Chapitre 1

Désordre dans les mousses

1.1 Introduction.

L'étude des désordres s'est imposée comme nécessaire à un certain stade de notre étude sur la rhéologie des mousses bidimensionnelles. Je vais donc d'abord rappeler ce qu'il faut savoir sur les mousses, puis sur la rhéologie des mousses bidimensionnelles, afin de replacer le coeur du sujet dans son contexte.

1.1.1 Mousse, mousse bidimensionnelle

Une mousse liquide est constituée de bulles de gaz emprisonnées dans un réseau continu de liquide. Un des points forts de ce matériau, pour le physicien, est que son échelle "microscopique" est celle des bulles, de l'ordre de la dizaine de micromètres au millimètre voire plus. D'autre part, la seule énergie pertinente à cette échelle est celle de l'interface liquide-air, entièrement déterminée par la connaissance de la géométrie des films de liquide. La mousse est donc un matériau de choix pour faire le lien entre microscopique et macroscopique. Au point de vue fondamental, c'est un système modèle pour divers systèmes complexes : granulaires, matériaux biologiques, amorphes.

Etudier des mousses bidimensionnelles, c'est à dire réduites à une couche de bulles, permet d'avoir accès à la structure microscopique avec des techniques expérimentales légères sans perdre en généralité sur les concepts importants. On peut réaliser de telles mousses à la surface de l'eau ("mousses eau-air"), mais les bulles sont alors très fragiles. Deux types de dispositifs sont privilégiés qui protègent les bulles des courants d'air fatals : lorsque la couche de bulles est confinée entre la surface de l'eau et une plaque transparente ("mousses eauverre"), ou entre deux plaques ("mousses verre-verre"). Dans ce mémoire, il sera toujours question de mousses bidimensionnelles eau-verre, sauf lorsque c'est explicitement précisé.



FIG. 1.1 – Mousse bidimensionnelle entre la surface d'un réservoir d'eau savonneuse et un couvercle de verre ("mousse eau-verre"), photographiée par au-dessus (largeur du champ : ≈ 8 cm). On voit en blanc, par la tranche, les films d'eau verticaux qui séparent les bulles (ne pas tenir compte des réflexions parasites). En description bidimensionnelle, ils seront appelés *bords*, *côtés*, ou parfois *parois*. Chaque côté est compris entre deux *vertex*, où se rencontrent trois bords à l'équilibre (les vertex de valence supérieure à 3 sont instables). On voit que les films s'épaississent à proximité des vertex : il n'y pas de discontinuité d'orientation à l'interface eau-air. Cette zone où les films s'épaississent, soulignée en rouge pour un des vertex, donne l'échelle à laquelle la description ponctuelle rencontre ses limites. Cette longueur de coupure, étroitement liée à la notion de fraction fluide, donne aussi la distance l_c à laquelle deux vertex peuvent interagir (voir figure 1.2)[?].

Une notion importante est celle de *fraction fluide* : c'est le paramètre qui permet de passer d'une mousse "humide" (bulles presque rondes) à une mousse "sèche" (bulles plus polygonales). Dans les mousses verre-verre, la fraction fluide est la fraction volumique de liquide dans la mousse, facile à déterminer expérimentalement. Il est plus délicat de la quantifier dans les mousses eau-verre [Raufaste 2007, Cox 2008], mais on connaît les paramètres sur lesquels agir pour l'augmenter ou la diminuer (hauteur de la mousse entre liquide et couvercle, et taille moyenne des bulles).

La figure 1.1 présente une mousse bidimensionnelle, et définit les concepts de vertex et de côtés qui reviendront de manière récurrente dans ce mémoire.

1.1.2 Rhéologie des mousses, élasto-plasticité

En dépit de la simplicité de ses constituants (un liquide, un gaz), le comportement d'une mousse en mouvement, sa *rhéologie*, est complexe et pas encore



FIG. 1.2 – Schématisation de la réponse microscopique d'une mousse à un cisaillement : les bulles se déforment réversiblement (élasticité) puis, lorsque la distance entre les deux vertex centraux descend jusqu'à une valeur seuil l_c [Raufaste 2007], un échange de voisins se produit selon un processus topologique appelé " T_1 ". C'est à l'occurence de ce processus irréversible que correspond la plasticité à l'échelle de la mousse.

pleinement compris [Weaire 99]. Il est en particulier remarquable que l'état de mousse présente des propriétés inconnues aux deux fluides (air, eau savonneuse) qui la composent : après une faible sollicitation, une mousse reprend sa forme initiale (on parle d'élasticité), tandis qu'elle se déforme de manière pérenne sous l'effet d'une sollicitation plus grande (*plasticité*), tout en gardant des capacités d'écoulement lorsque la sollicitation est intense et soutenue (c'est le comportement dit visqueux des fluides classiques). Une mousse est donc un matériau visco-élasto-plastique, présentant trois comportements limite que l'on souhaite unifier [Höhler 2005]. L'enjeu est de taille, car les mousses ont de nombreuses applications (extraction pétrolière, flottation de minerais, industrie alimentaire et cosmétique, lutte contre les incendies, mise en forme de mousses solides avant polymérisation), pour lesquelles maîtriser leur rhéologie est crucial.

Le thème unificateur de l'équipe dans laquelle je travaille (sous-équipe "Mousses" de l'équipe DYFCOM du Laboratoire de Spectrométrie Physique) est l'établissement des équations constitutives de la rhéologie des mousses [Marmottant 2008]. L'objet de ce paragraphe est d'expliquer en quoi l'étude de la rhéologie nous a amenés à nous pencher sur la caractérisation du désordre d'une mousse, qui est une propriété statique.

Pour des déformations suffisamment lentes (quasistatiques), l'aspect visqueux est négligeable et on pourra se contenter d'une description élasto-plastique de la mousse. Au point de vue microscopique, l'élasticité se caractérise par une simple déformation des bulles, alors que la plasticité correspond à l'occurence d'événements dissipatifs que sont les changements de voisins, réductibles à une succession d'événements topologiques élémentaires appelés " T_1 " (figure 1.2).

Dans une description de milieu continu il est important, lorsqu'on applique une déformation à l'échelle de la mousse ou plus généralement qu'on décrit sa rhéologie, de prévoir quelle proportion de cette déformation sera convertie en déformation élastique, et quelle proportion sera dissipée plastiquement. Dans le modèle scalaire de Marmottant et Graner [Marmottant 2007], cela revient à



FIG. 1.3 – Représentation schématique de la fonction proportion de plasticité h en fonction de la déformation moyenne U des bulles, adimensionnée par la déformation maximum U_Y . On a représenté trois mousses d'abruptance différente, croissante dans le sens de la flèche.

prévoir l'allure de la fonction "proportion de plasticité" h(U), où h dépend de la déformation moyenne U des bulles [Aubouy 2003, Graner 2008]. Par définition, h vaut 0 (comportement élastique) lorsque U = 0, et vaut 1 quand le régime plastique est complètement atteint, c'est à dire lorsque la déformation des bulles plafonne à une valeur maximum U_Y . La question cruciale pour la rhéologie consiste en la façon dont h(U) va augmenter entre ces deux comportement extrêmes, ce que nous qualifions par le terme d'*abruptance* (figure 1.3). La prévision théorique de h et U_Y à partir des paramètres physiques de la mousse sont deux des briques manquant encore à l'établissement complet des relations constitutives.

Le travail de thèse de Shirin Ataei Talebi sur le régime élasto-plastique en cisaillement simple, que j'ai co-encadré avec F. Graner, a mis en évidence combien il était important de maîtriser les paramètres expérimentaux susceptibles d'influencer sur h et U_Y [Ataei Talebi 2008].

Voyons qualitativement quels peuvent être ces paramètres.

Les figures 1.4 et 1.5, présentant le déroulement d'une T_1 pour une mousse humide et pour une mousse sèche, montrent l'importance de la fraction fluide de la mousse pour U_Y : on peut atteindre des déformations moyennes plus grandes pour des mousses plus sèches, *i.e.* à faible fraction fluide.

D'autre part, la figure 1.2 montre bien qu'on s'attend, pour une mousse parfaitement hexagonale, à ce que les T_1 arrivent toutes en même temps, *i.e.* lorsque la déformation moyenne est à sa valeur maximale U_Y . Ceci correspond à une fonction h variant brutalement : nulle sur toute la plage de déformation sauf en U_Y où elle vaut 1. C'est le cas extrême vers lequel tend la mousse à abruptance



FIG. 1.4 – Changement de voisins entre 4 bulles d'une mousse humide (processus topologique T_1) : le lien entre les centre des deux bulles voisines est souligné dans les photos (a) et (c). Intervalle de temps entre les photos : 20 ms.



FIG. $1.5 - T_1$ dans une mousse sèche. Les bulles sont plus déformées, et le processus est beaucoup plus lent que dans une mousse humide (figure 1.4). La photo (c) montre la situation instable où un vertex joint 4 parois. Les photos (a), (b) et (d) sont prises respectivement 1.5 s avant, 0.1 s avant, et 0.1 s après la photo (c).

élevée de la figure 1.3.

Une mousse hexagonale est réalisée lorsque les bulles sont monodisperses, c'est à dire toutes de même volume, ou toutes de même aire en description bidimensionnelle, et parfaitement organisées. Lorsqu'on désorganise ces mêmes bulles sans changer leur aire, certains côtés deviennent plus petits que d'autres dans l'état initial, et ainsi sous cisaillement les T_1 peuvent advenir avant que la déformation moyenne des bulles atteigne la valeur maximale U_Y . La fonction haugmente plus doucement entre 0 et 1 : l'abruptance de la mousse a diminué.

De la même façon, on peut diminuer l'abruptance de la mousse en élargissant la distribution en taille de bulles : les T_1 seront facilitées au niveau des petites bulles, là où les côtés sont plus petits.

On voit que c'est la combinaison entre la fraction fluide d'une mousse, sa distribution en taille et l'organisation de ces bulles qui va déterminer l'abruptance d'une mousse, et donc sa réponse élasto-plastique à une déformation macroscopique imposée.

La notion de fraction fluide est délicate pour les mousses eau-verre (*i.e.* entre liquide et couvercle), et nécessiterait une étude en elle-même (voir des pistes dans [Raufaste 2007] et [Cox 2008]). En revanche, les réflexions exposées sur le rôle de la distribution en taille des bulles et leur organisation ont mené à l'étude des désordres topologique et géométrique présentée dans la suite de ce chapitre.

1.2 Différentes notions de désordre

Il a été expliqué au paragraphe 1.1.2 comment le désordre d'une mousse pouvait influer sur sa réponse à une sollicitation, et cela a été expérimentalement mis en évidence lors de mesures d'abruptance de mousses [Ataei Talebi]. Nous avons donc cherché à caractériser plus systématiquement l'ordre des mousses étudiées. Mais cette notion d'ordre (ou de désordre ...) est à préciser, et c'est l'objet des deux paragraphes suivants qui définissent désordre géométrique et désordre topologique.

Nous en sommes ainsi venus à étudier ces deux sortes de désordre via une étude très simple mais inédite, présentée dans le paragraphe 1.4, et qui a montré une corrélation inattendue dans des mousses soumises à un cisaillement oscillant. Mais avant de présenter ces résutats, je ferai le point sur ce qui était connu dans la littérature sur les mousses soumises à un autre type de traitement, à savoir le vieillissement, et quelles enseignements on peut en tirer sur l'étude des désordres.

Enfin, pour compléter le tableau sur les propriétés topologiques et métriques des mousses, je m'étendrai sur la "loi de Lewis", une problématique déjà ancienne mais qui charrie encore de nombreux fantasmes.

1.2.1 Désordre géométrique

Se pencher même peu de temps sur les mousse bidimensionnelles conduira naturellement à se forger deux images extrêmes : celle d'une mousse "hexagonale", à l'allure d'un nid d'abeille, parfaitement ordonnée et dont toutes les bulles ont sensiblement la même taille (voir par exemple les domaines parfaitement ordonnés de la figure 1.14). Inversement, une mousse dont les bulles couvrent toute une gamme de taille (par exemple parce qu'on l'a laissée vieillir, voir la figure 1.6) donne une grande impression de désordre. Dans une première approche, on peut donc considérer que la largeur de la distribution en taille est un indice de désordre. Le terme "désordre géométrique" désignera donc, par la suite, la quantité :

$$\frac{\delta A}{A} = \frac{\sqrt{\mu_2(A)}}{\langle A \rangle} = \sqrt{\frac{\langle A^2 \rangle}{\langle A \rangle^2} - 1}$$

Cette définition via les deux premiers moments $(\mu_1(A) = \langle A \rangle \text{ et } \mu_2(A))$ peut masquer des caractéristiques importantes de la distribution en taille. Par exemple, une distribution log-normale telle que $\langle A \rangle = 1$ et $\frac{\delta A}{A} = 0.2$ est monomodale (c'est à dire que sa distribution est plus ou moins piquée autour d'une aire caractéristique), et elle a la même taille moyenne et le même désordre géométrique qu'une distribution bidisperse (i.e. strictement composée de deux tailles) de bulles d'aire 0.8 et 1.2 en nombre égal. Dans la suite, le terme de morphologie sera utilisé pour évoquer son caractère monomodal, bimodal (distribution formée de deux pics), polydisperse (distribution large, pour laquelle on ne peut trouver une taille caractéristique) ou autre.

Nous allons voir néanmoins que cette caractérisation par la largeur relative $\frac{\delta A}{A}$ de la distribution en taille, qui ne tient pas compte de la morphologie de la mousse, est suffisante pour obtenir des corrélations intéressantes.

1.2.2 Désordre topologique

Pour une même mousse, c'est à dire une même collection de bulles et donc une même distribution en taille, le désordre peut varier selon l'arrangement des bulles. Pour une mousse strictement monodisperse en taille, on conçoit que l'arrangement hexagonal où toutes les bulles ont six côtés corresponde à une mousse parfaitement ordonnée, tandis que l'existence de défauts dans cet ordre hexagonal, caractérisés dans les cas de désordre faible par des paires de bulles à 5 et 7 côtés, contribue à accroître le désordre. La distribution du nombre de côtés n des bulles est donc un bon indicateur de cette notion, et de même qu'au paragraphe précédent, nous définissons le désordre topologique par la largeur relative de cette distribution :

$$\frac{\delta n}{n} = \frac{\sqrt{\mu_2(n)}}{\langle n \rangle} = \sqrt{\frac{\langle n^2 \rangle}{\langle n \rangle^2} - 1}$$

On notera que les mousses liquides sont trivalentes à l'équilibre, c'est-à-dire que les parois (*i.e.* le film de savon entre deux bulles) ne peuvent se rencontrer à plus de trois sous peine d'instabilité. En outre, l'équilibre mécanique impose que ces parois fassent un angle de 120° entre elles (lois de Plateau [Weaire 99]). Ces deux propriétés très simples, combinées à la relation d'Euler, imposent que le nombre moyen $\langle n \rangle$ de côtés par bulle reste proche de 6 :

$$\langle n \rangle = 6 \left(1 - \frac{1}{N} \right)$$

où N est le nombre total de bulles (voir la démonstration par exemple dans[Weaire 99] ou [Schliecker 2002]). Dans toutes les expériences présentées par la suite, où N est grand, on pourra donc se contenter de calculer le désordre topologique via : $\frac{\delta n}{n} = \frac{\sqrt{\mu_2(n)}}{6}$.

1.2.3 Collusion des désordres géométrique et topologique.

En dépit de l'appel à l'intuition fait au début du paragraphe 1.2.1, $\frac{\delta n}{n}$ et $\frac{\delta A}{A}$ ne sont pas liés *a priori*. On peut concevoir des organisations d'une même mousse (*i.e.* une distribution en taille fixée, et donc un $\frac{\delta A}{A}$ invariable) conduisant à des $\frac{\delta n}{n}$ très différents. Ceci dépend par exemple de l'homogénéité de la mousse considérée. Ainsi, une mousse constituée de N bulles de plusieurs aires regroupées en monodomaines parfaitement ordonnés de taille caractéristique $L \propto N^2$ ne présentera des défauts que sur les jonctions entre domaines, de longueur L. Son désordre topologique $\frac{\delta n}{n} \propto \sqrt{\frac{L}{L^2}}$ peut donc devenir très petit si on a un grand nombre de bulles et peu de domaines - et cela quelque soit le désordre géométrique de l'ensemble de la mousse.

Inversement, il est possible dans une certaine mesure de désorganiser une mousse parfaitement monodisperse (pour laquelle $\frac{\delta A}{A}=0$) afin d'augmenter $\frac{\delta n}{n}$ (il serait d'ailleurs amusant de calculer la valeur maximum de $\frac{\delta n}{n}$ compte tenu des limitations imposées par les lois de Plateau).

Tout ce ci montre bien que l'appréhension de l'ordre d'une mousse passe par la connaissance de $\frac{\delta n}{n}$ et de $\frac{\delta A}{A}.$

Des propriétés topologiques plus raffinées, comme la corrélation entre le nombre de côtés d'une bulle et le nombre moyen des côtés de ses voisines (loi d'Aboav-Weaire [Godrèche]) ont souvent été étudiées, mais il s'agit là d'études statistiques à l'intérieur d'une mousse. Réduire l'étude des propriétés géométriques et topologiques à deux grandeurs est certes très violent, mais cela permet de comparer des mousses différentes entre elles, ou de suivre les états différentes d'une même mousse. Cela permet également de comparer théories ou simulations à un plus grand nombre de données expérimentales : on peut espérer gagner en universalité ce qu'on perd en détails d'un élément. C'est dans cet esprit que j'ai effectué, dans la section qui suit, un relevé systématique des données de $\frac{\delta n}{n}$ et $\frac{\delta A}{A}$ disponibles dans la littérature. Comme on va le voir, elles ne sont pas si abondantes, ce qui est surprenant au regard de l'ancienneté des premiers résultats.

1.3 Vieillissement et désordres

Dans les mousses liquides, l'ordre a été essentiellement étudié en fonction du premier paramètre qui les modifiait effectivement : le temps. Le temps modifie et les bulles de la mousse et leur organisation, on appelle cela *vieillir*. Je vais donc passer brièvement en revue les quelques théories, expériences et simulations concernant exclusivement le vieillissement d'une mousse liquide bidimensionnelle, après avoir explicité le mécanisme de vieillissement qui nous intéresse.

1.3.1 Loi de von Neumann

La loi de von Neumann régit le mûrissement, qui est le mécanisme de vieillissement le mieux caractérisé, et le plus important pour une mousse non soumise au drainage comme les mousses 2D.

On a vu au paragraphe 1.2.2 que les films se rencontrent à 120° dans une mousse bidimensionnelle à l'équilibre. Ceci impose naturellement qu'une bulle à 5 côtés ou moins aura en moyenne ses côtés courbés vers l'extérieur, alors qu'au contraire une bulle à 7 côtés et plus aura en moyenne des côtés concaves. Ceci impose, via la loi de Laplace, qu'une bulle à 5 côtés doit être en surpression pour contrer le surcoût en énergie interfaciale de la convexité, et inversement une bulle à 7 côtés doit être en sous-pression. On peut montrer que la pression d'une bulle ne dépend finalement que de son nombre de côtés [Schliecker 2002] :

$$P(n) = P(6) + \lambda \left(6 - n\right)$$

où λ est une constante liée aux caractéristiques physico-chimiques de la mousse (tension de surface du film, épaisseur de la mousse 2D). Comme la différence de pression entre bulles adjacentes induit nécessairement une diffusion du gaz des bulles de moindre n vers les bulles de plus fort n, on voit que toute mousse réelle est condamnée à voir évoluer l'aire de ses bulles. On appelle ce phénomène vieillissement par disproportion, ou, pour faire court, mûrissement. C'est l'équivalent dans les mousses sèches du mûrissement d'Oswald. Chaque bulle voit son



FIG. 1.6 – Mousse entre eau et verre vieillie par mûrissement 67
h ($\frac{\delta n}{n} = 0.219, \frac{\delta A}{A} = 0.735$). Dimension de la cellule carrée : 18×18 cm.

aire évoluer au cours du temps suivant la loi de Von Neumann :

$$\frac{dA}{dt} = \frac{\pi}{3}\sigma\lambda\left(n-6\right) \tag{1.1}$$

où σ est la constante de diffusion à travers le film de savon. Cette évolution mène nécessairement à la disparition des bulles à petit nombre de côtés (dont on peut raisonnablement penser qu'elles sont aussi les plus petites, ce qui sera discuté plus amplement dans le paragraphe 1.5), tandis que les bulles à grand nombre de côtés ne cessent de croître en taille.

Le mûrissement n'est pas le seul mécanisme de vieillissement d'une mousse : les parois entre bulles peuvent se rompre, ce qui s'appelle *vieillissement par coalescence*. Mais ce mécanisme est plus délicat à modéliser et à étudier expérimentalement de manière reproductible. Dans la suite, à moins de spécification contraire, on considérera implicitement qu'il n'y a pas de rupture de films. On verra en quoi une rupture de film peut parasiter des mesures d'ordre topologique aussi bien que géométrique.

1.3.2 Régime invariant d'échelle.

1.3.2.1 Revue des connaissances expérimentales

Le consensus qui se dégage des expériences de vieillissement de mousses bidimensionnelles menées autour des années 90 est que le mûrissement mène à un



FIG. 1.7 – Evolution de $\mu_2(n)$ en fonction du temps pour deux mousses vieillissantes [?]

régime de croissance auto-similaire, ou "régime invariant d'échelle", où l'allure d'une mousse est inchangée si on la redimensionne par l'aire moyenne $\langle A \rangle$ [Levitan 95]. Ceci implique que l'histogramme des nombres de côtés et celui des aires réduites doit cesser d'évoluer, et donc leur largeur relative également.

Ce concept, tout à fait acceptable intuitivement, a été essentiellement étayé par des mesures de $\mu_2(n)$ en fonction du temps ($\mu_2(n)$ est généralement plus usité dans la littérature que $\frac{\delta n}{n}$). L'évolution de $\mu_2(n)$ présente dans la plupart des cas une limite asymptotique, comme dans la très belle expérience de Stavans et Glazier [Stavans 89] (première ligne du tableau 1.1 et figure 1.7). Mais cette condition nécessaire est-elle suffisante?

Le dogme de l'universalité du régime invariant d'échelle a été contesté dans les thèses de V. Pignol [Pignol 96] et O. Lordereau [Lordereau 2002], qui reportent un écart systématique dans la mesure du $\mu_2(n)$ selon la nature du tensioactif utilisé (tableau 1.1). Ils suggèrent que les variations de viscosité sont susceptibles de bloquer les mousses dans des états d'équilibre différents. Une explication impliquant la courbure spontanée des monocouches de tensioactifs, susceptible de jouer au niveau des bords de Plateau (et donc sur la distance minimum entre vertex) me paraîtrait plus à même d'avoir un rôle sur des propriétés statiques. Il ne faut néanmoins pas perdre de vue que les écarts observés par [Pignol 96, Lordereau 2002] sont de l'ordre de l'incertitude sur la valeur plateau de $\frac{\delta n}{n}$.

Une contribution importante à la détermination du régime invariant d'échelle provient de [ordereau 2002] qui a montré combien il est important d'éviter la rupture de films. En effet, une seule rupture de film peut faire brutalement augmenter $\frac{\delta n}{n}$, et la plage de $\langle A \rangle$ expérimentalement accessible est souvent trop limitée pour qu'on puisse ensuite observer une relaxation vers le régime invariant d'échelle. Ceci m'a permis de ne pas tenir compte dans ce florilège de plusieurs données de désordres topologiques manifestement faussées par des ruptures de

mousse	$\mu_2(n)$	$\frac{\delta n}{n}$	$\frac{\delta A}{A}$	N (1)
Dawn, glycérol, hélium	1.4 ± 0.1 (2)	0.197 ± 0.07	-	1500 à 150
Dawn, glycerol, air	1.5 ± 0.3 (3)	0.20 ± 0.02	$0,77 \pm 0,07$ (4)	≈ 1200 à 150
SDS, air	1.75 ± 0.5 (5)	0.22 ± 0.03	0.875±?(6)	5000 à 1000
liquide vaisselle, air	1.5 ± 0.3 (5)	0.20 ± 0.02	-	13000 à 600
SDS, air	1.75 ± 0.25 (7)	0.220 ± 0.016	-	5000 à 1000
liquide vaisselle, air	1.9 ± 0.2 (7)	0.230 ± 0.013	-	400 à 200
Vel Rosita, glycérol, air	0.95 à 1.91 (8)	cf fig. 1.8	cf fig. 1.8	-

TAB. 1.1 – Données de désordre pour des mousses mûries, issues de la littérature. (1) Nombre de bulles durant le plateau de $\mu_2(n)$ ("régime invariant d'échelle"). (2) Référence [Stavans 2002]. (3) Référence [Glazier 90]. (4) Donnée non explicitement fournie, qui peut valoir 0.838 selon la figure 17 de la référence [Glazier 90], ou 0.71 ± 0.07 [Holm 91]. Nous retenons, indicativement, une valeur moyenne de ces données. (5) Référence [Pignol 96]. (6) D'après la figure 5.22 de [Pignol 96], dans laquelle on ne précise pas à quel $\mu_2(n)$ correspond la mousse présentée. (7) Référence [Lordereau 2002]. (8) Cette dernière ligne réfère au seul report de l'évolution de $\frac{\delta A}{A}$ au cours du mûrissement que l'on peut trouver dans la littérature pour une mousse liquide bidimensionnelle [de Icaza 94].

films.

Ainsi qu'on le voit dans le tableau 1.1 et sur la figure 1.8 récapitulatifs, les $\frac{\delta n}{n}$ présentés comme caractérisant le régime invariant d'échelle sont plus nombreux aux environs de $\frac{\delta n}{n} = 0.2$. Ils sont néanmoins assez dispersés, et il y a manifestement besoin de résultats expérimentaux supplémentaires pour infirmer ou préciser cette valeur.

Le besoin de données supplémentaires ne concerne pas que $\frac{\delta n}{n}$, mais aussi, et plus encore, le désordre géométrique $\frac{\delta A}{A}$.

En effet, de manière curieuse, la plupart des études ne s'intéressent pas à la largeur relative de la distribution en taille, $\frac{\delta A}{A}$ (voir tableau 1.1). C'est une lacune qu'il me semble important de combler dans les études ultérieures sur le désordre d'une mousse. Un régime invariant d'échelle doit se caractériser par des phénomènes inchangés à l'échelle près, il faut donc une saturation de $\frac{\delta A}{A}$ aussi bien que de $\frac{\delta n}{n}$. Des simulations 3D montrent au paragraphe 1.3.2.3 comment l'un des deux désordres peut atteindre un maximum indépendamment de l'autre, et ceci loin du régime invariant d'échelle; il est important de pouvoir débusquer de telles sources d'erreur possibles sur la détermination du régime invariant d'échelle, qui peuvent également survenir en 2D. En outre les mesures de $\frac{\delta n}{n}$, calculées comme $\frac{\delta A}{A}$ à partir de moments secondaires, sont généralement assez bruitées (voir par exemple [Glazier 90]). Là encore le fait de suivre deux grandeurs a priori non liées devrait être un atout de poids pour saisir les tendances.



FIG. 1.8 – Récapitulation des données bibliographiques dans l'espace des désordres ($\frac{\delta A}{A}$ en abscisse, $\frac{\delta n}{n}$ en ordonnée). Losanges rouges : désordres relevés toutes les 90 min à la fin du mûrissement d'une mousse [?]. Le temps le plus élevé correspond au point supérieur. Carrés noirs : données expérimentales du tableau 1.1. Losange vert : modèle de Flyvbjerg (paragraphe 1.3.2.2). Losanges gris : régime invariant d'échelle des simulations exposées dans le paragraphe 1.3.2.3. Afin de visualiser la dispersion des données bibliographiques pour $\frac{\delta n}{n}$ y compris lorsque les $\frac{\delta A}{A}$ ne sont pas connus, tous les points ont été (re)tracés sur la gauche du diagramme avec des abscisses arbitraires. On voit que 0.2 est une valeur préférentielle pour les simulations $\frac{\delta n}{n} = 0.27 \times \frac{\delta A}{A}^{0.8}$; elle sera présentée dans le paragraphe 1.4.2. Elle est représentée ici afin de faciliter la comparaison ultérieure avec les désordres engendrés par le cisaillement.

1.3.2.2 "Random-neighbour model"

Ce modèle de mûrissement, établi par H. Flyvbjerg [Flyvbjerg 93], permet d'arriver à une prédiction théorique des caractéristiques métriques et topologiques d'une mousse en régime invariant d'échelle. C'est un modèle de type champ moyen, où l'on considère que l'évolution d'une bulle à n côtés résulte de la diffusion de son gaz vers (ou à partir de, si n < 6) n bulles voisines semblables dont la pression (*i.e.* le nombre de côtés) suit, en probabilité, la loi de distribution de la mousse entière. L'hypothèse sous-jacente est que l'effet de la dynamique est suffisamment intense pour supprimer toutes corrélations entre les bulles (ce qui revient à ignorer la loi d'Aboav-Weaire). L'intégration des diffusions de von Neumann mène à des équations qu'il faut résoudre numériquement pour obtenir les distributions d'aire et de nombre de côtés aux grands temps. Les largeurs relatives de ces distributions sont $\frac{\delta n}{n} = 0.22$ et $\frac{\delta A}{A} = 0.93$. La littérature retient généralement que le modèle de Flyvbjerg prévoit une loi de distribution exponentielle des aires, mais ce n'est qu'une approximation qui conduirait à un désordre géométrique de 1. On verra au paragraphe. 1.5 sur la loi de Lewis les détails de la configuration obtenue.

1.3.2.3 Simulations

Les principaux résultats obtenus en simulations sont résumés ici, et tracés figure 1.8 dans le diagramme $\left(\frac{\delta A}{A}, \frac{\delta n}{n}\right)$. Ici encore, on a des données très fragmentaires pour le désordre géométrique.

Simulations de Potts. Dans ce type de simulations, une bulle est constituée d'un ensemble de pixels, et l'énergie du système est proportionnelle au nombre de contacts entre pixels appartenant à des bulles différentes, ce qui correspond à une description purement interfaciale. A chaque pas de la simulation, chaque pixel peut être attribué à une bulle différente si cela abaisse l'énergie globale de la mousse (c'est une sélection Monte-Carlo à température nulle). Comme la constance du volume des bulles n'est pas imposée, l'effet est celui d'une récession des zones convexes au profit des zones concaves, à une vitesse proportionnelle à la courbure : on simule bien la diffusion attendue [Glazier 90]. Le point délicat de ce modèle simplissime est celui du maillage utilisé (carré, triangle etc) et du rang de voisinage considéré : l'étude systématique du rôle de l'anisotropie, effectuée dans [Holm 91], permet de proposer une extrapolation à anisotropie nulle du désordre topologique, qui minore de près de 40% les résultats obtenus avec des simulations non isotropisées [Glazier 90], soit finalement : $\frac{\delta n}{n} = 0.201 \pm 0.004$.

Modèle de vertex Dans ce modèle, on suit l'évolution de vertex mûs par la résultante des forces attractives en direction des trois vertex voisins, et freinés par une force dissipative quadratique en la vitesse des bords [Nakashima 89].

Weaire et Kermode ont ainsi obtenu [Weaire 90] que des mousses de $\frac{\delta n}{n}$ initialement compris entre 0.08 et 0.2 saturaient toutes à la même valeur $\frac{\delta n}{n} = 0.200 \pm 0.0035$ en vieillissant. Ces simulations à faible nombre de bulles (≈ 500) n'ont pas permis de proposer un $\frac{\delta A}{A}$ pour le régime invariant d'échelle.

Dans une démarche comparable, les simulations de V. Pignol [Pignol 96] ont conduit à un régime invariant d'échelle très proche en désordre géométrique du résultat de Flyvbjerg : $\frac{\delta n}{n}$ =0.24¹.

Modèle topologique Levitan et Domany considèrent la mousse comme un ensemble de bulles dont les relations de voisinage connues évoluent dans le temps, modifiées par la disparition de bulles qui se vident suivant la loi de Von Neumann [Levitan 95]. Ils ont montré que régime invariant d'échelle obtenu peut être sensiblement différent selon la manière dont on reconstruit la topologie entre bulles survivantes après disparition d'une bulle. La modification des voisinages peut être aléatoire $(\frac{\delta n}{n}=0.183)$ ou déterministe, en considérant que ce sont les plus petits des côtés de la bulle en disparition qui vont engendrer les premières T_1 ($\frac{\delta n}{n} = 0.197 \pm 0.007$).

Modèle de disques Dans ce modèle, les bulles sont décrites par des disques en interaction répulsive, proportionnelle à leur degré de recouvrement. Ce modèle (dit de Durian, voir par exemple [Weaire 99]) est généralement utilisé pour simuler la dynamique de mousses et la dissipation ; Gardiner et al y ont ajouté une diffusion de gaz entre bulles voisines. Il conduit à un désordre topologique relativement stable dans le temps et peu bruité ($\frac{\delta n}{n} = 0.290 \pm 0.014$), mais le nombre moyen de côtés obtenu ($\langle n \rangle = 5.08 \pm 0.03$) semble indiquer que ce modèle n'est pas particulièrement adapté pour l'étude des grandeurs topologiques.

Simulations Potts en 3D Dans une mousse tridimensionnelle, le désordre géométrique est défini comme la largeur relative de la distribution des volumes des cellules : $\frac{\delta V}{V} = \frac{\sqrt{\mu_2(V)}}{\langle V \rangle}$. Le désordre topologique sera, lui, la largeur relative de la distribution du nombre de faces : $\frac{\delta F}{F} = \frac{\sqrt{\mu_2(F)}}{\langle F \rangle}$. Des simulations Potts de vieillissement ont été effectuées dans la référence [Thomas 2006]; leurs auteurs ont accepté de retracer dans le diagramme $\left(\frac{\delta V}{V}, \frac{\delta F}{F}\right)$ l'évolution des mousses simulées (figure 1.9). On voit que les trois mousses ont des évolutions très différentes selon leurs désordres de départ, mais qu'elles convergent finalement toutes sur la même ligne. Ceci est une forte indication de l'existence d'un régime invariant d'échelle dans l'espace $\left(\frac{\delta V}{V}, \frac{\delta F}{F}\right)$ des désordres.

¹Le désordre géométrique n'est pas explicitement calculé, mais on peut le calculer à partir de la distribution en taille fournie figure 5.22 de sa thèse : $\frac{\delta A}{A}$ =0.93. Cette valeur n'est qu'indicative, car elle ne correspond qu'à un point (non précisé) parmi la cinquantaine de ceux qui forment le plateau en $\frac{\delta n}{n}$ très bruité qui définit le régime invariant d'échelle.



FIG. 1.9 – Simulation Potts du mûrissement de mousses tridimensionnelles : évolution de 3 mousses différentes dans le diagramme des désordres ($\frac{\delta F}{F}$ en fonction de $\frac{\delta V}{V}$). D'après les données de la référence[Thomas 2006].

On notera en particulier que pour chacune des trois mousses, le désordre topologique passe par un maximum avant de diminuer puis de remonter vers le régime commun. Ne suivre que $\frac{\delta F}{F}$ aurait pu, à l'approche de l'extrémum, faire conclure hâtivement que le régime invariant d'échelle était en passe d'être atteint. L'observation concomitante de $\frac{\delta V}{V}$, qui continue à évoluer lorsque $\frac{\delta F}{F}$ atteint son extremum, permet de lever ce type d'ambiguïtés. Ceci souligne à quel point il peut être important de suivre les deux types de désordre à la fois, si on veut déterminer avec acuité le régime invariant d'échelle.

1.3.3 Conclusion

La figure 1.8 montre que la détermination précise du régime invariant d'échelle n'a pas encore fait l'unanimité, que ce soit au point de vue expérimental, numérique, ou théorique. La démarche qui a prévalu jusqu'ici, à savoir comparer le $\frac{\delta n}{n}$ d'une théorie ou d'une simulation avec une ou deux données expérimentales éparses est insuffisante, voire trompeuse. La comparaison de l'histogramme des nombres de côtés obtenu par simulation avec un histogramme expérimental choisi parmi des dizaines d'autres dans le régime invariant d'échelle n'est pas non plus un critère suffisant. Le désordre topologique est une grandeur trop bruitée pour qu'on puisse se contenter de quelques mesures pour déterminer sa valeur en régime invariant d'échelle. Une démarche raisonnable, en expérience comme en simulations, serait de généraliser ce qui a été ébauché en 3D : observer dans l'espace $(\frac{\delta A}{A}, \frac{\delta n}{n})$ l'évolution au cours du mûrissement de mousses très différentes dans leur état initial (ce qui est, on l'a vu, relativement aisé à réaliser expérimentalement en 2D), afin de cerner au mieux un comportement asymptotique commun. Que ce soit au point de vue expérimental ou numérique, il est important d'améliorer la statistique sur ces mesures statistiques.



FIG. 1.10 – Cisaillement d'une mousse monomodale étroite. Longueur des côtés de la cellule initialement carrée : 18 cm.

1.4 Cisaillement et désordres

Ce paragraphe relate l'étude que nous avons menée sur les désordres (géométrique et topologique) de mousses soumises à un cisaillement simple, quasistatique, oscillant.

Par cisaillement simple, on entend un cisaillement réalisé de manière à ce que la déformation imposée et le gradient de vitesse soient uniformes sur toute la cellule, au moins jusqu'à une échelle typique des réarrangements locaux. Pour ceci, on confine la cellule dans un dispositif à quatre barrières, permettant une déformation de la mousse dans son propre plan, entre carré et parallélogrammes de surface constante (figure 1.10). Deux barrières parallèles coulissent sur leur propre longueur afin d'assurer le cisaillement, et les deux autres barrières, inclinables et de longueur variable, permettent d'éviter la localisation de la déformation ("bandes de cisaillement") que l'on observe systématiquement dans les dispositifs de type Couette. Un dispositif de ce genre a été décrit pour la première fois par Kader et Earnshaw [Abd el Kader 99]. La mousse est fabriquée entre la surface d'un liquide réservoir et un couvercle de verre, ce qui permet des manipulations par en-dessous [Quilliet 2005]. Un des avantages de ce type de dispositif fermé est qu'il permet une grande latitude pour la distribution en taille de la mousse, que l'on peut à la limite "sculpter" bulle par bulle avant toute manipulation, la principale limitation -importante néanmoins- étant le temps maximum consacré à sa préparation.

1.4.1 Evolution au cours du cisaillement

Lorsqu'on soumet une mousse à un cisaillement oscillant, les relations de voisinage entre bulles sont constamment modifiées. Le cisaillement permet clairement au système de passer les barrières d'énergie bien supérieures à kT correspondant aux changements de voisins élémentaires, ou T_1 , et d'atteindre des configurations de moindre énergie interfaciale. On constate expérimentalement que le désordre topologique évolue vers une valeur constante $\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{asymptotique}$ (figure 1.11-a).

La façon d'atteindre cette valeur asymptotique dépend du type de distribution en taille de la mousse, *i.e.* de sa morphologie.

Pour les mousses monomodales, où la distribution des aires des bulles est piquée autour d'une valeur moyenne, le désordre topologique diminue avec le cisaillement : le cisaillement ordonne. Pour les mousses monomodales larges, le désordre topologique ne varie pas significativement en-dehors de son bruit.

Pour les mousses bimodales, constituées deux populations de bulles avec des tailles caractéristiques bien distinctes, on observe le comportement inverse. Cette augmentation de $\frac{\delta n}{n}$ est concomitante avec une augmentation de la proportion de contacts $c_{heterogenes}/c_{totaux}$ entre bulles de taille différente : cela signifie que le cisaillement mélange les deux populations d'une mousse bimodale (fig. 1.11-b). Il est intéressant de noter que l'évolution nette de ces deux quantités permet de mettre en évidence une modification de l'état de la mousse qui n'est pas évidente à détecter à l'oeil (fig. 1.12).

1.4.2 Lien entre les désordres en situation asymptotique

Des mousses présentant plusieurs morphologies de distribution en taille ont été cisaillées jusqu'à ce que le désordre topologique sature à une valeur asymptotique $\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{asymptotique}$. Ainsi qu'on le voit sur la figure 1.13, cette dernière présente une forte corrélation avec le désordre géométrique, indépendamment des moments supérieurs qui caractérisent plus finement sa morphologie (monomodale plus ou moins large, bimodale, polydisperse etc).

Bien sûr, il est intuitif que les bulles d'une mousse polydisperse, et homogène à l'échelle de la cellule, auront un nombre de côtés plus variable que celles d'une mousse monodisperse. Mais le fait qu'un grand nombre de mousses de morphologies variées obéisse à une même loi de puissance laisse supposer des cohérences profondes entre topologie et géométrie. En ce qui concerne les désordres globaux $\frac{\delta n}{n}$ et $\frac{\delta A}{A}$, un calcul théorique a été dérivé par Iglesias et de Almeida [Iglesias 91], qui calculent via des arguments d'entropie maximum et d'énergie minimum, plus l'hypothèse que tous les côtés ont même longueur, la distribution en taille de mousses de désordre topologique donné. On verra au paragraphe suivant que ce modèle reproduit de manière satisfaisante les "lois de Lewis" expérimentales. En revanche, il prévoit pour des désordres topologiques $\frac{\delta n}{n}$ entre 0.13 et 0.28



FIG. 1.11 – Gauche : évolution de $\frac{\delta n}{n}$ en fonction du nombre de pas de cisaillement, pour une mousse monomodale étroite (losanges), une mousse monomodale large (triangles), une mousse bimodale (carrés). Afin de faciliter la comparaison, $\frac{\delta n}{n}$ a été normalisé par sa valeur asymptotique pour chaque mousse. Droite : évolution de la fraction de contacts hétérogènes (entre une grande et une petite bulle) dans la mousse bimodale.



FIG. 1.12 – Mousse bimodale dont les caractéristiques au cours du cisaillement sont exposées figure 1.11. A gauche : mousse brute. A droite : mousse après 44 pas de cisaillement. Les côtés de la cellule font 18 cm.



FIG. 1.13 – Corrélation entre désordre topologique $\frac{\delta n}{n}$ et désordre géométrique $\frac{\delta A}{A}$ d'une mousse cisaillée. L'ordonnée de chaque point est la valeur asymptotique obtenue par cisaillement (voir figure 1.11-a). La droite est la loi de puissance $\frac{\delta n}{n} = 0.27 \times \frac{\delta A^{0.8}}{A}$. Les lignes pointillées représentent les valeurs minimales théoriques de $\frac{\delta n}{n}$, $\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{min} \propto N^{-1/4}$, pour les valeurs extrêmes du nombre N de bulles dans ces expériences (413 et 2719). Le calcul de $\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{min}$ est explicité au paragraphe 1.4.3.

des distributions en taille dont la largeur n'est pas explicitement calculée, mais dont la représentation partielle (figure 3 de [Iglesias 91]) indique clairement des valeurs de $\frac{\delta A}{A} > 1$, ce qui sort totalement de nos conditions expérimentales.

Une conséquence directe de ce lien que nous avons expérimentalement établi entre $\frac{\delta n}{n}$ et $\frac{\delta A}{A}$ est qu'il propose un outil pour non seulement évaluer rapidement, mais aussi modifier, l'état topologique d'une mousse. On sait ainsi d'une mousse qui ne se place pas, dans le diagramme de phase $\left(\frac{\delta A}{A}, \frac{\delta n}{n}\right)$, sur la courbe asymptotique $\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{asymptotique} = 0.27 \times \frac{\delta A}{A}^{0.8}$, que son désordre topologique est susceptible d'évoluer à l'occasion de tout événement plastique (*i.e.* faisant intervenir un changement de voisins). On a vu que ceci peut jouer fortement sur ses propriétés rhéologiques. Il est donc important de manipuler des mousses qui ont été suffisamment "secouées" pour s'assurer de la reproductibilité des expériences. Par le terme de "secouées", nous désignerons naturellement les mousses ayant été suffisamment cisaillées pour que les caractéristiques $\left(\frac{\delta A}{A}, \frac{\delta n}{n}\right)$ se placent sur la courbe asymptotique.

1.4.3 Valeur limite du désordre topologique

Idéalement, pour une mousse infinie de désordre géométrique nul, on sait que la configuration de plus basse énergie est la structure hexagonale, "en nid d'abeille", pour laquelle $\frac{\delta n}{n} = 0$ puisque toutes les bulles ont 6 côtés. Toutefois, dans notre cellule finie et carrée, cette situation ne peut être atteinte puisque les rangées de bulles ont tendance à s'aligner avec les bords.

La figure 1.14-a présente un exemple typique du genre d'organisation maximale que l'on peut atteindre : réseau de topologie parfaitement hexagonale, avec des défauts (*i.e.* bulles dont le nombre de côtés est différent de 6, généralement regroupées par paires : une bulle à 5 côtés et une bulle à 7 côtés) assurant la jonction entre les réseaux disinclinés entre eux de 90°. Pour des joints de grain rectilignes, des considérations topologiques [Afonso 2007] mènent à une valeur de $\frac{12^{-1/4}}{\sqrt{a}}$ paires 5-7 par unité de longueur de joint de grain (figure 1.14-b), où *a* est l'aire d'une bulle ². Pour deux joints de grains de longueur \sqrt{Na} (longueur de la cellule carrée contenant *N* bulles), on aura donc en tout $2 \times 12^{-1/4} \sqrt{N}$ bulles à 5 côtés, et $2 \times 12^{-1/4} \sqrt{N}$ bulles à 7 côtés. On calcule immédiatement le désordre topologique correspondant :

$$\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{min} = \frac{1}{6} \times \sqrt{\frac{4 \times 12^{-1/4}\sqrt{N}}{N}} = \frac{1}{3 \times 12^{1/8}} N^{-1/4}$$

²Il est à signaler que nous avons pris les résultats correspondant à $\alpha = 0^{\circ}$ et $\theta = 30^{\circ}$ dans la formule (16) de la référence [Afonso 2007], donnant un nombre de défauts par unité de longueur que l'on peut retrouver simplement via le schéma présenté figure 1.14-b. En revanche, utiliser $\alpha = 0^{\circ}$ et $\theta = 90^{\circ}$ dans cette même formule mène à un résultat différent alors que cela correspond à la même disinclinaison entre les domaines; il y a probablement là quelque chose à revoir.



FIG. 1.14 – A gauche : mousse quasiment monodisperse $(\frac{\delta A}{A}=0.0590)$ ayant subi 10 pas de cisaillement, ce qui lui permet d'atteindre un désordre topologique $\frac{\delta n}{n}=0.0372$. Les paires de défauts 5-7 et les bulles isolées de topologie différente de 6 (ou 4 pour les bulles de bord, voir la notion de charge topologique introduite par Graner et al [Graner 2001]) sont soulignés respectivement par des tirets et des points. Valeur théorique du désordre minimum pour N = 1085 bulles dans une cellule carrée : $(\frac{\delta n}{n})_{min}=0.0426$, ce qui est légèrement supérieur à la valeur expérimentale, problablement parce qu'une partie de du changement d'orientation est réalisé via la déformation des bulles (au niveau de l'interruption du joint de grain supérieur). A droite : représentation schématique des défauts à la jonction de deux réseaux hexagonaux disinclinés de 90°.

Nous avons tracé sur la figure 1.13 les $\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{min}$ pour les valeurs extrêmes des N utilisés dans ces expériences : on voit que ces valeurs peuvent expliquer les écarts à la loi en $\frac{\delta n}{n} = 0.27 \times \frac{\delta A}{A}^{0.8}$ pour les petits $\frac{\delta A}{A}$.

1.4.4 Discussion

La quasi-linéarité que l'on observe entre les désordres géométrique et topologique peut sembler, à première vue, une conséquence triviale de la "loi de Lewis", souvent présentée comme une relation de proportionalité entre l'aire moyenne $\overline{A}(n)$ des bulles à n côtés, et n lui-même. Comme on le verra au paragraphe suivant, la "loi de Lewis" consiste plutôt en une relation linéaire de type $\overline{A}(n) = K$ $(n - n_0)$. Un calcul statistique simple mais fastidieux permet alors d'établir :

$$\left(\frac{\delta A}{A}\right)^2 = \left(\frac{6}{6-n_0}\right)^2 \times \left(\frac{\delta n}{n}\right)^2 + \frac{1}{\langle A \rangle^2} \sum_n P(n) \,\mu_2(A_n)$$

où P(n) est la probablilité pour qu'une bulle ait n côtés, et $\mu_2(A_n)$ désigne la variance de la distribution en taille des bulles à n côtés.

Si le second terme peut être négligé, on retrouve lorsque $n_0 \approx 3-4$ un coefficient de proportionnalité entre les désordres topologique et géométrique qui se rapproche de la valeur obtenue expérimentalement.

Mais le problème est certainement à prendre dans l'autre sens : c'est l'organisation préférentielle des bulles après secouage qui impose une dépendance de $\overline{A}(n)$ avec n, et non le contraire.

La théorie de Iglesias et de Almeida a été évoquée au paragraphe 1.4.2; un modèle permettant d'obtenir P(n) pour une distribution en taille donnée, et non le contraire, correspondrait mieux à la problématique évoquée ici.

1.5 "Loi de Lewis"

L'objet de ce paragraphe est de faire le point sur la "loi de Lewis", intéressante en tant qu'exemple de croyance scientifique parasitant régulièrement la réflexion sur les liens entre propriétés métriques et topologiques des réseaux cellulaires.

1.5.1 Présentation

La "loi de Lewis" est une loi purement phénoménologique, énoncée dans les années 30 par Frederic T. Lewis après l'observation de structures cellulaires animales ou végétales, qui établit une relation affine entre l'aire d'une cellule et son nombre de voisins. James Glazier a montré dans sa thèse [Glazier 91] comment cette relation avait été fortement inspirée par le goût de Lewis pour la symétrie, et surtout comment elle avait été par la suite élevée au rang de dogme, voire de théorème fondateur, peut-être à cause de la séduisante simplicité de son énoncé qui permet de la mémoriser facilement. Il a également essayé de montrer qu'elle n'était quasiment jamais vérifiée pour les structures issues du mûrissement, ce qui est une tâche ardue puisque le problème principal de la "loi de Lewis" consiste en la paucité des informations qu'elle véhicule - il est donc difficile de la prendre en défaut.

Rappelons l'énoncé standard de la loi de Lewis : soit un réseau cellulaire dont les cellules sont caractérisées par leur aire A et leur nombre de côtés n. Soit $\overline{A}(n)$ l'aire moyenne des cellules comportant n côtés, on a :

$$\overline{A}(n) = K \ (n - n_0)$$

On pourra se convaincre que K>0: il est assez intuitif que les grosses bulles proposeront de la place à un plus grand nombre de voisins, et que, au contraire, les petites bulles se logeront plus facilement à la rencontre d'un faible nombre de bulles - trois ou quatre. Mais la grande force de la loi de Lewis est qu'elle ne précise ni la pente K ni l'intercept n_0 . Les valeurs de n étant discrètes et occupant une plage réduite, on a typiquement entre 3 et une dizaine de points pour les structures les plus communes. Pour peu que les valeurs de $\overline{A}(n)$ soient un peu bruitées, on conçoit qu'il soit aisé de faire passer une droite au milieu de ce petit nombre de points, quelque soit le type de réseau cellulaire considéré... C'est ce qui a été fait sur une variété impressionnante de structures : mousses de savon, epithelia divers, émulsions photographiques, coupes de structures tridimensionnelles (mousses solides, tissus biologiques), figures de convection, fractures, Chaussée du Géant (Irlande du Nord), et même la carte des départements français. Dans certains cas la relation linéaire est nette [?]. Mais la plupart du temps (y compris pour les données originales de Lewis, cf figure (1.17), elle s'avère approximative, ou partielle (non respectée pour les petits n, ou alors, au contraire, pour les grands), et la littérature montre une grande variété sur les K et les n_0 obtenus par interpolation.

La "loi de Lewis" s'apparente donc à une non-loi, qu'il serait bon de réserver aux seuls adeptes du *name dropping*.

Son côté positif est que sa trompeuse universalité a poussé quelques scientifiques à tenter l'expliquer dans ces systèmes modèles que constituent les mousses liquides, faisant ainsi avancer la compréhension que nous en avons.

1.5.2 Aire et topologie pour une mousse liquide : entropie maximum, énergie minimum, mûrissement

Depuis les travaux de N. Rivier et collaborateurs [Rivier 82] consistant à utiliser des concepts de thermodynamique statistique pour décrire ces objets métastables que sont les mousses, trois modèles principalement ont tenté de rendre compte de la dépendance de $\overline{A}(n)$ avec n.

Iglesias et de Almeida [Iglesias 91] ont rajouté une condition de minimisation d'énergie, plus une sur les côtés des bulles, au modèle de maximum d'entropie de Rivier dont le manque de contrainte internes, ne permettant pas de prouver l'unicité de la solution proposée, a été commenté avec précision par S. N. Chiu [Chiu 95]. Ceci a permis de calculer $\overline{A}(n)$ pour différents désordres topologiques : c'est une courbe croissante mais nettement concave pour n = 3 à 12, quasiment insensible à $\frac{\delta n}{n}$ sur la plage de valeurs pour lesquelles elle a été calculée (entre 0.13 et 0.28).

Fortès et Texeira ont traité le même problème avec un modèle plus géométrique, où seule intervient la minimisation de l'énergie (*i.e.* minimisation de la longueur totale des liens) [Fortes 2003].

Enfin, le modèle dynamique de Flyvbjerg [Flyvbjerg 93], présenté au paragraphe 1.3.2.2, a permis de proposer distribution en aire, distribution en nombre de côtés, et relation $\overline{A}(n)$, pour une mousse en régime invariant d'échelle de mûrissement par disproportionnement. La fonction $\overline{A}(n)_{Flyvbjerg}$ est indubitablement linéaire pour n>6 (avec $\overline{A}(n)/\langle A \rangle = 0.8 \times (n-5.5)$), ce qui pourrait passer pour une belle illustration de la loi de Lewis, mais elle est quasiment constante pour n<6.

1.5.3 Comparaison entre modèles et expériences

Le recul acquis à l'occasion de l'étude des désordres géométrique et topologique m'a incitée à me repencher sur ces différentes modèles et à les comparer aux expériences, ce qui n'avait été fait jusqu'ici que de manière très ponctuelle. On peut trouver dans la littérature plusieurs séries de données de $\overline{A}(n)$ concernant les mousses liquides, au milieu du foisonnement de systèmes exotiques dans lesquels la loi de Lewis a été "vérifiée", mais il est nécessaire de les redimensionner par $\langle A \rangle$ afin de les comparer entre elles ou avec les modèles, ce qui n'est pas toujours possible (aussi surprenant que cela puisse paraître, le $\langle A \rangle$ correspondant n'est pas toujours indiqué). Ne restent finalement que quelques groupes de données sur les mousses (ou émulsions, ce qui relève de la même physique) [Lewis 1948, Glazier 87, Glazier 90, Pignol 96]. Afin de dégager des tendances sans attendre une étude plus exhaustive sur la question, je les ai complétés via quelques dépouillements issus du stock d'expériences accumulées pour l'étude des désordres.

Ainsi qu'on le voit sur la figure 1.15, les données correspondant aux mousses mûries se regroupent nettement autour de la courbe de Flyvbjerg. En revanche, les données correspondant aux mousses cisaillées non mûries (figure 1.16) sont beaucoup plus proches du modèle d'Iglesias-de Almeida. Ceci est compatible avec l'idée qu'on peut se faire d'une structure obtenue par maximisation d'entropie, compte tenu des contraintes d'aire maximum permettant de réduire l'énergie interfaciale : les mousses cisaillées ont été suffisamment secouées pour pouvoir explorer des configurations d'entropie plus grandes que l'ordre de départ.

On notera pour les mousses bimodales un décrochement entre n=6 et n=7. Ceci souligne la différence entre les grosses bulles, entourées de 7 à 8 voisins, et les petites bulles entourées de, typiquement, 4-6 voisins. Néanmoins, la courbe aux grands et petits n rejoint les calculs d'Iglesias-de Almeida.

Enfin, le modèle de Fortes-Texeira (représenté figure 1.17) augmente trop vite pour pouvoir rendre compte d'aucune structure expérimentale de mousse. Il est à noter que ce modèle contient une hypothèse très forte, à savoir que l'aire d'une



FIG. 1.15 – Aire moyenne adimensionnée des bulles à n côtés, systèmes mûris et modèle de Flyvbjerg (courbe rose). En jaune : mousse Dawn et glycérol, mûrie 12h45 [Glazier 87]. Ces données avaient été reprises par Iglesias et de Almeida pour valider leur modèle, mais elles correspondent davantage à Flyvbjerg, spécifique d'une mousse mûrie. En rouge : mousse liquide vaisselle mûrie 67h, données David Rabaud. En bleu : moyenne de plusieurs expériences (nombre non précisé) [Glazier 89] repris dans [Glazier 90]. En vert : émulsion photographique [Lewis 1948]. Pour comparaison, le modèle de Iglesias et de Almeida est reporté en bleu, ainsi que les mousses non mûries cisaillées (points noirs), détaillées dans la figure 1.16.



FIG. 1.16 – Aire moyenne adimensionnée des bulles à n côtés, mousses secouées par cisaillement et modèle de Iglesias - de Almeida (courbe rose; c'est une courbe moyenne des courbes calculées pour 4 valeurs de $\frac{\delta n}{n}$ entre 0.13 et 0.28, et qui sont très proches). Diamants verts : distribution en taille monomodale large ($\frac{\delta A}{A}$ =0.221, $\frac{\delta n}{n}$ =0.081). Carrés jaunes : distribution à deux modes se recouvrant ($\frac{\delta A}{A}$ =0.416, $\frac{\delta n}{n}$ =0.133). Triangles bleus : bimodale ($\frac{\delta A}{A}$ =0.653, $\frac{\delta n}{n}$ =0.200). Triangles rouges : bimodale ($\frac{\delta A}{A}$ =0.849, $\frac{\delta n}{n}$ =0.253). Courbe bleue : modèle de Flyvbjerg. Points noirs : systèmes mûris, détaillés dans la figure 1.15.

bulle est une injection vers son nombre de côtés (*i.e.* qu'il n'y a pas de recouvrement entre les aires de bulles de n différents). Les données expérimentales ne corroborent malheureusement pas cette hypothèse, les aires se recouvrant à environ 90% entre deux nombres de côtés voisins. Tout au plus a-t-on dans les mousses bidisperses une répartition nette entre les nombres de côtés des petites bulles ($n \leq 6$) et des grosses bulles (n > 6).

Il semble donc clair que dans des cas où la mousse est bien définie au point de vue topologique (parce qu'elle a été secouée, ce qui fixe son $\frac{\delta n}{n}$ ainsi qu'on l'a vu au paragraphe précédent, ou parce qu'elle a mûri), on peut prévoir sa distribution d'aire en fonction du nombre de côtés, au moins pour ses valeurs extrêmes. Mais d'une part les courbes ne présentent pas la même relation entre $\overline{A}(n)$ et n selon qu'elles proviennent de cisaillement ou de mûrissement, et d'autre part celle-ci peut difficilement être considérée comme linéaire sur son domaine d'existence, surtout pour les mousses bimodales, ce qui invalide définitivement (s'il en était encore besoin) la "loi de Lewis".

Tout ceci montre que le fantasme d'universalité véhiculé par l'emploi du terme "loi de Lewis", donnant l'impression que toutes les mousses obéissent à une même loi linéaire, est à reconsidérer. L'allure de $\overline{A}(n)$ n'est pas la même selon le type d'organisation de la mousse considérée.

Cette constatation est importante, car elle met en lumière une différence entre les deux types de mousses que l'incertitude sur les désordres des mousses mûries n'avait pas permis de déceler. Il y a peut-être là la trace de certaines corrélations dans une mousse mûrie : par exemple entre une grosse bulle et les plus petites bulles attenantes, qui ont été partiellement vidées pour la remplir. Cette intuition doit pouvoir être vérifiée expérimentalement sans trop de difficultés.

1.5.4 Relation de Lewis.

On a vu que la loi de Lewis n'avait pas grande signification. Pour des raisons de légèreté de communication, on pourrait en revanche se proposer de garder les terme "relation de Lewis" ou "représentation de Lewis", pour désigner les courbes de $\overline{A}(n)/\langle A \rangle$ en fonction de n.

Le paragraphe précédent a montré qu'il peut être intéressant de continuer à étudier des représentations de Lewis, non plus dans une perspective d'universalité -cette approche a montré ses limites- mais au contraire pour préciser les différences entre mousses issues de processus différents, ou d'autre structures cellulaires.

Par exemple, nous avons retracé figure 1.17 les données "botaniques" de Lewis lui-même (concombre, eupatorium), dont on ne peut supposer à priori qu'elles relèvent d'un processus de mûrissement ou d'un secouage efficace. On voit qu'elles se distinguent nettement des trois modèles présentés au paragraphe 1.15, y compris de ceux qui marchent pour les mousses. L'organisation des structures bio-



FIG. 1.17 – Observations de F. T. Lewis, qui lui ont suggéré sa "loi" [Lewis 1948]. En jaune : concombre; en vert : eupatorium; en rouge : émulsion photographique. Courbes rouge, verte, turquoise, bleu soutenu : respectivement modèles de Flyvbjerg, Iglesias-de Almeida, Fortes-Texeira avec $\frac{\delta A}{A} = 0.363$, Fortes-Texeira avec $\frac{\delta A}{A} = 0.523$.

logiques obéit manifestement à d'autres impératifs que les mousses liquides secouées [Parfait-Pignol 98, Rivier 2005].

Pour différencier des types d'organisation entre eux, il sera probablement nécessaire ici encore d'augmenter significativement le nombre d'expériences pour dégager des tendances fines, et ne pas se contenter d'illustrer une théorie ou une simulation. En particulier, il sera intéressant de se pencher sur les mousses bimodales, qui dans cette description se distinguent nettement des mousses monomodales, et qui au point de vue théorique sont plus aisées à traiter que des mousses polydisperses.

1.6 Conclusion et perspectives

L'étude systématique de mousses cisaillées a montré une quasi-proportionnalité entre désordres géométrique et topologique, indépendamment des détails de la distribution en aire des bulles qui les composent. Il serait maintenant intéressant de disposer d'un modèle théorique qui rende compte quantitativement de cette universalité de comportement (une piste est probablement à chercher du côté de [Iglesias 91]).

Mais ce résultat est également important en lui-même, pour des raisons expérimentales et conceptuelles. Au point de vue expérimental, il montre qu'il est possible de préparer des mousses de manière reproductible, puisque l'ordre topologique d'une mousse cisaillée dépend de manière univoque de son ordre géométrique, relativement aisé à contrôler. Il n'est pas trivial que les mousses de morphologies différentes (monomodales, bimodales etc) se rassemblent sur la même courbe de l'espace $\left(\frac{\delta A}{A}, \frac{\delta n}{n}\right)$: cela semble indiquer qu'on peut en pratique réduire un ensemble de caractéristiques complexes à une seule valeur. C'est précisément de ce type de renseignement qu'on avait besoin pour optimiser l'étude de l'abruptance des mousses.

L'existence de la courbe générale de comportement :

$$\left(\frac{\delta n}{n}\right)_{asymptotique} = 0.27 \times \frac{\delta A}{A}^{0.8}$$

procure en outre un critère pour savoir si une mousse est secouée ou non. Par exemple, une mise en comparaison effectuée dans [Quilliet 2008] a montré que des structures biologiques (epithelia) étaient nettement au-dessus de cette courbe; cela correspond-il à un désordre entretenu par le mouvement des cellules, ou par des possibilités de déformation qui n'ont pas d'équivalent dans les mousses? Ou au contraire cela signifie-t-il que le "secouage" est moins efficace dans une structure biologique que dans une cellule de cisaillement?

Par ailleurs, on a vu que les données parcellaires de la littérature suggèrent que l'état invariant d'échelle obtenu par mûrissement est peut-être, lui aussi, proche de la courbe asymptotique : il est de toutes façon urgent de préciser les caractéristiques de cet état invariant d'échelle auquel de nombreuses études se réfèrent depuis longtemps, et on a vu comment l'étude concomitante des deux désordres devrait aider à cette détermination. Le suivi de la représentation de Lewis peut également être une aide en ce sens.

De manière plus générale, les résultats du paragraphe 1.4.2 ont pu être obtenus grâce à une expérience de cisaillement oscillant extrêmement bien contrôlée. Cette manière de secouer les mousses est-elle vraiment comparable à l'énergie d'agitation thermique dont on voit les effets sur les systèmes microscopiques? Il serait intéressant de répondre à cette question en étudiant, avec le même type d'expériences, d'autres phénomènes pour lesquels le lien entre microscopique et macroscopique est bien connu dans les systèmes classiques, comme l'interdiffusion entre deux mousses (différant par la taille de leurs bulles), la "cinétique" d'une cristallisation, par exemple dans une mousse bimodale, ou le mouvement d'un marqueur [Quilliet 2005].

Bibliographie

[Abd el Kader 99] A. Abd el Kader, J. C. Earnshaw. Shear-Induced Changes in Two-Dimensional Foam, Phys. Rev. Lett. 82 :2610, 1999

[Afonso 2007] L. Afonso, M. Emilia Rosa, M. A. Fortes. Interfaces between honeycomb foams : defect content and behaviour under deformation, Coll. Surfaces A 309 :38, 2007

[Ataei Talebi 2008] S. Ataei Talebi, thèse de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I, en cours de rédaction.

[Aubouy 2003] M. Aubouy, Y. Jiang, J. A. Glazier, F. Graner. A texture tensor to quantify deformations, Granular Matter, 5:67, 2003

[Cox 2006] S. J. Cox, E. L. Whittick. Shear modulus of two-dimensional foams : the effect of area dispersity and disorder, Eur. Phys. J. E 21 :49, 2006

[Cox 2008] S. J. Cox, E. Janiaud. On the structure of quasi-two-dimensional foams, to appear in Phil. Mag. Letts., 2008

[Chiu 95] S. N. Chiu. A comment on River's maximum entropy method of statistical crystallography, J. Phys. A 28:607, 1995

[de Icaza 94] M. de Icaza, A. Jimenez-Ceniceros, V. M. Castano. Statistical distribution fonctions in 2D foams, J. Appl. Phys. 76 :7317, 1994

[Delannay 94] R. Delannay, G. Le Caër. Topological characteristics of 2D cellular structures generated by fragmentation, Phys. Rev. Lett. 73 :1553, 1994

 $[{\rm Flyvbjerg}~93]$ H. Flyvbjerg. Model for coarsening froths and foams, Phys. Rev. E 47 :4037, 1993

[Fortes 2003] M. A. Fortes, P. I. C. Texeira. Bubble size-topology correlations in twodimensional foams derived from surface energy minimization, J. Phys. A 36 :5161, 2003

[Gardiner 2000] B. S. Gardiner, B. Z. Dlugogorski, G. J. Jameson. Coarsening of twoand three-dimensional wet polydisperse foams, Phil. Mag. A 80 :981, 2000

[Glazier 87] J. A. Glazier, S. P. Gross, J. Stavans. Dinamics of two-dimensional soap froths, Phys. Rev. A 36 :306, 1987

[Glazier 89] J. A. Glazier. Dynamics of cellular patterns, thèse de l'Université de Chicago, 1989

[Glazier 90] J. A. Glazier, M. P. Anderson, G. S. Grest. Coarsening in the twodimensional soap froth and the large-Q Potts model : a detailed comparison, Phil. Mag. B 62 :615, 1990

[Godrèche 92] C. Godrèche, I. Kostov, I. Yekutieli. Topological correlations in cellular structures and planar graph theory, Phys. Rev. Lett. 69 :2674, 1992

[Graner 2001] F. Graner, Y. Jiang, E. Janiaud, C. Flament. Equilibrium energies of 2D fluid foams, Phys. Rev. E. 63 :11402, 2001

[Graner 2008] F. Graner, B. Dollet, C. Raufaste, P. Marmottant. Discrete rearranging disordered patterns, part I : Robust statistical tools in two or three dimensions, Eur. Phys. J. E., to appear, 2008

[Höhler 2005] R. Höhler, S. Cohen-Addad. Rheology of liquid foam, J. Phys. Condens. Matt. 17 :R1041, 2005

[Holm 91] E. A. Holm, J. A. Glazier, D. J. Srolovitz, G. S. Grest. Effects of lattice anisotropy and temperature on domain growth in the two-dimensional Potts model, Phys. Rev. A 43 :2662, 1991

[Iglesias 91] J. R. Iglesias, R. M. C. de Almeida. Statistical thermodynamics of a two-dimensional cellular system, Phys. Rev. A 43 :2763, 1991

[Le Caër 93] G. Le Caër, R. Delannay. The administrative divisions of mainland France as 2D random cellular structures, J. Phys. 1 France 3 :1777, 1993

[Levitan 95] B. Levitan, E. Domany. Topological model of soap froth evolution with deterministic T2-processes, Europhys. Lett. 32:548, 1995

[Lewis 1948] F. T. Lewis. The analogous shapes of cells and bubbles, Proc. A. A. A. S. 77 :147, 1948

[Lorderau 2002] O. Lordereau, thèse de l'Université Rennes I, 2002.

[Marmottant 2007] P. Marmottant, F. Graner. An elastic, plastic, viscous model for slow shear of a liquid foam, Eur. Phys. J. E. 23 :337, 2007

[Marmottant 2008] P. Marmottant, C. Raufaste, F. Graner. Discrete rearranging disordered patterns, part II : 2D plasticity, elasticity and flow of a foam, Eur. Phys. J. E., to appear, 2008

[Nakashima 89] K. Nakashima, T. Nagai, K. Kawasaki. Scaling behaviour of twodimensional domain growth : computer simulation of vertex model, J. Stat. Phys. 57 :759, 1989

[Pignol 96] V. Pignol, thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 1996.

[Parfait-Pignol 98] V. Parfait-Pignol, G. Le Caër, R. Delannay. On some natural and model 2D bimodal random cellular structures, Eur. J. Phys. B 4 :499, 1998

[Quilliet 2005] C. Quilliet, M. Idiart, B. Dollet, L. Berthier, A. Yekini. Bubbles in sheared two-dimensional foams, Colloids and Surfaces A 263 :95, 2005

[Quilliet 2008] C. Quilliet, S. Ataei Talebi, D. Rabaud, J. Käfer, S. J. Cox, F. Graner. Topological and geometrical disorder correlate robustly in two-dimensional foams, soumis à Phil. Mag., 2008

[Raufaste 2007] C. Raufaste, B. Dollet, S. Cox, Y. Jiang, F. Graner. Yield drag in a two-dimensional flow of foam around a circular obstacle : Effect of fluid fraction, Eur. Phys. J. E. 23 :217-228, 2007

[Rivier 82] N. Rivier, A. Lissowski. On the correlation between sizes and shapes of cells in epithelial mosaics, J. Phys. A 15 :L143, 1982

[Rivier 2005] N. Rivier, M. F. Miri, C. Oguey. Plasticity and topological defects in cellular structures : Extra matter, folds and crab moulting, Coll. Surfaces A 263 :39, 2005

[Schliecker 2002] G. Schliecker. Structure and dynamics of cellular systems, Adv. Phys. 51 :1319, 2002

[Stavans 89] J. Stavans, J. A. Glazier. Soap froth revisited : dynamic scaling in the two-dimensional froth, Phys. Rev. Lett. 62 :1318, 1989

[Texeira 2002] P.I.C. Teixeira, F. Graner, M.A. Fortes. Mixing and sorting of bidisperse two-dimensional bubbles, Eur. Phys. J. E 9 :161, 2002

[Thomas 2006] G. L. Thomas, R. M. C. de Almeida, F. Graner. Coarsening 3D grains in crystals, or bubbles in dry foams, tend towards a universal, statistically scale-invariant regime, Phys. Rev. E 74 :021407, 2006

[Weaire 90] D. Weaire, H. Lei. A note on the statistics of the mature two-dimensional soap froth, Phil. Mag. Lett. 62 :427, 1990

[Weaire 99] D. Weaire, S. Hützler. $\mathbf{Physics}$ of Foams] , Oxford University Press, Oxford, 1999