par l'homogénéité de la mousse et par la mesure de la distribution de la taille des bulles au cours du temps. Une étude au cours du temps a été effectuée dans le but de tester le programme de mesure automatique des bulles.

11.3.1 Protocole du traitement d'image

La mesure de la taille des bulles est effectuée à partir d'une image de la mousse à la paroi (Figure 11.5a). Cette image est tout d'abord traitée avec ImageJ afin d'améliorer le contraste. Pour cela, il faut créer un fond de l'image avec la fonction "Gaussian Blur". En divisant l'image originale par l'image obtenue avec le "Gaussian Blur", il est possible d'homogénéiser dans une certaine limite le fond de l'image. La fonction "Enhance contrast" permet d'améliorer le contraste et de faire ressortir en noir le contour des bulles.

Une fois l'image contrastée obtenue (Figure 11.5b), nous utilisons un programme Matlab que nous avons développé pour mesurer la taille des bulles. Pour cela, le programme utilise une fonction appelée "imfindcircles". Cette fonction utilise la transformée de Hough circulaire qui est un outil de traitement d'image très puissant permettant de détecter les contours de cercles compris dans un intervalle de rayons donné par l'utilisateur (Figure 11.5c). La taille des bulles à rechercher doit être telle que $R_{\max} < 3R_{\min}$ et $R_{\max} - R_{\min} < 100$ pixels. Il est alors possible de mesurer la distribution de la taille des bulles à partir du résultat de traitement d'image (Figure 11.5d).

11.3.2 Influence des différents paramètres de contrôle

Nous avons regardé l'influence du nombre d'agitations, de la puissance d'agitation du piston, de sa fréquence et du temps d'agitation sur la génération de la mousse.

Les résultats sont regroupés dans les tableaux 11.1 et 11.2 dans lequel sont renseignés le tensio-actif utilisé (TA), la fraction liquide (ϕ), chacun des paramètres de

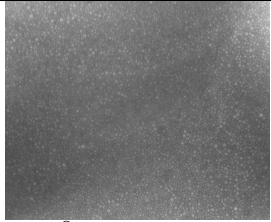
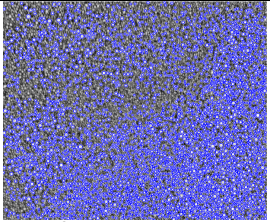
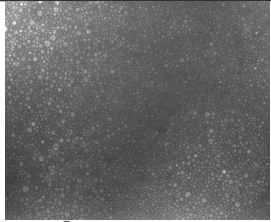
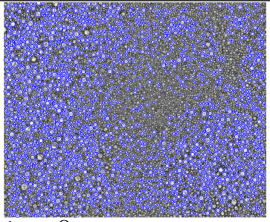
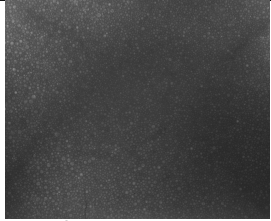
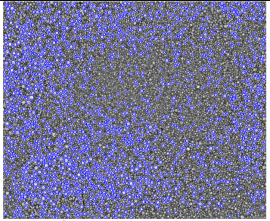
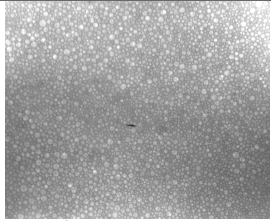
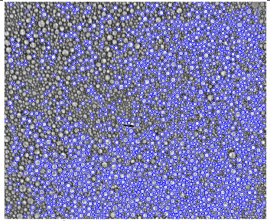
TA	ϕ (%)	P (mA)	F (Hz)	t_{ag} (s)	N_{ag}	$\langle R \rangle$ (μm)	σ	image originale	image traitée
TTAB	15	1000	5	30	1	38	0.23	 $t = 0 \text{ s}$	 $t = 0 \text{ s}$
TTAB	10	800	5	30	3	49.5	0.24	 $t = 0 \text{ s}$	 $t = 0 \text{ s}$
TTAB	10	1000	5	30	3	47	0.18	 $t = 0 \text{ s}$	 $t = 0 \text{ s}$
TTAB	15	1000	1	150	3	59	0.3	 $t = 0 \text{ s}$	 $t = 0 \text{ s}$

TABLEAU 11.1: Première partie du tableau réunissant l'ensemble des paramètres de génération de mousses dans les cellules ainsi que le rayon moyen initial des bulles.

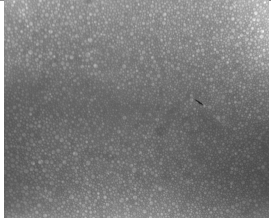
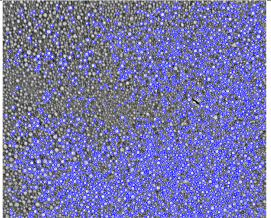
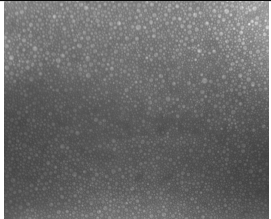
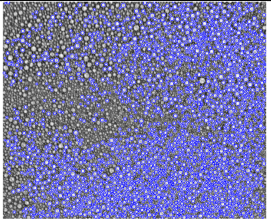
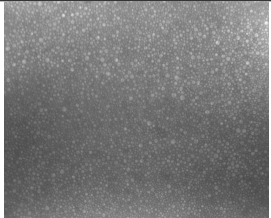
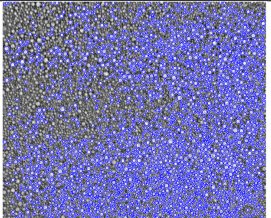
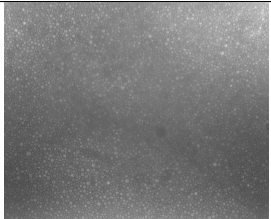
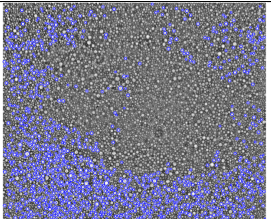
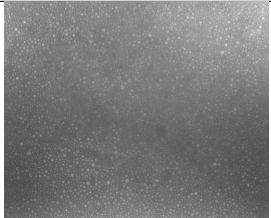
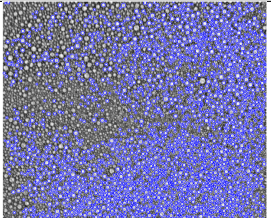
TA	ϕ (%)	P (mA)	F (Hz)	t_{ag} (s)	N_{ag}	$\langle R \rangle$ (μm)	σ	image originale	image traitée
TTAB	15	1000	3	50	3	42	0.42	 $t = 0 \text{ s}$	 $t = 0 \text{ s}$
TTAB	15	1000	5	30	3	41	0.51	 $t = 0 \text{ s}$	 $t = 0 \text{ s}$
TTAB	15	1000	10	15	3	39	0.46	 $t = 101 \text{ s}$	 $t = 101 \text{ s}$
TTAB+DOH	15	1000	1	150	3	49	0.21	 $t = 76 \text{ s}$	 $t = 76 \text{ s}$
TTAB+DOH	15	1000	5	30	3	43	0.38	 $t = 129 \text{ s}$	 $t = 129 \text{ s}$

TABLEAU 11.2: *Seconde partie du tableau réunissant l'ensemble des paramètres de génération de mousses dans les cellules ainsi que le rayon moyen initial des bulles.*

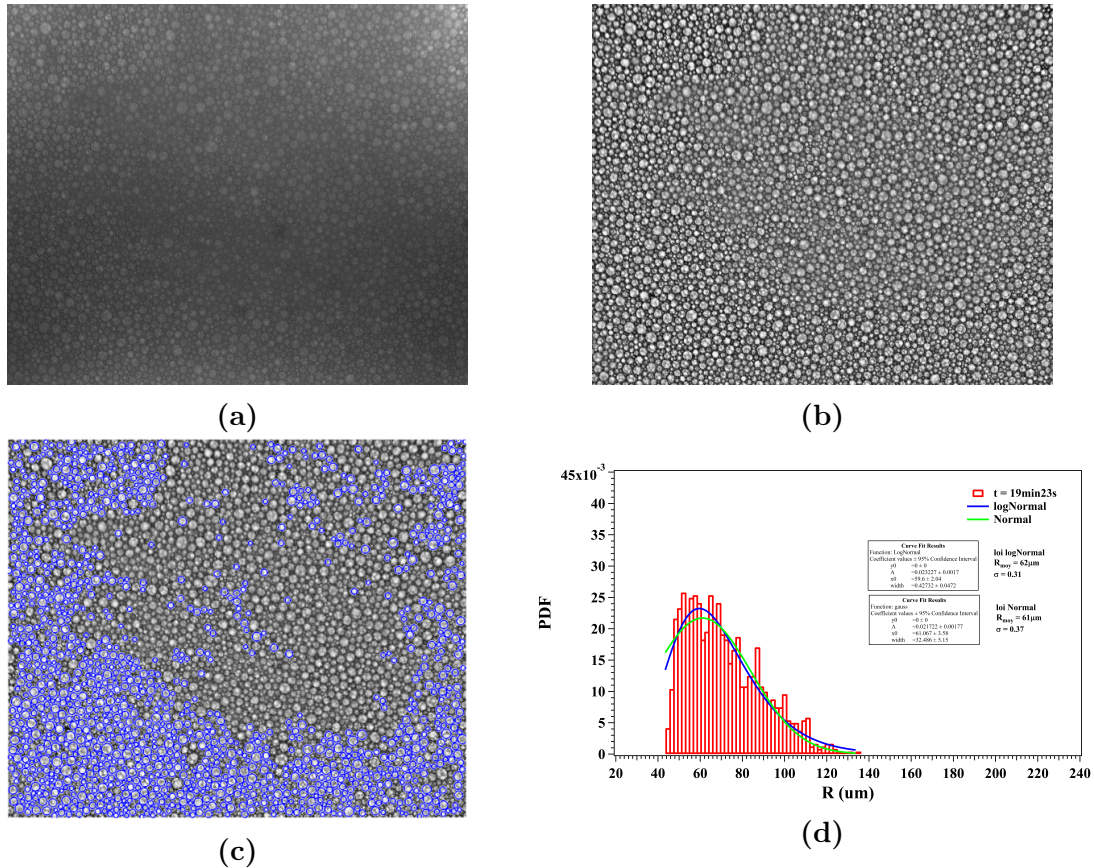


FIGURE 11.5: Protocole mis en place pour le traitement automatique de la taille de bulle par MATLAB. Image en vue de dessus d'une mousse de TTAB et dodécanol de $\phi = 15\%$, agitée trois fois à une fréquence de 1 Hz pendant 150 s à une puissance de 1000 mA a) image originale b) image traitée par ImageJ afin d'améliorer le contraste, c) Image traitée sous Matlab pour détecter les bulles et d) Distribution de taille des bulles dans l'image.

contrôle, la taille des bulles et la polydispersité obtenues, les images initiales et traitées ainsi que le temps auquel l'image a été prise après la génération de la mousse.

Comme nous l'avons vu précédemment, le cahier des charges indique que $\langle R \rangle < 50 \mu\text{m}$ avec une polydispersité inférieure à 5 fois la taille des bulles. D'après les tableaux 11.1 et 11.2, ces conditions sont remplies pour chaque combinaison testée. Cependant, la meilleure combinaison de paramètres semble être une puissance $P = 1000 \text{ mA}$, une fréquence $F = 5 \text{ Hz}$, temps d'agitation $t_{\text{ag}} = 3 \text{ s}$ et 3 agitations. On peut également remarquer que pour les deux expériences avec la solution de TTAB/dodécanol, les bulles semblent plus grosses avec $\langle R \rangle = 49 \mu\text{m}$ et $\langle R \rangle = 43 \mu\text{m}$. Néanmoins, la première image traitable n'est pas une image prise juste après la génération mais entre 1 et 2 min après la génération. En effet, la fraction liquide étant de 15 %, la mousse draine, ce qui entraîne le grossissement des bulles par mûrissement et coalescence. De plus, il semble que la fraction liquide soit un facteur affectant fortement la taille des bulles quels que soient les paramètres.

11.3.3 Évolution au cours du temps

Une expérience a été réalisée au cours du temps avec une solution de TTAB et dodécanol. Une mousse de fraction liquide 15 % est générée avec les paramètres suivant : $P = 1000 \text{ mA}$, $F = 5 \text{ Hz}$, $t_{\text{ag}} = 3 \text{ s}$ et 3 agitations. Nous avons étudié l'évolution de

la distribution de la taille des bulles au cours du temps (Figure 11.6). Nous pouvons

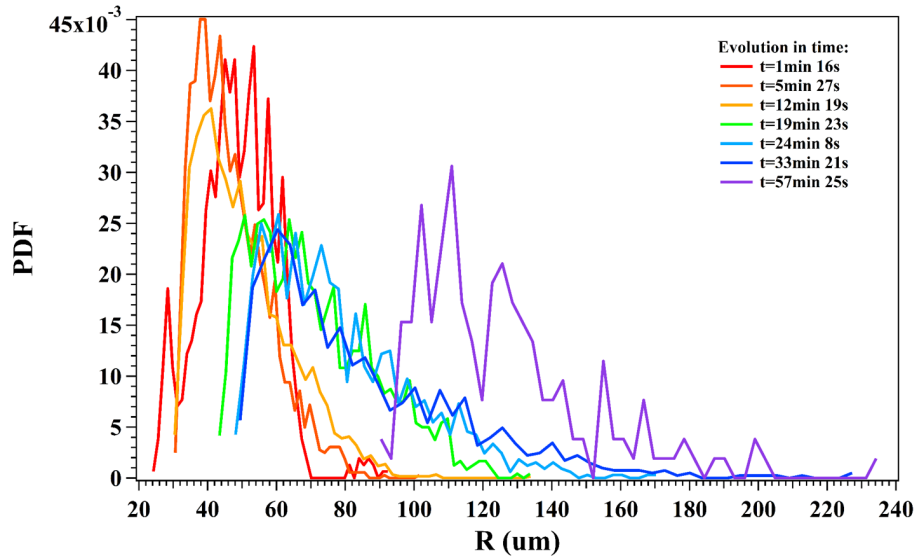


FIGURE 11.6: *Évolution au cours du temps de la distribution de la taille des bulles pour une mousse de TTAB+dodécanol agitée pendant 30 s 3 fois à une fréquence de 5 Hz, de puissance 1000 mA.*

remarquer que la taille moyenne des bulles et la polydispersité augmentent au cours du temps. Ceci est normal puisque la mousse se détruit rapidement à cause du drainage, de la coalescence et du mûrissement. Néanmoins, cette étude permet de mettre en évidence les limites de la méthode d’analyse d’image. En effet, il n’est pas possible de mesurer la taille des bulles au début de l’expérience car elles sont trop petites et la résolution de l’image n’est pas suffisamment bonne. À l’inverse, lorsque les bulles deviennent trop grosses avec une forte polydispersité, il devient difficile de remplir les conditions d’utilisation du programme. La mesure de la taille des bulles par cette méthode vient donc uniquement en complément des mesures réalisées par DWS et DTL.

11.4 Conclusion

Nous avons pu voir que pour la génération de la mousse avec une taille et une polydispersité conforme au cahier des charges, la meilleure combinaison est : $P = 1000 \text{ mA}$, $F = 5 \text{ Hz}$, $t_{ag} = 3 \text{ s}$ et 3 agitations. Cependant, il est nécessaire de garder un contrôle en temps réel sur les paramètres afin de pouvoir générer une nouvelle mousse si les paramètres initiaux ne permettent pas de remplir les conditions de validité nécessaires à l’étude du mûrissement de mousses humides. Au cours de l’expérience, il est donc indispensable de mesurer automatiquement la taille des bulles. Pour cela, nous avons développé un programme Matlab. Enfin, l’étude de l’évolution de la taille des bulles montre que le rayon moyen des bulles et la polydispersité augmentent au cours du temps. Cette étude permet de montrer les limites du traitement d’images. Ce traitement vient en complément de l’analyse DTL.

Enfin, au cours de cette collaboration avec Airbus, nous avais eu l’occasion de participer l’élaboration des protocoles qui sont écrits de manière très détaillée de façon à être utilisés par différentes équipes de manière aisément reproductible.

Conclusion

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés aux mousses 3D et plus particulièrement à la loi de croissance qui régit leur mûrissement. Cette loi de croissance $\langle R \rangle \propto t^\beta$ valable dans le régime auto-similaire [48]. Elle a été mise en évidence par Mullins [49] est difficile à observer expérimentalement car, d'une part, il faut une technique non invasive pour mesurer la taille des bulles dans le volume et, d'autre part, on doit maintenir la fraction liquide constante dans le volume de mousse étudiée. Néanmoins, de nombreuses études expérimentales sur les mousses sèches ont été effectuées par tomographie [42] ou plus souvent par DTS et DWS [18, 36, 63, 68]. Ces études mettent en évidence la valeur $\beta \approx 1/2$ pour les mousses sèches. Une étude réalisée par Isert et al [36] montre, pour des mousses de SDS en lévitation magnétique, que $\beta \approx 1/2$ pour $\phi \leq 20\%$ et $\beta \approx 1/3$ pour $\phi \geq 30\%$. Entre ces deux valeurs de fraction liquide, les auteurs observent une décroissance rapide de β avec la fraction liquide.

Afin d'essayer de confirmer ces résultats expérimentaux, nous avons réalisé une étude de l'évolution de la taille moyenne des bulles de mousses humides par DTL. Dans cette expérience, le drainage est éliminé en confinant la mousse entre deux plaques. **Ces expériences réalisées pour des mousses de TTAB, de TTAB /dodécanol, de TTAB/glycérol et de TTAB/dodécanol/glycérol, mettent en évidence une valeur de β de $1/2$ correspondant à la valeur attendue pour une mousse sèche. Cependant, pour les mousses les plus humides ($\phi = 30\%$) pour lesquelles Isert *et al.* ont trouvé $\beta = 1/3$, nous obtenons également $\beta \approx 1/2$.** Notre expérience est rendue difficile par la présence de coalescence dans certains échantillons (TTAB et TTAB/glycérol) qui augmente la valeur de β car les bulles grossissent plus rapidement. De plus, il y a seulement un petit intervalle de tailles de bulles pour que les conditions de diffusion multiple sont valables et le drainage négligeable, ce qui rend difficile une estimation précise de la loi de puissance. Ces résultats sont pourtant identiques à ceux trouvés par F. Graner et A. Saint-Jalmes qui utilisent une expérience de cellule tournante.

Il semble donc indispensable de mener des expériences en microgravité pour permettre l'étude sur des temps long de l'évolution de la taille des bulles dans des mousses très humides.

Cette expérience sera réalisée à bord de l'ISS, au cours de l'année prochaine. Ce projet est une collaboration entre l'ESA, Airbus Defence and Space et une équipe scientifique. Le montage expérimental est composé d'un carrousel avec des cellules contenant des solutions de TTAB ou de TTAB/dodécanol. La génération des mousses à différentes fractions liquides est réalisée à l'aide d'un piston avec un aimant, placé dans la cellule, et actionné grâce à un champ magnétique. L'étude de l'évolution de la taille des bulles est réalisée par différentes techniques de diffusion multiple de la lumière. En complément, des images de la mousse sont prises grâce à une fenêtre sur le dessus de la cellule. Ces images permettent, d'une part, de vérifier l'homogénéité de la mousse après sa génération et, d'autre part, d'établir la correspondance entre l'intensité transmise

et le rayon moyen des bulles. Nous avons eu l'occasion de participer à l'élaboration des protocoles de remplissage et de nettoyage des cellules. La validité de la procédure de nettoyage a été vérifiée en mesurant la tension de surface tous les mois pendant six mois. Il a été également possible de participer à une campagne de tests, dans les locaux d'Airbus Defence and Space, afin d'évaluer les paramètres de contrôle du piston générant la mousse et de mettre en place un programme Matlab permettant la mesure automatique de la taille des bulles.

Conclusion générale

Au cours de ce travail de thèse, nous avons cherché à étudier **le mûrissement et la coalescence de mousses liquides**. Pour cela, nous avons réalisé différents montages expérimentaux permettant d'étudier des mousses 2D et 3D à fraction liquide constante. Nous avons également développé des outils d'analyse des résultats expérimentaux. L'ensemble de ce travail a été rassemblé dans ce manuscrit en deux parties, la première réunissant l'étude des mousses 2D que ce soit au niveau de la coalescence, du mûrissement ou de la compétition entre ces deux processus et la seconde traitant du mûrissement dans les mousses 3D humides.

Après avoir rappelé, dans une première partie, les généralités sur la structure et le vieillissement des mousses, nous avons, tout d'abord, décrit dans la partie 2, **un montage expérimental permettant de contrôler l'humidité de la mousse 2D** grâce à la présence d'un réservoir connecté à la partie 2D de la cellule. Ce dispositif permet, en fixant la hauteur de liquide dans le réservoir, de fixer la pression capillaire et donc la taille des pseudo-bords de Plateau dans la mousse 2D. Nous avons pu le vérifier lors de la caractérisation de l'expérience qui nous a également permis de constater **le lien entre la fraction liquide surfacique ϕ_s et le rayon des pseudo-bords de Plateau r_{PS}** pour $\phi_s < 65\%$ grâce à la relation 4.2. Nous avons montré que polydispersité sur ϕ_s et r_{PS} a montré que ϕ_s et r_{PS} ne dépendent pas de la polydispersité.

Dans le chapitre 5, nous avons présenté **un programme de Matlab permettant de suivre les bulles d'une image à l'autre et de détecter les événements isolés de coalescence**. À partir de ce programme on peut également regrouper toutes les informations sur chaque bulle et aussi des informations générales sur la mousse à chaque instant. Dans ce chapitre, nous avons également montré qu'il était possible **de différencier les mousses qui évoluent majoritairement par mûrissement de celles qui évoluent par coalescence grâce à un paramètre de convexité C_v** . En effet, $C_v \approx 1$ lorsque la mousse évolue par mûrissement et par des événements isolés de coalescence alors qu'il augmente lorsque la mousse évolue par coalescence massive. De plus, ce paramètre permet de définir un temps de coalescence t_{coal} lorsque $C_v > 2$ qui correspond également à la mise en place d'un régime au cours duquel la coalescence se localise majoritairement au niveau de grosses bulles.

Dans le chapitre 6, nous nous sommes intéressés au mûrissement des mousses 2D et à la mesure de la perméabilité des films de TTAB. **Pour cela, nous avons analysé nos données avec deux modèles. Le premier est le modèle de von Neumann qui n'est valable que dans les mousses sèches et le second est une amélioration de ce modèle réalisée par Schimming *et al.*** qui tient compte de la présence des bords de Plateau, des pseudo-bords de Plateau et des vertex. Les coefficients de diffusion effectifs ont été déterminée à partir de la méthode du temps catastrophique par Saulnier *et al.*. Le calcul des perméabilités pour différentes tailles de pseudo-bords de Plateau avec l'équation de von Neumann montre une valeur de perméabilité plus faible que la valeur mesurée à l'aide de méthode classique. **Les valeurs mesurées avec l'amélioration de Schimming sont proches de la valeur mesurée par d'autres méthodes, 1.9 mm.**

Dans le chapitre 7, nous avons cherché à contrôler chacun des paramètres pouvant influencer la coalescence à l'aide du montage expérimental présenté dans le chapitre 4 **Une première analyse à l'échelle de la mousse montre que la coalescence augmente avec la taille des bulles R et diminue avec la taille des pseudo-bords de Plateau r_{PS} et la fraction liquide ϕ_s . Une analyse à l'échelle de chaque bulle révèle néanmoins que fraction liquide surfacique locale $\phi_{s,loc}$**

est le paramètre le plus pertinent des trois. En effet, lorsque $\phi_{s\text{ loc}} > 86\%$, il n'y a plus de coalescence car il n'existe plus de films. De plus, on peut remarquer que la probabilité de casser diminue fortement lorsque $\phi_{s\text{ loc}} > 6\%$. Cette valeur correspond à $\phi \approx 0.056\%$ dans une mousse 3D, ce qui est proche des valeurs de fractions liquides critiques de coalescence trouvées par Bianco *et al.* et Carrier *et al.*.

Dans la partie III, nous nous sommes intéressés aux mousses 3D. Pour cela, nous avons vu dans le chapitre 8, une expérience mettant en évidence **une nouvelle méthode de mesure de la fraction liquide à partir d'une image de la surface.** Les expériences ont également montré que la taille des bulles et la polydispersité de la mousse n'avaient pas d'influence sur cette relation. De plus, **les données expérimentales sont en bon accord avec les courbes théoriques calculées à partir d'une approximation géométrique et une analyse numérique utilisant la pression osmotique et l'énergie de la mousse.**

Dans le reste de cette partie, nous nous sommes focalisés sur le mûrissement des mousses 3D humides. Ainsi, nous avons tout d'abord rappelé dans le chapitre 9, la théorie de la diffusion multiple de la lumière, très utile pour étudier les milieux concentrés qui sont très diffusant et les lois de croissance du rayon moyen des bulles au cours du temps, $\langle R \rangle \propto t^\beta$. Dans la limite sèche, on attend $\beta = 1/2$ alors que lorsque $\phi \gg \phi_c$, on attend $\beta = 1/3$ mais entre ces deux limites la loi de croissance est peu connue. Enfin dans ce chapitre, nous avons présenté un certain nombre d'expériences mettant en évidence les lois de croissance dans les mousses sèches ou humides. L'une d'entre elles en particulier, réalisée par Isert *et al.* en lévitation magnétique et balayant l'ensemble des fractions liquides, montre une transition rapide entre $\beta = 1/2$ et $\beta = 1/3$.

Dans le chapitre 10, nous avons présenté une expérience de mousses confinées afin d'étudier des mousses de $\phi \leq 30\%$. L'évolution du rayon des bulles est mesurée grâce à la transmission diffuse de la lumière. Nous avons ensuite vu le protocole permettant de considérer une valeur de β comme valable. Ce protocole est composé de trois parties. Tout d'abord, nous éliminons les expériences pour lesquels le drainage intervient rapidement après le début de l'expérience, puis il faut tenir compte du moment auquel les conditions de DWS ne sont plus remplies. Enfin, le temps de la première avalanche de coalescence est relevé afin de vérifier que la coalescence n'intervient pas dans l'intervalle de temps pendant lequel la mousse est étudiée. **Nous avons ainsi montré que les valeurs de β restant pour les mousses de TTAB et de TTAB/dodécanol sont comparables à celles trouvées dans la littérature pour $\phi < 30\%$ alors que la présence de glycérol dans la solution de TTAB ou de TTAB/dodécanol, augmente le coefficient β .** Par ailleurs, **pour $\phi = 30\%$, on ne retrouve pas le résultats de Isert *et al.*, ce qui demande vérification.** Malheureusement, avec ce montage expérimental, il n'est pas possible de faire des mousses de fraction liquide supérieure à 30%. De même, les mousses de fraction liquide comprises entre 20% et 30% drainent fortement, ce qui complique l'interprétation des valeurs de β . Il est donc nécessaire de réaliser des expériences en microgravité, ce qui est l'objet du projet que nous avons présenté dans le chapitre 11. Ce projet appelé "Soft Matter Dynamics" vise à étudier le mûrissement et le réarrangement des bulles dans les mousses humides mais permet également l'étude des granulaires et des émulsions. Il s'agit d'une collaboration entre une équipe de scientifiques, l'ESA et Airbus Defence and Space. Au début de ce chapitre, **nous avons présenté le dispositif expérimental qui sera envoyé dans l'ISS en cours d'année prochaine.** Nous avons détaillé les protocoles de nettoyage et de remplissage établis en collaboration avec Airbus Defence and Space.

La validité du protocole de nettoyage a été vérifiée en mesurant la tension de surface de l'eau dans laquelle les cellules ont été plongées. Nous avons également **élaboré un programme permettant de mesurer automatiquement la taille des bulles.** Enfin, au cours d'une semaine de tests chez Airbus, nous avons pu établir les limites de ce programme et trouver la meilleure combinaison de paramètres pour la génération de la mousse.

Ce travail de thèse laisse des questions ouvertes aussi bien concernant le mûrissement des mousses humides que la coalescence des mousses 2D. Ainsi, nous ne nous sommes pas intéressés à l'influence de la physicochimie sur la perméabilité des films. Il serait intéressant de changer la physico-chimie, d'une part, pour confirmer la validité des méthodes utilisées pour le calcul de la perméabilité notamment avec l'amélioration de Schimming et, d'autre part, pour étudier l'influence de la viscosité, de la rigidité de l'interface, de la taille des molécules tensioactives ou du gaz sur le mûrissement.

Concernant la coalescence de mousses 2D, il serait intéressant de compléter l'étude en regardant l'influence des réarrangements T1 sur la coalescence. Un programme Matlab de suivi de bulles a été réalisé dans ce sens. Cependant, une étude systématique des T1, de leurs positions en espace et en temps par rapport aux événements de coalescences doit être entreprise. L'étude de l'impact de la physico-chimie sur la coalescence serait également intéressant.

Dans le cas du mûrissement des mousses 3D humides, l'étude des lois de croissance laisse des questions auxquelles des réponses seront peut-être apportées par le projet "Soft Matter Dynamics" ou par les expériences en cellule tournante effectuées par F. Graner et A. Saint-Jalmes avec qui nous collaborons.

Annexe

Chapitre 12

Annexe A : rapport sur les expériences réalisées en lévitation magnétique

Rapport : Magnetic levitation of foam

12.1 Introduction

During my stay in Konstanz from 13th to 17th July, I did six experiments on foams ageing in magnetic levitation. The foam is made with TTAB at a concentration of 3 g/L. The liquid fraction of the foam is different for each experiment (13 %, 14 %, 28 %, 31 %, 37 % and 50 %). The transmitted intensity is measured by a fast camera during 2 s at a frame rate of 1/1000 at different foam ages. Different types of data analysis have been performed on these experiments. First, I looked at the evolution of the mean intensity of pictures with foam ageing. Second, I measured the decay time, τ_D with the help of DWS through the program written by Isert *et al.* In the following,

I will compare my data to the ones obtained by Isert *et al* [36],[37], who worked on SDS foams using a photomultiplier (PM) to measure the light intensity.

12.2 Intensity calculation

12.2.1 Transmitted intensity in function of foam age

The first treatment is the calculation of the mean intensity in a central part of the pictures. We cut off a sub-picture (256×256) in the middle of the original picture and we calculate the intensity averaged in space for each picture. The obtained intensity is then averaged on the 2000 pictures taken at a given foam age. The averaged intensity is then normalized by the intensity measured on the youngest foam at t_0 . We obtain the results in fig. 12.1a by representing the normalized intensity as a function of the age of the foam.

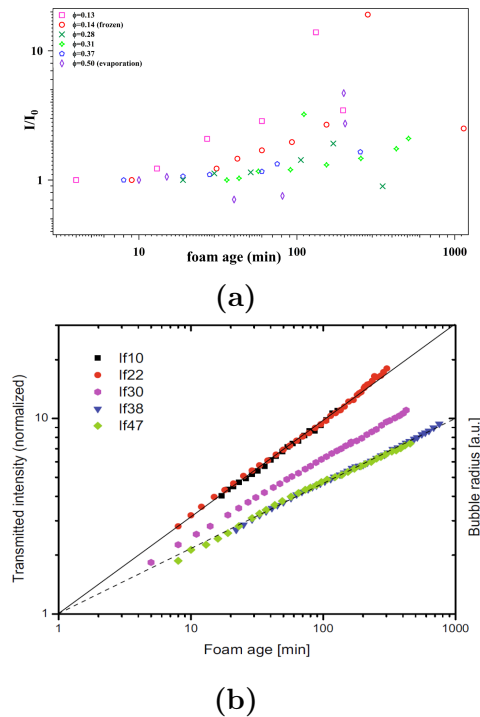


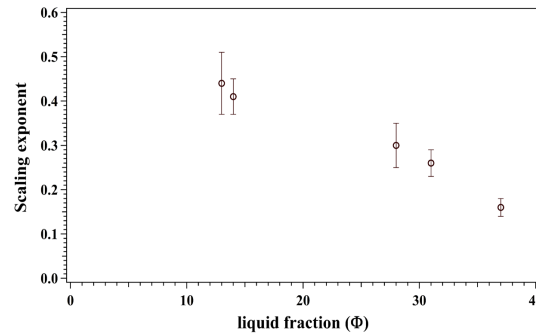
FIGURE 12.1: *intensity normalized by the intensity at the beginning of the experiment vs the age of the foams at different liquid fractions. a) Results of my experiments done with TTAB for 6 liquid fractions (13 % in pink square, 14 % in red circle, 28 % green cross, 31 % green star, 37 % in blue and 50 % for the purple diamonds). b) Results for the SDS foam extracted from the article of Isert and al. [36]. The different liquid fractions in this case are 10 % in black, 22 % in red dots, 30 % in purple, 38 % in blue triangle and 47 % in green diamond.*

In fig. 12.1b which represents the normalized transmitted intensity versus the age of the SDS foam in log-log scale, we can see that the evolution of the transmitted intensity varies with the liquid fraction ϕ . The transmitted intensity always increases linearly with the foam age. For the low liquid fraction (10 % and 22 %), the slope is $1/2$ and for the highest liquid fraction, the slope is $1/3$. The curve for the foam near the critical liquid fraction follow a other power law.

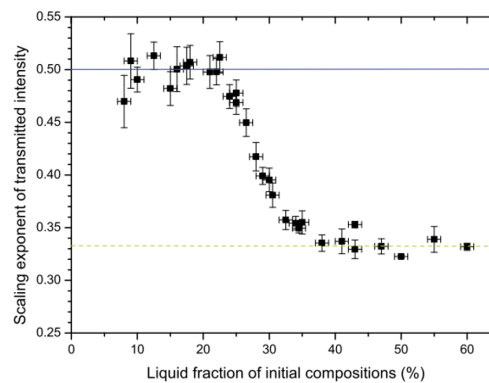
In the case of TTAB foam (fig. 12.1a), the data are much more noisy probably due to the different methods used to measure the mean intensity (fast camera vs PM).

12.2.2 Scaling exponent of transmitted intensity versus liquid fraction

Using the results of the previous section (12.2.1), it is possible to obtain the scaling exponent of the transmitted intensity by fitting the curve by a power law $\frac{I}{I_0} \approx t^\beta$. Figure 12.2 represents this scaling exponent as a function of the liquid fraction (fig 12.2).



(a)



(b)

FIGURE 12.2: Evolution of Scaling exponent of transmitted intensity in function of the liquid fraction. a) for SDS foam from the article of Isert and al. [36] and b) from experiment done with TTAB foam.

The figure 12.2b is obtained for SDS and we can see that for low liquid fraction, below 25 %, the scaling factor β is around 1/2 for liquid fraction above 35%, β is around 0.33. For liquid fractions between 25 % and 35% the value of the β progressively decreases.

In the case of TTAB foam (fig 12.2a), we can see that for low values of liquid fraction (13 %, 14 %), β is similar to the β found in [36] whereas for high liquid fraction (28 %, 31 %, 37 %), the scaling exponent is much lower than the one found for SDS in [36] (Fig. 12.2b).

It is difficult to explain why both experiments (SDS and TTAB) give so different results. The main difference between them is the method used to measure the mean intensity. Indeed, the experiment on SDS was performed with a PM and a correlation whereas the experiment in TTAB were performed with a ultra-fast camera. In principle this should not change the power law β and only change the scale of the measured intensities. But this difference of measurement can perhaps explain why the results obtained with TTAB are much more noisy than those obtained with SDS.

12.3 DWS measurement

In order to fully exploit the data, we calculated the correlation function $g_2(t)$ using the Matlab program developed by Isert *et al.* (CDD correlation analysis).

12.3.1 Evolution of the correlation function with foam age

Using the Matlab program, we calculate the correlation function, g_2 , for each foam :

$$g_2(\tau) = \left\langle \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle_p}{\langle I(t) \rangle_p \langle I(t+\tau) \rangle_p} \right\rangle_t \quad (12.1)$$

In figure 12.3, this correlation function at different foam age for a foam of liquid fraction 31% using the equation 12.1.

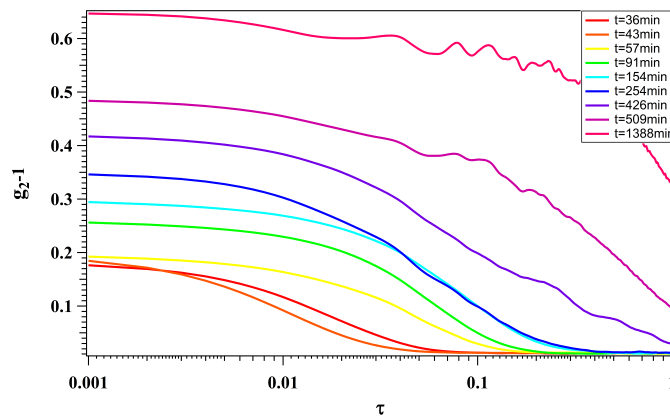


FIGURE 12.3: Correlation function ($g_2 - 1$) for different TTAB foam age t : in red for $t = 8$ min, in orange $t = 19$ min, in yellow $t = 28$ min, in green $t = 60$ min, in light blue $t = 75$ min and in blue $t = 252$ min.

In this figure (fig. 12.3), the foam age varying from 36 min for the first curve to 1388 min for the pink one. On these curves, we can see that the intercept, is different from one curve to another, increases with the foam age which is strange.

12.3.2 Evolution of the decay time with foam age

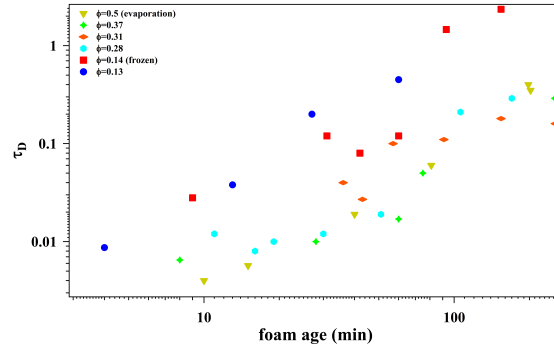
Using the correlation function at each foam age, we can calculate the correlation time, τ_D . In the Matlab program, τ_D is calculated by integrating :

$$\int_0^\infty \frac{g_2(t) - 1}{\beta} dt = \int_0^\infty \exp^{-2t/\tau_D} dt = \frac{\tau_D}{2} \quad (12.2)$$

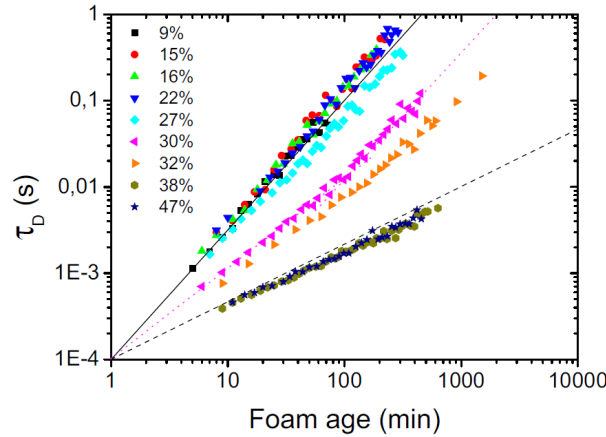
Using equation 12.2 is possible only if the beginning and the end of the curves at plateau are visible. If it isn't the case, the value of the correlation time will be wrong. Another way to calculate the correlation time is by fitting the slope of the curve with the equation following function :

$$g_2(t) - 1 = \beta \exp^{-2t/\tau_D} \quad (12.3)$$

In figure 12.4b, the correlation function is calculated by the correlator. We can see for SDS foam that at low liquid fraction, between 9% and 27%, $\tau_D \approx t^{3/2}$ whereas at



(a) DWS correlation time for TTAB with different liquid fraction versus foam age.



(b) DWS correlation time for several foams of SDS with different liquid fractions versus foam age. At low liquid fraction, the power law is $t^{3/2}$ and at high liquid fraction, the power law is $t^{2/3}$.

FIGURE 12.4: Evolution of the decay time with the foam age at different liquid fractions for a) for TTAB and b) SDS foam from [37].

higher liquid fraction, 38% and 47%, the power law becomes $\tau_D \approx t^{2/3}$. Between this two extremes, the power law are is intermediate.

The results shown in figure 12.4a for the TTAB are not as clear. This are more noisy and we do not find the power laws $2/3$ and $3/2$.

12.4 Conclusion

In conclusion, the intensity results with the TTAB foam are very different from those obtained in [36] and [37]. One of the reasons is probably that the experiment has been done with a different methods. In [36] and [37] the use of the correlator allows more precision in the measurement of τ_D . We also have only very scarce data concerning TTAB so it is difficult to compare the two experiments.

Références

Bibliographie

- [1] V. Bergeron. Disjoining Pressures and Film Stability of Alkyltrimethylammonium Bromide Foam Films. *Langmuir*, 13(13) :3474–3482, 1997.
- [2] V. Bergeron. Forces and structure in thin liquid soap films. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 215, 1999.
- [3] A.-L. Biance, A. Delbos, and O. Pitois. How topological rearrangements and liquid fraction control liquid foam stability. *Physical review letters*, 068301 :1–4, 2011.
- [4] B.P. Binks. Emulsions-recent advances in understanding in modern aspects of emulsion science., 1998.
- [5] Z. Briceño-Ahumada and D. Langevin. On the influence of surfactant on the coarsening of aqueous foams. *Advances in Colloid and Interface Science*, 244 :124–131, 2017.
- [6] A.G. Brown, W. C. Thuman, and J.W. McBain. Transfer of air through adsorbed surface films as a factor in foam stability. *Journal of Colloid Science*, 8(5) :508–519, 1953.
- [7] I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer, and A. Saint-Jalmes. *Les Mousses : structure et dynamique*. Belin, 2010.
- [8] V. Carrier and A. Colin. Coalescence in Draining Foams. *Langmuir*, 19(11) :4535–4538, 2003.
- [9] V. Carrier, S. Destouesse, and A. Colin. Foam drainage : A film contribution ? *Physical Review E*, 65(6) :061404, 2002.
- [10] A. Cervantes Martinez, E. Rio, G. Delon, A. Saint-Jalmes, D. Langevin, and B. P. Binks. On the origin of the remarkable stability of aqueous foams stabilised by nanoparticles : link with microscopic surface properties. *Soft Matter*, 4(7) :1531, 2008.
- [11] H. C. Cheng and R. Lemlich. Errors in the measurement of bubble size distribution in foam. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 22(1) :105–109, 1983.
- [12] P.G. de Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Belin Paris, 2002.
- [13] B. Deminiere, A. Colin, F. Leal-Calderon, J. Muzy, and J. Bibette. Cell Growth in a 3D Cellular System Undergoing Coalescence. *Physical Review Letters*, 82(1) :229–232, 1999.
- [14] N. D. Denkov, S. Tcholakova, K. Golemanov, T. Hu, and A. Lips. Theoretical model of viscous friction inside steadily sheared foams and concentrated emulsions. *AIP Conference Proceedings*, 1027 :902–904, 2008.
- [15] B. Dollet. *Écoulements bidimensionnels de mousse autour d'obstacles*. These, Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2005.
- [16] W. Drenckhan and A. Saint-Jalmes. The science of foaming. *Advances in Colloid and Interface Science*, 222 :228–259, 2015.

- [17] J. Duplat, B. Bossa, and E. Villiermaux. On two-dimensional foam ageing. *Journal of Fluid Mechanics*, 673 :147–179, 2011.
- [18] D. J. Durian, D. A. Weitz, and D. J. PINE. Multiple Light-Scattering Probes of Foam Structure and Dynamics. *Science*, 252(5006) :686–688, 1991.
- [19] D. J. Durian, D. A. Weitz, and D. J. Pine. Scaling behavior in shaving cream. *Physical Review A*, 44(12) :7902–7906, 1991.
- [20] D.J. Durian, D.A. Weitz, and D.J. Pine. Dynamics and coarsening in three-dimensional foams. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 2 :SA433–SA436, 1990.
- [21] K. Feitosa, S. Marze, A. Saint-Jalmes, and D. J. Durian. Electrical conductivity of dispersions : from dry foams to dilute suspensions. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17 :6301–6305, 2005.
- [22] E. Forel, E. Rio, S. Beguin, S. Hutzler, D. Weaire, and W. Drenckhan. Relationship between bulk and surface volume fractions of liquid dispersions. *Soft Matter*, 12 :1–5, 2016.
- [23] I Fortuna, G.L. Thomas, M. C. R. de Almeida, and F. Graner. Growth Laws and Self-Similar Growth Regimes of Coarsening Two-Dimensional Foams : Transition from Dry to Wet Limits. *Physical Review Letters*, 108(24) :248301, 2012.
- [24] T. Gaillard, C. Honorez, M. Jumeau, F. Elias, and W. Drenckhan. A simple technique for the automation of bubble size measurements. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 473 :68–74, 2015.
- [25] P.R. Garrett, J.D. Hines, S.C. Joyce, and P.T. Whittal, 1993.
- [26] C. Gay, P. Rognon, D. Reinelt, and F. Molino. Rapid Plateau border size variations expected in three simple experiments on 2D liquid foams. *The European physical journal. E, Soft matter*, 34(1) :1–11, 2011.
- [27] A. S. Gittings, R. Bandyopadhyay, and D. J. Durian. Photon channelling in foams. *Europhysics Letters*, 65(3) :414–419, feb 2004.
- [28] J. A. Glazier and D. Weaire. The kinetics of cellular patterns. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 4(8) :1867–1894, feb 1992.
- [29] C. P. Gonatas, J. S. Leigh, A. G. Yodh, J. A. Glazier, and B. Prause. Magnetic Resonance Images of Coarsening Inside a Foam. *Physical Review Letters*, 75(3) :573–576, 1995.
- [30] S. Hilgenfeldt, S. A. Koehler, and H. A. Stone. Dynamics of Coarsening Foams : Accelerated and Self-Limiting Drainage. *Physical Review Letters*, 86(20) :4704–4707, 2001.
- [31] R. Höhler. private communication, 2016.
- [32] R. Höhler and S. Cohen-Addad. Rheology of liquid foam. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 17(41) :R1041–R1069, oct 2005.

- [33] R. Höhler, Y. Yip Cheung Sang, E. Lorenceau, and S. Cohen-Addad. Osmotic Pressure and Structures of Monodisperse Ordered Foam. *Langmuir*, 24(2) :418–425, 2008.
- [34] S. Hutzler, R. P. Murtagh, D. Whyte, S. T. Tobin, and D. Weaire. Z-cone model for the energy of an ordered foam. *Soft Matter*, 10(36) :7103–8, 2014.
- [35] S. Hutzler, G. Verbist, D. Weaire, and J. A. Van Der Steen. Measurement of Foam Density Profiles Using AC capacitance. *Europhysics Letters (EPL)*, 31(8) :497–502, 1995.
- [36] N. Isert, G. Maret, and C. M. Aegerter. Coarsening dynamics of three-dimensional levitated foams : From wet to dry. *The European Physical Journal E*, 36(10) :116, 2013.
- [37] N. Isert, G. Maret, and C. M. Aegerter. Studying foam dynamics in levitated, dry and wet foams using diffusing wave spectroscopy. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 2014.
- [38] P.D. Kaplan, M.H. Kao, A.G. Yodh, and D.J. Pine. Geometric constraints for the design of diffusing-wave spectroscopy experiments. *Applied Optics*, 32(21) :3828–3836, 1993.
- [39] N. Kern and D. Weaire. Approaching the dry limit in foam. *Philosophical Magazine*, 83(26) :2973–2987, 2003.
- [40] K. Khristov, D. Exerowa, and G. Minkov. Critical capillary pressure for destruction of single foam films and foam : Effect of foam film size. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 210(2-3) :159–166, 2002.
- [41] R. Krustev and H. J. Müller. An apparatus for the measurement of the gas permeability of foam films. *Review of Scientific Instruments*, 73(2 I) :398, 2002.
- [42] J. Lambert, R. Mokso, I. Cantat, P. Cloetens, J. A. Glazier, F. Graner, and R. Delannay. Coarsening Foams Robustly Reach a Self-Similar Growth Regime. *Physical Review Letters*, 104(24) :248304, 2010.
- [43] I.M. Lifshitz and V.V. Slyozov. The kinetics of precipitation from supersaturated solid solutions. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 19(1) :35–50, 1961.
- [44] A. Maestro, W. Drenckhan, E. Rio, and R. Höhler. Liquid dispersions under gravity : volume fraction profile and osmotic pressure. *Soft Matter*, 9(8) :2531, 2013.
- [45] T. G. Mason, M. D. Lacasse, G. S. Grest, D. Levine, J. Bibette, and D. A. Weitz. Osmotic pressure and viscoelastic shear moduli of concentrated emulsions. *Physical Review E*, 56(3) :3150–3166, 1997.
- [46] A.J. Meagher, D. Whyte, J. Banhart, S. Hutzler, D. Weaire, and F. García-Moreno. Slow crystallisation of a monodisperse foam stabilised against coarsening. *Soft Matter*, 11(23) :4710–6, 2015.
- [47] S. Mukherjee and H. Wiedersich. Morphological and viscoelastic properties of dense foams generated from skin cleansing bars. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 95(2-3) :159–172, 1995.

- [48] W. W. Mullins. The statistical self-similarity hypothesis in grain growth and particle coarsening. *Journal of Applied Physics*, 59(4) :1341–1349, 1986.
- [49] W. W. Mullins. Estimation of the geometrical rate constant in idealized three dimensional grain growth. *Acta Metallurgica*, 37(11) :2979–2984, 1989.
- [50] R. Murtagh, D. Whyte, D. Weaire, and S. Hutzler. Adaptation of the $\langle i \rangle Z \langle /i \rangle$ -cone model to the estimation of the energy of a bcc foam. *Philosophical Magazine*, 95(35) :4023–4034, 2015.
- [51] M. Nedyalkov, R. Krustev, D. Kashchiev, D. Platikanov, and D. Exerowa. Permeability of newtonian black foam films to gas. *Colloid and Polymer Science*, 266(3) :291–296, 1988.
- [52] H. M. Princen. Rheology of foams and highly concentrated emulsions. II. experimental study of the yield stress and wall effects for concentrated oil-in-water emulsions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 105(1) :150–171, may 1985.
- [53] H. M. Princen. Pressure/volume/surface area relationships in foams and highly concentrated emulsions : role of volume fraction. *Langmuir*, 4(1) :164–169, 1988.
- [54] H. M. Princen. The Structure, Mechanics, and Rheology of Concentrated Emulsions and Fluid Foams. In Johan Sjöblom, editor, *Encyclopedic Handbook of Emulsion Technology*, chapter 11, pages 243–278. CRC Press, 2001.
- [55] H.M. Princen. Osmotic pressure of foams and highly concentrated emulsions. I. Theoretical considerations. *Langmuir*, pages 519–524, 1986.
- [56] H.M. Princen and S.G. Mason. The permeability of soap films to gases. *Journal of Colloid Science*, 20(4) :353–375, 1965.
- [57] P. Quoc Nguyen, Pacelli L. J. Zitha, and P. K. Currie. Effect of foam films on gas diffusion. *Journal of colloid and interface science*, 248(2) :467–76, 2002.
- [58] M. Ramanathan, H. J. Müller, H. Möhwald, and R. Krastev. Foam films as thin liquid gas separation membranes. *ACS applied materials & interfaces*, 3(3) :633–637, 2011.
- [59] E. Rio and A.-L. Biance. Thermodynamic and Mechanical Timescales Involved in Foam Film Rupture and Liquid Foam Coalescence. *ChemPhysChem*, 15(17) :3692–3707, 2014.
- [60] A. Roth, C. Jones, and D. Durian. Bubble statistics and coarsening dynamics for quasi-two-dimensional foams with increasing liquid content. *Physical Review E*, 87(4) :042304, 2013.
- [61] A. Saint-Jalmes. Physical chemistry in foam drainage and coarsening. *Soft Matter*, 2(10) :836, 2006.
- [62] A. Saint-Jalmes and D. Langevin. Time evolution of aqueous foams : drainage and coarsening. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 14(40) :9397–9412, 2002.

- [63] A. Saint-Jalmes, M.L. Peugeot, H. Ferraz, and D. Langevin. Differences between protein and surfactant foams : Microscopic properties, stability and coarsening. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 263(1-3) :219–225, 2005.
- [64] L. Saulnier, W. Drenckhan, P.-E. Larré, C. Anglade, D. Langevin, E. Janiaud, and E. Rio. In situ measurement of the permeability of foam films using quasi-two-dimensional foams. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 473 :32–39, 2015.
- [65] C. D. Schimming and D. J. Durian. Border-crossing model for the diffusive coarsening of two-dimensional and quasi-two-dimensional wet foams. *Physical Review E*, 96(3) :032805, 2017.
- [66] E. Solórzano, S. Pardo-Alonso, J.A. de Saja, and M.A. Rodríguez-Pérez. Study of aqueous foams evolution by means of X-ray radioscopy. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 438 :159–166, 2013.
- [67] J. Stavans and J.A. Glazier. Soap froth revisited : Dynamic scaling in the two-dimensional froth. *Physical Review Letters*, 62(11) :1318–1321, 1989.
- [68] A. Stocco, F. Garcia-Moreno, I. Manke, J. Banhart, and D. Langevin. Particle-stabilised foams : structure and aging. *Soft Matter*, 7(2) :631–637, 2011.
- [69] C. Stubenrauch and K. Khristov. Foams and foam films stabilized by CnTAB : influence of the chain length and of impurities. *Journal of colloid and interface science*, 286(2) :710–8, 2005.
- [70] S. Tcholakova, N. D. Denkov, I. B. Ivanov, and B. Campbell. Coalescence stability of emulsions containing globular milk proteins. *Advances in Colloid and Interface Science*, 123-126(SPEC. ISS.) :259–293, 2006.
- [71] M. van Hecke. Jamming of soft particles : geometry, mechanics, scaling and iso-staticity. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 22(3) :033101, 2010.
- [72] M. U. Vera and D. J. Durian. Enhanced Drainage and Coarsening in Aqueous Foams. *Physical Review Letters*, 88(8) :088304, 2002.
- [73] M. U. Vera, A. Saint-Jalmes, and D. J. Durian. Scattering optics of foam. *Applied optics*, 40(24) :4210–4214, 2001.
- [74] J. von Neumann. Metal interfaces. *American Society for Metals, Cleveland*, 108, 1952.
- [75] F. Wakai, N. Enomoto, and H. Ogawa. Three-dimensional microstructural evolution in ideal grain growth—general statistics. *Acta Materialia*, 48(6) :1297–1311, 2000.
- [76] Y. Wang and S. J. Neethling. The relationship between the surface and internal structure of dry foam. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 339(1-3) :73–81, may 2009.
- [77] D. Weaire, S. Hutzler, G. Verbist, and E. Peters. A review of foam drainage. *Advances in chemical Physics*,, 102, 1997.

- [78] D. L. Weaire and S. Hutzler. *The Physics of Foams*. Clarendon Press, 2001.
- [79] D. Whyte, R. Murtagh, D. Weaire, and S. Hutzler. Applications and extensions of the Z-cone model for the energy of a foam. *Colloids and Surfaces A : Physico-chemical and Engineering Aspects*, 473 :115–122, may 2015.

Titre : Mûrissement et coalescence de mousses liquides

Mots clefs : mousse liquide, micro-gravité, mûrissement, coalescence, drainage

Résumé : Les mousses sont des matériaux très largement utilisés dans l'industrie par exemple dans l'agroalimentaire ou la cosmétique. Ce sont des matériaux instables qui vieillissent au cours du temps à cause du mûrissement dû à la diffusion du gaz entre les bulles, de la coalescence qui est la fusion de deux bulles après rupture du film les séparant et du drainage dû à l'écoulement de liquide entre les bulles par gravité. Ces trois processus sont en compétition dans les mousses. Au cours de ma thèse, j'ai réalisé différentes expériences dans le but d'éliminer le drainage et d'étudier le mûrissement, la coalescence et la compétition entre les deux.

Après un rappel sur la structure, le vieillissement des mousses et la descriptions du dispositif expérimentale que j'ai mis au point pour contrôler la quantité de liquide dans la mousse, je me suis intéressée au mûrissement et à la coalescence de mousses 2D horizontales. J'ai montré tout d'abord grâce à l'analyse d'image qu'il est possible de différencier les mousses évoluant principalement par mûrissement de celles évoluant par coalescence en introduisant un paramètre de convexité sur les bulles composant la mousse.

Les mousses ayant mûri sont alors utilisées pour étudier l'impact de l'humidité des mousses sur la perméabilité des films. La perméabilité est calculée à l'aide d'une nouvelle théorie prenant en compte l'humidité de la mousse. Les mousses qui coalescent, quant à elles, sont utilisées pour étudier l'impact de la fraction liquide, de la pression capillaire et de la taille des bulles sur la coalescence dans les mousses 2D. Cette étude per-

met de montrer qu'une analyse de ces paramètres à l'échelle de la mousse n'est pas suffisante pour conclure sur leur réel impact sur la coalescence et qu'il est nécessaire d'analyser ces paramètres à l'échelle de la bulle afin de différencier leurs effets. Pour ce faire, j'ai mis au point un programme qui permet d'isoler chaque événement de coalescence. Ainsi, il existe une fraction liquide critique à partir de laquelle il n'y a plus de coalescence car les films entre les bulles n'existe plus.

A 3D, j'ai commencer par établir un lien entre les fractions liquides surface et volumique donnant une nouvelle manière de mesurer la fraction liquide volumique à partir d'une image de la surface. Ensuite, j'ai étudié le mûrissement de mousses humides 3D. Un des buts était de mettre en évidence la transition entre le régime sec où le rayon moyen croit comme le temps avec un exposant $\beta = 1/2$ et le régime très humide où $\beta = 1/3$. J'ai réalisé des expériences de diffusion multiple de la lumière, sur des mousses confinées et trouvé de valeurs de β voisine de $1/2$. Néanmoins, la mesure β dans les mousses très humides n'a pas été possible. Pour parer à cela, le projet "Soft Matter Dynamics" vise à étudier le mûrissement et le réarrangement des bulles dans les mousses humides en microgravité dans la station spatiale internationale (ISS). Mon implication dans ce projet a consisté à réaliser des protocoles de remplissage et de nettoyage de cellules en collaboration avec Airbus, à créer un programme d'automatisation de la mesure de la taille des bulles et à participer à une campagne de test du système de génération des mousses.

Title : Coarsening and coalescence of liquid foams

Keywords : Liquid foam, microgravity, coarsening, coalescence, drainage

Abstract : Foams are materials widely used in the industry, like in food industry or cosmetics industry for example. These are unstable materials that age over time by coarsening which is gas diffusion between bubbles, by coalescence which is the fusion of two bubbles after rupture of the film between them or by drainage which is the liquid flow between the bubbles due to gravity. These three processes are in competition in foams. During my thesis, I carried out various experiments in order to eliminate drainage and study coarsening, coalescence and the competition between them.

After a quick reminder on foam structure and aging and a description of the experimental set-up that I made allowing to control the liquid content of the foam, I present coarsening and coalescence experiments of horizontal 2D foams. First, I show that it is possible to differentiate foams which evolved mainly by coarsening from those which evolved by coalescence. This is done using a convexity parameter that compares the convexity of the bubbles in the foams.

The foams which coarsen are then used to study the impact of foam humidity on the films permeability. The permeability is calculated with the help of a new theory which takes into account the humidity of the foam. The coalescing foams are used to study the impact of the liquid fraction, the capillary pressure and the bubbles' size on coalescence in 2D foams. This study show that an analysis of these parameters at the scale of the foam does not allow to conclude on their real im-

impact on coalescence and that it is necessary to analyze these parameters at the scale of each bubble in order to differentiate their effects. To this end, I have developed a program that follow-up these bubbles and which isolate each event of coalescence. There is a critical liquid fraction above which there is no more coalescence because the films between the bubbles no longer exist.

In 3D, I began by establishing link between surface and volume liquid fractions giving a new method to measure the volume liquid fraction from an image of the surface. Then, I studied coarsening of 3D wet foams. One of the goals was to show the transition between the dry regime where the mean radius increase with time as a power law, with an exponent β ; in the dry regime $\beta = 1/2$ and the very wet regime where $\beta = 1/3$. I carried out multiple light scattering experiments on confined foams and found the values of β to be near $1/2$. Nevertheless, the measurement of β in very wet foams wasn't possible. To counter this, the "Soft Matter Dynamics" project aims to study the coarsening and bubbles' rearrangement of wet foams in microgravity in the international space station (ISS). My involvement in this project consisted in the realisation of cell filling and cleaning protocols in collaboration with Airbus, the creation of a program for the automatization of the bubbles' size measurement and the participation in a test campaign on the foam generation system.

