

Thèse de Doctorat présentée pour obtenir le titre de
Docteur de l'université de Reims.

Spécialité :
Physico-chimie.

Par :
Cédric Voisin.

Sujet :
Quelques aspects de la nucléation des bulles de
Champagne dans une flûte et de leur ascension à
petits nombres de Reynolds.

Soutenue le 22 Juin 2005 devant le jury composé des membres suivants :

Mme Michèle Vignes-Adler (CNRS, Université de Marne-la-Vallée)	Rapporteur
Mr David Quéré (CNRS, Collège de France)	Rapporteur
Mr Hervé This (INRA, Collège de France)	Président du jury
Mr Bertrand Robillard (Moët & Chandon)	Examineur
Mr Philippe Jeandet (Université de Reims)	Examineur
Mr Gérard Liger-Belair (Université de Reims)	Examineur

Laboratoire d'Oenologie et de Chimie Appliquée.

Remerciements.

Il me faut tout d'abord remercier profondément Monsieur Philippe Jeandet pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire d'Oenologie et de Chimie Appliquée, qu'il dirige. Je le remercie pour son efficacité et son dynamisme, et pour la confiance qu'il m'a accordée tout au long de cette thèse.

Je remercie très sincèrement Gérard Liger-Belair, ami de longue date, qui m'a proposé d'entreprendre l'aventure de la thèse, alors qu'il finissait la sienne, il y a trois ans, et qui m'a généreusement fait profiter de son expérience et de sa compétence. Cette thèse n'existerait tout simplement pas sans lui.

Je remercie chaleureusement Madame Michèle Vignes-Adler, Monsieur David Quéré, Monsieur Hervé This, et Monsieur Bertrand Robillard, pour m'avoir fait l'honneur d'accepter de juger ce travail, ainsi que pour leur patience, leur gentillesse, et leur disponibilité.

Je remercie les membres de l'université que j'ai eu le plaisir de rencontrer et qui m'ont accompagné, soutenu, et aidé pendant ces trois années : Clara Cilindre, Alexandra Conreux, Delphine Couteau, Thierry Dambrouck, Laurent Debelle, Eldra Delannay, Nathalie Delorme, Etienne Derat, Nicolas Floquet, Philippe Grillot, Franck Guillaume, Gérard Hamalian, Stéphanie Héry, Hervé Lemaesquier, Alexandre Maciuk, Laurence Delahaut, Gautier Moroy, Maryline Parmentier, Chantal Radet, Brice Sid, Vincent Steinmetz, Alix Toribio, Yann Vasserot, et Madga Warchol.

Trouver des raisons de remercier ses amis a quelque chose de superficiel. Les amis sont les amis. Néanmoins, je remercie Svitlana Subota pour son amitié et pour tout ce qu'elle m'a apporté, Sophie Thiebaut pour sa gentillesse et sa présence, François "Zolt" Jonquet, sage parmi les sages, pour m'avoir initié à l'imagerie de synthèse et à la cuisine japonaise, et Alain "Poinvir" Gueguen, prince de la bidouille, pour ses légendaires soirées astro et pour m'avoir, il y a bien longtemps, fait découvrir Mathematica.

Naturellement, cette thèse n'existerait pas sans le soutien constant de chacun des membres de ma famille, à qui j'adresse, pour finir, toute mon affection.

Table des matières

1	Introduction générale.	11
1.1	Généralités.	11
1.2	La vie d'une bulle.	13
1.2.1	Formation.	13
1.2.2	Ascension.	14
1.2.3	Eclatement.	14
1.3	Plan de la thèse.	15
2	Matériel, méthodes, et outils théoriques.	19
2.1	introduction.	19
2.2	Matériel et méthodes.	20
2.2.1	Observations.	20
2.2.2	Traitements numériques.	21
2.3	Quelques outils de la physique.	22
2.3.1	Tension de surface.	22
2.3.2	Loi de Laplace-Young.	23
2.3.3	Loi de Young.	24
2.3.4	Nombres sans dimensions.	24
2.3.5	Loi de Henry.	25
2.3.6	Coefficient de traînée.	25
2.3.7	Optique.	27
3	Le Champagne, les fibres et les bulles.	31
3.1	Le Champagne.	32
3.1.1	Elaboration.	32
3.1.2	Composition chimique.	33
3.1.3	Saturation et sursaturation.	34
3.2	Types de nucléation.	36
3.2.1	Nucléation homogène.	38
3.2.2	Nucléation hétérogène.	40
3.2.3	Résumé.	42

3.3	Nucléation dans le champagne.	43
3.3.1	Nécessité d'une poche de gaz.	43
3.3.2	Emprisonnement des poches lors du versement.	44
3.3.3	Identification des sites.	47
3.4	Les fibres.	50
3.4.1	Géométrie externe.	50
3.4.2	Structure interne.	51
3.4.3	Diffusion dans la paroi de la fibre.	53
3.5	Chronologie détaillée de la naissance.	55
3.5.1	Grossissement de la poche de gaz.	56
3.5.2	Libération de la bulle.	58
3.5.3	Débuts de l'ascension.	59
3.6	Résumé.	62
4	Grossissement de la poche de gaz piégée dans la fibre.	65
4.1	Introduction.	65
4.2	Résultats expérimentaux.	66
4.3	Pression interne de la poche de gaz.	70
4.4	Variation du volume de la poche de gaz.	70
4.5	Transfert de masse du CO_2	71
4.5.1	Cas d'une fibre imperméable au CO_2	72
4.5.2	Cas d'une fibre perméable au CO_2	73
4.6	Renouvellement du gaz autour de la poche.	75
4.6.1	Diffusion pure.	75
4.6.2	Diffusion-convection.	76
4.7	Paramètres et résultats.	76
4.7.1	Solution formelle.	76
4.7.2	Paramètres physiques.	77
4.7.3	Paramètres géométriques.	77
4.7.4	Résultats.	79
4.8	Résumé.	79
4.9	Conclusion.	81
5	Détermination de la forme des fibres par des méthodes optiques.	83
5.1	Introduction.	84
5.2	Idée générale.	85
5.3	Profils d'intensité expérimentaux	85
5.3.1	Obtention d'un profil d'intensité.	85
5.3.2	Carte des pourcentages.	88

5.3.3	Problèmes potentiels et leurs résolutions.	88
5.3.4	Dépendance expérimentale du pourcentage avec la largeur réelle. . .	91
5.4	Profils d'intensité numériques.	93
5.4.1	Reconstruction numérique du système optique.	93
5.4.2	Approximation paraxiale.	96
5.4.3	Lancer de rayons inverse.	96
5.4.4	Lancer de rayons conforme.	98
5.4.5	Validation des méthodes numériques.	102
5.5	Angle d'inclinaison de la fibre.	104
5.6	Reconstruction de poches de gaz.	104
5.6.1	Principe.	104
5.6.2	Résultats.	107
5.6.3	Vérification à l'aide de fibres en rotation.	110
5.7	Résumé.	110
5.8	Conclusion.	111
6	Description de la libération de la bulle.	113
6.1	Introduction.	113
6.2	Description.	114
6.2.1	Une séquence complète.	114
6.2.2	Vidage de la poche.	115
6.2.3	Rupture.	115
6.2.4	Quelques données.	118
6.3	Quelques tentatives d'explications.	118
6.3.1	Rayons des bulles.	118
6.3.2	Temps de libération.	123
6.3.3	Temps de rupture.	126
6.4	Résumé.	131
6.5	Conclusion.	131
7	Etat de surface des bulles au début de leur ascension.	133
7.1	Introduction.	134
7.2	Analyse automatique des images.	135
7.2.1	Principes.	135
7.2.2	Résultats.	141
7.3	Quelques précautions.	143
7.3.1	Nombres de Reynolds.	143
7.3.2	Stationnarité de la vitesse.	143
7.4	Application aux données expérimentales	144

7.5	Corrections à la vitesse.	146
7.5.1	Correction due à la paroi de verre.	146
7.5.2	Correction due aux autres bulles	148
7.5.3	Correction due à la fibre.	153
7.5.4	Résultats.	154
7.6	Discussion théorique.	155
7.6.1	Bulle fluide.	156
7.6.2	Bulle rigide.	157
7.7	Discussion des résultats.	159
7.8	Etude de sites suivis (paroi inclinée).	162
7.8.1	Correction due à la paroi inclinée.	163
7.8.2	Un comportement inattendu.	167
7.8.3	Résultats.	170
7.9	Résumé.	170
7.10	Conclusion.	173
8	Perspectives et conclusion.	175
8.1	Résumé.	175
8.1.1	Formation.	175
8.1.2	Libération.	176
8.1.3	Ascension.	177
A	Surface minimale contrainte.	179
A.1	Introduction.	179
A.2	Principes généraux.	180
A.2.1	Surfaces minimales.	180
A.2.2	Courbures.	181
A.2.3	Contraintes physiques.	183
A.2.4	Point de vue de la Physique.	185
A.2.5	Contraintes géométriques.	185
A.3	Approximation ellipsoïdale.	186
A.4	Etude numérique par la méthode modifiée de descente du gradient.	189
A.4.1	Rappel de la méthode.	189
A.4.2	Adaptation de la méthode dans notre cas.	190
A.4.3	Application à la courbe.	192
A.5	Etude numérique par simulation directe.	194
A.5.1	Principe.	194
A.5.2	Détermination des paramètres géométriques importants.	195

B Ascension d'une bulle : éléments théoriques.	197
B.1 Ascension d'une bulle de rayon constant.	197
B.2 Nombre de Reynolds.	198
B.3 Concentration de surface.	198
C Perturbation des bulles encadrantes.	201
C.1 Ecoulement autour d'une sphère.	201
C.2 Correction de vitesse due à la bulle supérieure.	202
C.3 Correction de vitesse due à la bulle inférieure.	203
C.3.1 Calcul à l'ordre 2.	203
C.4 Gradients de pression additionnels.	204
C.5 Correction complète.	204

Chapitre 1

Introduction générale.

Sommaire

1.1 Généralités.	11
1.2 La vie d'une bulle.	13
1.2.1 Formation.	13
1.2.2 Ascension.	14
1.2.3 Eclatement.	14
1.3 Plan de la thèse.	15

1.1 Généralités.

Un Champagne se distingue d'un vin blanc tranquille par son effervescence, c'est-à-dire par l'apparition de bulles en son sein. Créé par le moine Pierre Pérignon en 1670, le *vin du diable*, ainsi nommé pour sa capacité à faire sauter les bouchons et parfois exploser les bouteilles —à l'époque encore trop fragiles—, acquit rapidement ses lettres de noblesses grâce à sa pétillance. Aujourd'hui encore, la finesse de ses bulles participe à son appréciation par le consommateur et reste un critère important d'évaluation de sa qualité dans un jury de dégustation. Depuis son invention, il y a plus de trois siècles, la fabrication du Champagne s'est peu à peu précisée puis standardisée, au moins dans ses grandes lignes. On parle aujourd'hui de la *méthode champenoise*, qui regroupe l'ensemble des étapes importantes menant d'une grappe de raisin à une bouteille de Champagne. Ces procédés sont essentiellement empiriques et restent imparfaitement compris. De ce fait, la part de hasard dans la qualité d'un Champagne est encore importante. La nécessité de comprendre les mécanismes à l'oeuvre dans l'effervescence motive de nombreuses études depuis quelques années. Les premières approches ont naturellement été les voies chimique et biologique. Plus récemment, la physico-chimie des interfaces a commencé à poindre. C'est dans ce cadre général que s'inscrit ce travail.

Qu'observe-t-on dans une flûte de Champagne? Tout d'abord, les bulles n'apparaissent pas isolées dans le liquide, ni complètement au hasard. Elles se déploient en colonnes, comme s'il existait des endroits privilégiés dans le verre, où toutes les bulles d'une colonne prendraient naissance. Les bulles montent vers la surface, puis éclatent. Cependant, elles n'éclatent pas immédiatement, ce qui permet à la mousse de se former. L'abondance et l'apparence de la mousse dépendent d'une part de la composition chimique du champagne, et d'autre part de la quantité de bulles arrivant en surface, c'est-à-dire du nombre et de la fréquence des trains de bulles. Si on laisse la flûte évoluer sans la boire, on constate que les filaments de bulles se raréfient au fil du temps. Ceux qui restent s'espacent progressivement, puis finissent par s'éteindre.

Il semble essentiel, si l'on veut comprendre l'effervescence du Champagne, d'en examiner l'origine. Il faut déterminer pourquoi les bulles n'apparaissent pas n'importe où, quels sont les mécanismes sous tendant leur création et leur fréquence d'apparition, et quels en sont les liens avec la composition du Champagne et ses propriétés physiques.

Ce travail a commencé quelques semaines après la soutenance de thèse de Gérard Liger-Belair [1] et s'inscrit dans sa continuité. De fait, sa thèse, publiée par la suite dans les *Annales de Physique* [2] sera abondamment citée. G. Liger-Belair a décrit l'ensemble de la vie de la bulle, et ses plus beaux résultats concernent l'ascension et l'éclatement des bulles. En particulier, certaines particularités des interactions d'une bulle avec le milieu complexe dans lequel elle monte commencent à être bien comprises [3]. La naissance des bulles dans un Champagne est en revanche encore assez peu détaillée. Il semble donc important d'identifier et de préciser ses conditions d'occurrence, les mécanismes physiques mis à l'oeuvre, le rôle des constituants du Champagne dans l'apparition de bulles au coeur du liquide, et leur influence sur l'émission des bulles (périodicité, fréquence, régularité).

La richesse du milieu de naissance et de vie des bulles a motivé le parti pris d'une étude en situation de consommation, c'est-à-dire du Champagne versé dans une flûte, plutôt qu'une étude en situation contrôlée (solutions modèles, sites de nucléation artificiels). Ce choix n'est d'ailleurs pas toujours délibéré dans la mesure où la taille et la complexité du système en interdisent actuellement la reproduction artificielle, même approchée. En effet, les propriétés structurelles des fibres où se forment les bulles leur confèrent des propriétés précises (forme, porosité, diffusion), aujourd'hui impossibles à reproduire à l'échelle micrométrique qui est la leur.

La section suivante esquisse succinctement la vie d'une bulle et définit le cadre au sein duquel le plan de la thèse, qui sera exposé dans la dernière section de cette introduction, pourra être compris.

1.2 La vie d'une bulle.

La vie d'une bulle, telle qu'on l'observe, s'organise en trois étapes principales correspondant à des situations physiques différentes :

- La formation, qui fait intervenir un objet solide emprisonnant la poche de gaz destinée à devenir une bulle, lequel va imposer certaines conditions géométriques et physiques.
- L'ascension, que la bulle commence juste après sa naissance sous l'influence de la gravitation, et au cours de laquelle le gaz est seul dans le liquide. C'est la seule étape de sa vie pendant laquelle la bulle est sphérique, du fait de l'absence de contraintes.
- L'éclatement, lorsque la bulle arrive en surface, où l'interface liquide/atmosphère va imposer des conditions encore différentes.

Le présent travail est uniquement consacré aux premiers stades de la vie de la bulle, c'est-à-dire sa naissance et les premiers millimètres de son ascension. La présente section offre néanmoins un panorama rapide de ces trois étapes.

1.2.1 Formation.

La naissance de la bulle est le sujet principal de cette thèse et sera présentée en détail au chapitre 3, aussi se bornera-t-on ici à un très bref survol du sujet.

Il a longtemps été cru que la formation de la bulle avait lieu sur des irrégularités de la surface de la flûte. Les verres actuels sont en fait suffisamment lisses pour interdire l'emprisonnement de la poche de gaz nécessaire à la formation de la bulle. Récemment [2] les fibres de cellulose ont été identifiées comme les vrais berceaux de la bulle en conditions réelles, mais n'ont pas été étudiées précisément ni incluses dans un modèle, ce qui est l'objet de ce travail. Il était donc supposé qu'une poche de gaz était emprisonnée dans un accident de la surface du verre, qu'elle grossissait par contact direct avec le liquide, et qu'elle se détachait lorsque la force d'Archimède (gravitation) qui la tire vers le haut outrepassait la force d'ancrage (tension de surface) qui la maintient collée au verre. Cette méthode rend imparfaitement compte du rayon de détachement observé. On verra qu'en réalité, chacune de ces étapes est beaucoup plus complexe qu'on ne le pensait.

On tâchera de montrer ici le rôle joué par les fibres de cellulose dans la genèse et le détachement de la bulle, et leur influence sur la fréquence d'émission des bulles, leur rayon initial, et même les premiers stades de leur montée.

1.2.2 Ascension.

La course d'une bulle de gaz dans un liquide est un sujet extrêmement étudié depuis longtemps. Il n'est pas question ici d'en faire une revue, même brève, tant le sujet est vaste.

On rappelle simplement que le mouvement d'une bulle unique peut devenir très complexe. La bulle peut se mettre à osciller (sa trajectoire devient alors une hélice) [4]. Elle peut également se déformer, parfois beaucoup et de manière très compliquée [5]. Toutefois, la petite taille des bulles qu'on trouve dans le champagne et la courte distance qu'elles ont à parcourir (la hauteur de la flûte) permettent d'éliminer ces deux difficultés majeures.

En revanche, il est impossible de s'affranchir du comportement de groupe observé couramment dans les trains de bulles, c'est-à-dire lorsque la bulle n'est plus seule, mais entourée de ses semblables. Ici encore, on observe une vaste zoologie de comportements dépendants de la distance entre les bulles, de la régularité d'émission du site de nucléation, de l'agitation du liquide dans le verre (due aux courants créés par les nombreux trains de bulles), et de la proximité de la paroi de la flûte. Un des effets les plus facilement observables est le rapprochement entre bulles adjacentes qui pousse les bulles à se coupler deux à deux et briser ainsi la régularité symétrique du train de bulles. Certains aspects du couplage de la bulle à son entourage (autres bulles, paroi du verre, fibre de cellulose) seront examinés dans le chapitre consacré aux premiers instants de l'ascension (chapitre 7).

Concernant l'état de la bulle elle-même, un des principaux résultats des travaux de G. Liger-Belair [2] fut de montrer que la bulle, au cours de son ascension, se charge en molécules aromatiques. Les bulles contribuent donc à la migration des molécules tensioactives vers la surface du liquide. G. Liger-Belair a ainsi pu montrer le rôle potentiel d'exhausteur d'arôme de l'effervescence.

1.2.3 Eclatement.

Là encore, le sujet est tellement riche et éloigné du thème principal de ce travail qu'on se contentera d'une description très brève.

Lorsque la bulle arrive en fin de parcours, sa surface est chargée en tensioactifs. La surface du liquide, pour les mêmes raisons (appétence des tensioactifs pour les interfaces liquide-gaz), est également très peuplée, en sorte que les deux interfaces ont une tension de surface amoindrie par la présence des surfactants. En conséquence, la bulle n'éclate pas tout de suite. Elle reste en surface (ce qui autorise l'existence de la mousse) en adoptant une forme compliquée qui dépend de son volume [6]. Une mince pellicule de liquide se crée alors sur la bulle et va encore s'amincir lentement en son centre, en s'écoulant vers la base de la partie émergée de la bulle (figure 1.1) sous l'effet de la gravitation et de la

capillarité [2].

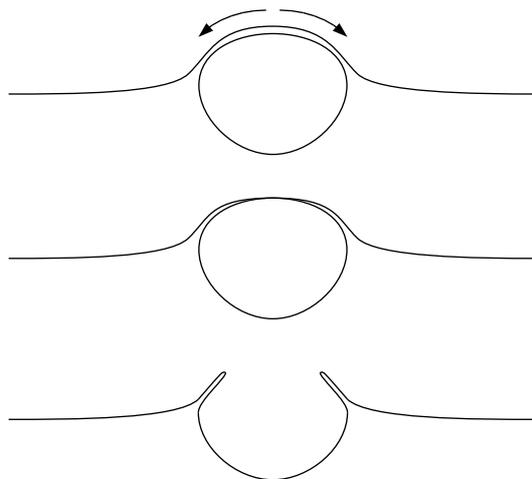


FIG. 1.1 – *Début d'éclatement d'une bulle. Sous l'action combinée de la gravitation et de la capillarité, le liquide au sommet de la bulle s'écoule vers la base de la partie émergée. La couche liquide qui emprisonne le gaz s'affine alors jusqu'à la rupture [2].*

Lorsque le centre devient trop mince, la membrane se déchire et la bulle éclate en un mouvement compliqué [6]. Les mouvements de liquide occasionnés aboutissent à la formation d'un jet central (figure 1.2), lequel peut se fragmenter en fines gouttelettes pouvant être projetées à plusieurs centimètres de hauteur et responsables, par leur grand nombre, du picotement qu'on ressent en approchant le nez ou les lèvres d'un verre de champagne. Là encore, en se souvenant que le liquide est enrichi en molécules aromatiques, on comprend le rôle important que l'effervescence et l'éclatement peuvent conjointement jouer dans l'amplification des parfums du vin.

1.3 Plan de la thèse.

Cette thèse suit chronologiquement la naissance de la bulle. Après un court chapitre (chapitre 2) consacré au matériel et aux méthodes utilisés, la naissance des bulles sera présentée en détail (chapitre 3). Ce chapitre amènera sous les projecteurs de petits objets solides, les fibres, dans lesquels la formation de la bulle a lieu. L'étude de cette formation dans certains cas simples fera l'objet du chapitre 4 et montrera l'importance de la connaissance de la forme des fibres, qui sera donc étudiée au chapitre 5. Lorsque la bulle est mûre pour sortir de sa fibre, elle éclot et se libère soudainement. Cette éjection de la bulle sera décrite en détail au chapitre 6. Enfin, après sa libération, la bulle commence son ascension vers la surface du verre. Il apparaîtra que les tout débuts de cette ascension, étudiée par G. Liger-Belair [2], sont marqués par la proximité d'un environnement perturbant jusqu'ici ignoré. Le chapitre 7 est donc dédié aux deux premiers millimètres

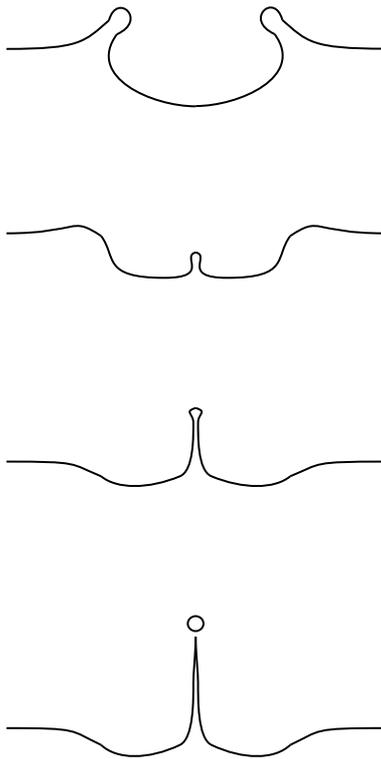


FIG. 1.2 – *Formation d'un jet liquide par transmission de l'impulsion latérale vers le centre de la bulle. Sur la dernière image, une gouttelette se sépare du jet. Suivant les conditions, le nombre et la taille des gouttelettes sont variables [6].*

de la vie de la bulle sevrée. Le dernier chapitre (chapitre 8) dressera un bilan du travail effectué et des perspectives ouvertes.

Chapitre 2

Matériel, méthodes, et outils théoriques.

Sommaire

2.1	introduction.	19
2.2	Matériel et méthodes.	20
2.2.1	Observations.	20
2.2.2	Traitements numériques.	21
2.3	Quelques outils de la physique.	22
2.3.1	Tension de surface.	22
2.3.2	Loi de Laplace-Young.	23
2.3.3	Loi de Young.	24
2.3.4	Nombres sans dimensions.	24
2.3.5	Loi de Henry.	25
2.3.6	Coefficient de traînée.	25
2.3.7	Optique.	27

2.1 introduction.

Ce chapitre présente les instruments et protocoles généraux utilisés lors des expériences, puis introduit d'un point de vue pratique les notions indispensables à la compréhension de la suite du travail.

2.2 Matériel et méthodes.

2.2.1 Observations.

La figure 2.1 présente un schéma et une photo du matériel utilisé pour l'observation.

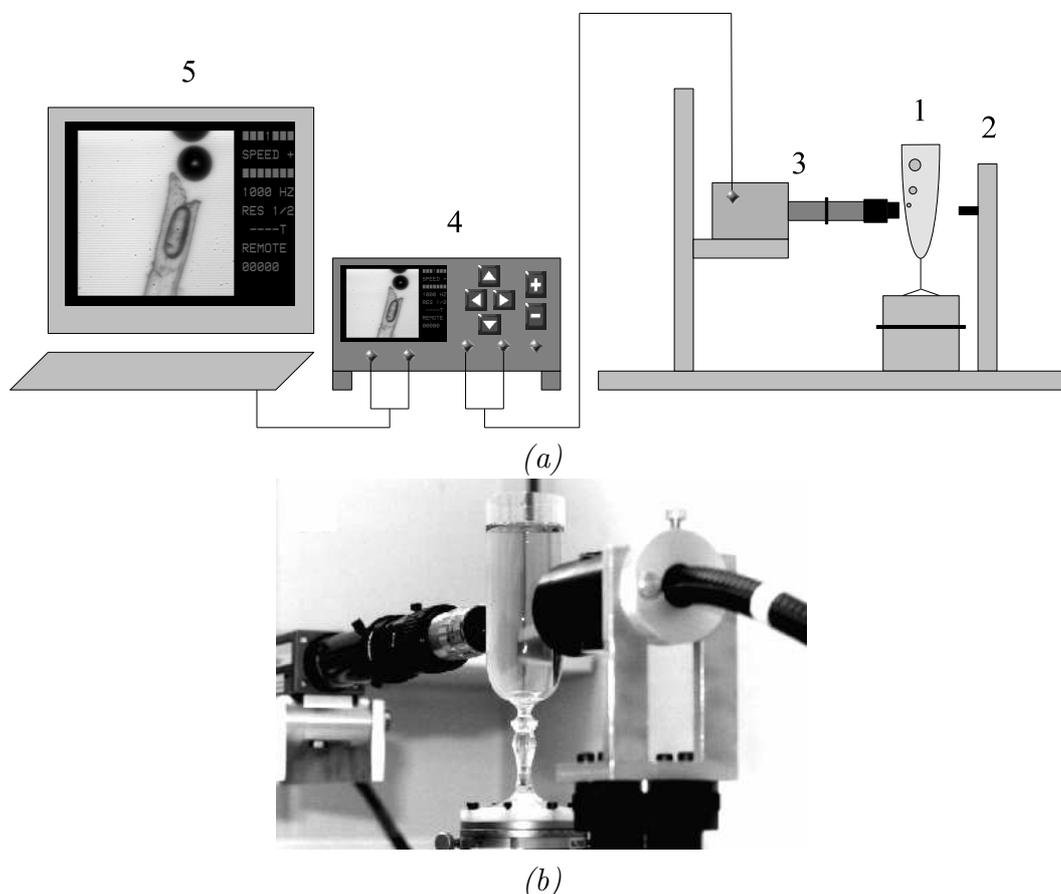


FIG. 2.1 – *Matériel utilisé pour l'observation de la nucléation en conditions de consommation. (a) Représentation schématique. (1) flûte contenant le Champagne. (2) Lampe froide utilisée pour le rétro éclairage. (3) Caméra ultra rapide munie d'un objectif de microscope. (4) Moniteur de contrôle. (5) Ordinateur de bureau permettant l'enregistrement et le traitement des films obtenus. (b) Photographie du dispositif.*

Le Champagne utilisé est le Brut Impérial de Moët & Chandon.

Les verres sont des flûtes cylindriques en cristal (Mariana Arystal, Lednické, Slovakia), d'une hauteur de 12 *cm* et d'un diamètre de 4.9 *cm*. La paroi de la flûte est épaisse de 0.8 *mm*.

Pour l'observation de la nucléation, une caméra ultrarapide (Speedcam +, Vannier Photelec, Antony, France) capable d'acquérir 200 à 3000 images par seconde a été utilisée. La résolution des images baisse avec l'augmentation de la fréquence d'enregistrement. L'acquisition a été le plus souvent effectuée à 1000 images. s^{-1} , ce qui autorise une résolution de 572×768 pixels.

La caméra est munie d'un objectif de microscope (Mitutoyo, M Plan Apo 5, Japan) grossissant jusqu'à environ 1000 fois avec une résolution de l'ordre du micron. L'objectif est muni d'un diaphragme permettant de réduire son ouverture et d'augmenter ainsi la profondeur de champ, au prix d'une réduction importante de la quantité de lumière entrante, ce qui nécessite une source de lumière de forte intensité.

La lampe utilisée pour éclairer la flûte contenant le Champagne (Fiber-Lite, PL-900, Dolan-Jenner) est une source froide. Les très forts grossissements utilisés requièrent un éclairage puissant. Une source conventionnelle chaufferait et donc perturberait les objets éclairés, ce qui justifie l'utilisation d'une source froide.

Un moniteur de contrôle (Speedcam + lite High Speed Video, Vannier) affiche en temps réel les images prises par la caméra et permet d'enregistrer environ deux secondes de film (2048 images à 1000 images. s^{-1}). Il est ensuite possible de visionner image par image le film obtenu, ou de le transférer sur un ordinateur.

L'ordinateur interfacé avec le moniteur est un ordinateur personnel de bureau (PC), équipé d'un processeur Intel Pentium cadencé à 450 MHz et de 128 Mo de mémoire vive. Le transfert de 1000 images du moniteur de contrôle vers l'ordinateur prend environ 5 minutes. Il n'est donc pas possible d'enregistrer en continu les phénomènes filmés. On peut, dans le meilleur des cas, transférer une seconde d'animation toutes les 5 minutes.

Les films sont des séquences d'images au format *TIFF*, d'environ 0.5 Mo chacune. Un film détaillé de deux secondes demande donc une place d'environ 1 Go (2000 images de 0.5 Mo) de disque dur. Une fois dans l'ordinateur, le film peut être visualisé image par image ou en continu au moyen d'un logiciel (AUTOBULLE, Vannier) qui permet également de faire des mesures simples (position des pixels, distance entre deux pixels) sur une image choisie.

Pour observer la nucléation, du Champagne est versé dans la flûte, laquelle est ensuite posée sur un chariot entre la lampe et l'objectif. Le travail est toujours réalisé à température ambiante (20-23°C) avec un Champagne chambré. L'observation des objets se fait donc en contre jour, puisque la lampe fait face à l'objectif. La figure 2.2 illustre le principe d'observation.

2.2.2 Traitements numériques.

Trois ordinateurs personnels de bureau (PC) ont été utilisés au cours de cette thèse. La première année (correspondant grossièrement au chapitre 4) on a utilisé celui dédié à la caméra, décrit plus haut. La deuxième année (correspondant au chapitre 5), j'ai utilisé mon ordinateur personnel, équipé d'un processeur AMD Athlon 1.4 et de 512 Mo de vive. Enfin, la troisième année (chapters 6 et 7), un ordinateur doté d'un processeur Intel Pentium IV cadencé à 2.8 GHz et de 512 Mo de vive à été employé.

Tous les calculs, tous les programmes sans exception et une partie des schémas ont

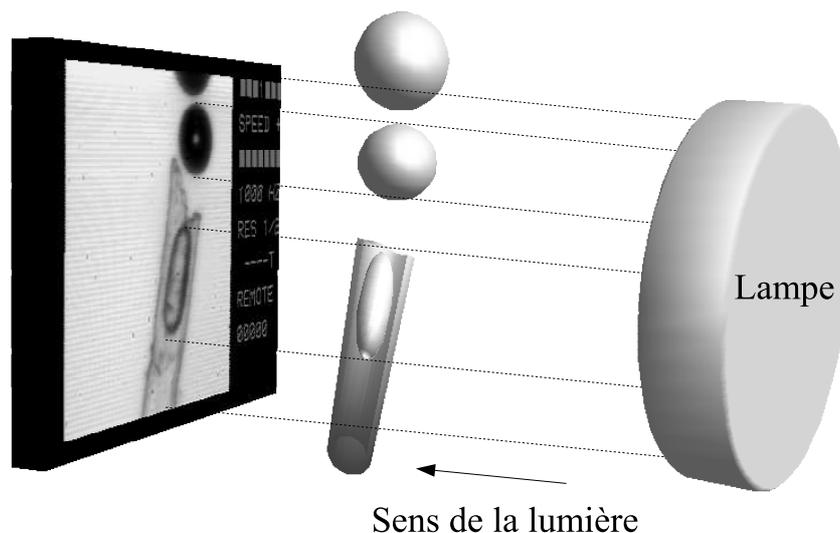


FIG. 2.2 – *Principe d'observation de la nucléation. L'objet est éclairé en contre jour, c'est-à-dire que la lumière doit le traverser avant d'atteindre l'objectif et donc la matrice CCD de la caméra, représentée ici par un écran de projection.*

été réalisés avec un Logiciel de calcul symbolique (Mathematica v4.2).

Les courbes simples ont le plus souvent été tracées avec un logiciel spécialisé (Sigma-Plot v8.2), interfacé avec Mathematica pour qu'il puisse en recevoir les données.

Quelques figures ont été réalisées avec la suite bureautique OpenOffice v1.1.1. Certaines autres ont été réalisées avec le Logiciel de création d'images Blender v2.33. Lorsque la rigueur et la clarté l'exigeaient, Blender a été interfacé avec Mathematica, *via* un format d'échange *DXF*.

La protéine (figure 3.1) du chapitre 3 a été calculée et fournie par Mr Gautier Moroy avec le Logiciel Molmol v2K.2.

2.3 Quelques outils de la physique.

Le but de cette section est de donner quelques idées pratiques sur la signification des outils utilisés par la suite.

2.3.1 Tension de surface.

La création d'une interface requiert la destruction de liaisons intermoléculaires et donc demande de l'énergie (figure 2.3). L'énergie dE requise est proportionnelle à la surface dA créée [7] :

$$dE = \sigma dA \quad (2.1)$$

où le coefficient σ est par définition la tension de surface, qui a les dimensions d'une énergie par unité de surface.

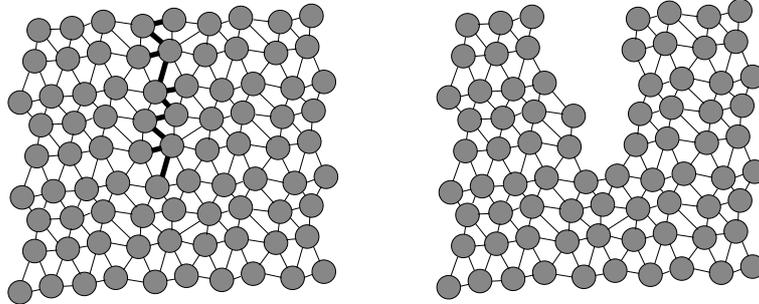


FIG. 2.3 – *Tension de surface. Les liaisons en gras sont brisées par la création de surface supplémentaire. Les molécules concernées ne se trouvent plus en situation d'énergie minimale.*

Les molécules de surface ne sont plus en situation d'énergie minimale et cherchent à y retourner. Les interfaces sont donc des phénomènes défavorables énergétiquement et tendent à réduire leur surface autant que possible. Pour une longueur de référence l , l'accroissement de surface se réécrit $dA = ldx$ et l'équation (2.1) devient :

$$F = \sigma l \quad (2.2)$$

où $F = dE/dx$. Cette force F est celle qui porte une aiguille de longueur l posée sur la surface d'un liquide. Ceci montre que σ est aussi une force par unité de longueur et que l'interface se comporte comme un élastique (ressort) de coefficient de raideur σ . Intuitivement, les interfaces se comportent donc comme des membranes élastiques de coefficient de raideur σ .

2.3.2 Loi de Laplace-Young.

A l'équilibre, la condition minimisant le travail $dW = \sigma dA - \Delta P dV$ requis pour déplacer une interface courbe (Δp est la différence de pression de part et d'autre de l'interface, dA et dV sont les variations de surface et de volume, et σ est la tension de surface) s'appelle la loi de Laplace-Young et s'écrit [8] :

$$\begin{aligned} \Delta P &= \sigma k \\ k &= \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \end{aligned} \quad (2.3)$$

où k est la courbure totale de l'interface, et R_1 et R_2 ses rayons de courbure principaux (minimum et maximum). Pour une interface sphérique de rayon R , la loi devient :

$$\Delta P = \frac{2\sigma}{R} \quad (2.4)$$

Intuitivement, l'interface se comporte comme une membrane élastique et exerce donc une force vers l'intérieur quand elle est courbée. La différence de pression ΔP s'installe pour équilibrer cette force. La pression interne est donc toujours supérieure à la pression externe. Les significations géométrique et physique de cette loi sont examinées très en détail dans l'annexe A.

2.3.3 Loi de Young.

Dans le plan perpendiculaire à la ligne de contact des trois phases (figure 2.4), l'immobilité de la ligne triple, projetée vectoriellement sur le solide, s'écrit [9] :

$$\sigma_{SG} - \sigma_{SL} = \sigma \cos \theta \quad (2.5)$$

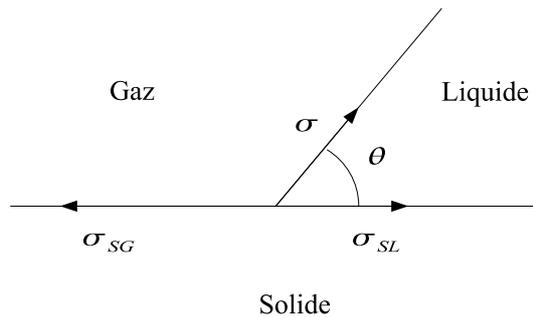


FIG. 2.4 – Notations pour la loi de Young. La tension de surface σ pouvant être interprétée comme une force par unité de longueur, la loi de Young est l'expression de l'équilibre des forces immobilisant la ligne triple, projeté sur le solide.

La tension de surface étant considérée comme une force par unité de surface, cette loi est la condition d'annulation des forces agissant sur la ligne triple.

2.3.4 Nombres sans dimensions.

On considèrera dans cette section un système dont la longueur et la vitesse caractéristiques sont respectivement L et U , dans un liquide de densité ρ et de viscosité μ , au voisinage d'une interface de tension σ .

Les nombres sans dimensions sont les rapports de quantités de mêmes dimensions (généralement des énergies, des impulsions, ou des temps) comparant les ordres de gran-

deurs de deux effets physiques. Les trois nombres suivants seront particulièrement utilisés :

Nombre de Reynolds. Le nombre de Reynolds Re compare l'inertie et la viscosité du liquide :

$$Re = \frac{\rho UL}{\mu} \quad (2.6)$$

Nombre capillaire. Le nombre capillaire Ca compare la viscosité et les effets de surface :

$$Ca = \frac{\mu U}{\sigma} \quad (2.7)$$

Nombre de Weber. Le nombre de Weber We compare les effets de l'inertie et de la tension de surface :

$$We = \frac{\rho U^2 L}{\sigma} \quad (2.8)$$

2.3.5 Loi de Henry.

La loi de Henry exprime l'équilibre énergétique d'une substance de part et d'autre d'une interface liquide-gaz, c'est-à-dire l'égalité des potentiels chimiques de la substance dans les deux phases [10]. Quand il faut autant d'énergie pour faire passer une molécule de la phase liquide à la phase gazeuse que pour faire l'inverse, la pression de la substance en phase gazeuse P est proportionnelle à sa concentration c dans la phase liquide. La constante de proportionnalité s'appelle la constante de Henry H_e [10] :

$$P = H_e c \quad (2.9)$$

En général, l'équilibre interphasique, et donc la constante de Henry, dépendent de la température et des espèces chimiques considérées [10]. Le tableau 2.1 donne la constante de Henry pour différentes températures dans un Champagne. A température ambiante, elle vaut environ $H_e \approx 0.7 \text{ atm.m}^3.\text{kg}^{-1}$.

2.3.6 Coefficient de traînée.

Tout corps pénétrant un fluide subit une force de résistance due aux chocs des particules du fluide sur ce corps. Cette force est par définition proportionnelle à la densité d'énergie cinétique du fluide arrivant contre le corps et à la surface du corps offerte à l'écoulement [12] :

Température (°C)	Constante de Henry H_e ($atm.m^3.kg^{-1}$)
1	0.34
2	0.35
3	0.36
4	0.37
5	0.39
6	0.41
7	0.43
8	0.45
9	0.46
10	0.48
11	0.5
12	0.52
13	0.54
14	0.56
15	0.58
16	0.6
17	0.63
18	0.65
19	0.68
20	0.69
21	0.71
22	0.75
23	0.78
24	0.8
25	0.83

TAB. 2.1 – Constante de Henry H_e en fonction de la température, pour un Champagne avec 12.5% d'éthanol et $10g.l^{-1}$ de sucres (d'après Agabalianz [11]).

$$F = C_D \frac{1}{2} \rho U^2 S \quad (2.10)$$

où ρ est la densité du fluide, U la vitesse du corps considéré et S sa surface offerte. Le coefficient de proportionnalité C_D —D pour drag— est le coefficient de traînée. Il dépend généralement des propriétés du fluide (viscosité, densité, *etc.*) et du corps considéré (forme, surface, nature, *etc.*). Ce coefficient est connu sous un autre nom dans l'industrie automobile puisque c'est le C_x des voitures. Ce travail ne concernera que des bulles sphériques. Dans ce cas, on verra que le coefficient dépend essentiellement du nombre de Reynolds et de l'état de surface de la bulle.

2.3.7 Optique.

Loi de Snell-Descartes.

L'optique géométrique est valide lorsqu'il est possible de négliger le caractère ondulatoire de la lumière, c'est-à-dire quand les dimensions du système étudié sont grandes devant la longueur d'onde de la lumière, qui est de l'ordre de $0.5\mu m$. On verra par la suite que les plus petits objets étudiés seront de l'ordre de $20 - 100\mu m$, soit au moins 40 fois la longueur d'onde du visible. Il sera donc licite, dans le cadre de ce travail, de décrire la lumière comme un ensemble de rayons lumineux se propageant en ligne droite et obéissant à la loi de Snell-Descartes lors de la traversée d'un dioptre.

Astigmatisme.

Idéalement, l'image d'un point lumineux vue au travers d'un système optique est exactement un point. Cela signifie que les rayons lumineux issus du point image se croisent en un point unique après leur traversée du système optique. On dit que le système est stigmatique (figure 2.5(a)). Si, au contraire, les rayons ne se croisent pas en un point unique, l'image du point original s'étale dans l'espace et devient floue. Le système optique est alors astigmatique (figure 2.5(b)).

En réalité, aucun système n'est rigoureusement stigmatique et l'image d'un point est toujours un peu floue.

Profondeur de champ.

C'est la distance le long de laquelle l'image est considérée comme nette. Rigoureusement, l'image est parfaitement nette lorsque l'image d'un point est un point. En pratique, un flou est toujours présent, provenant des intersections des rayons périphériques, qui se forment autour de l'image théorique du point objet. Le diaphragme, en éliminant les rayons périphériques, réduit la quantité d'intersections parasites et rend ainsi l'image plus nette. C'est pourquoi sa fermeture augmente la profondeur de champ (figure 2.6).

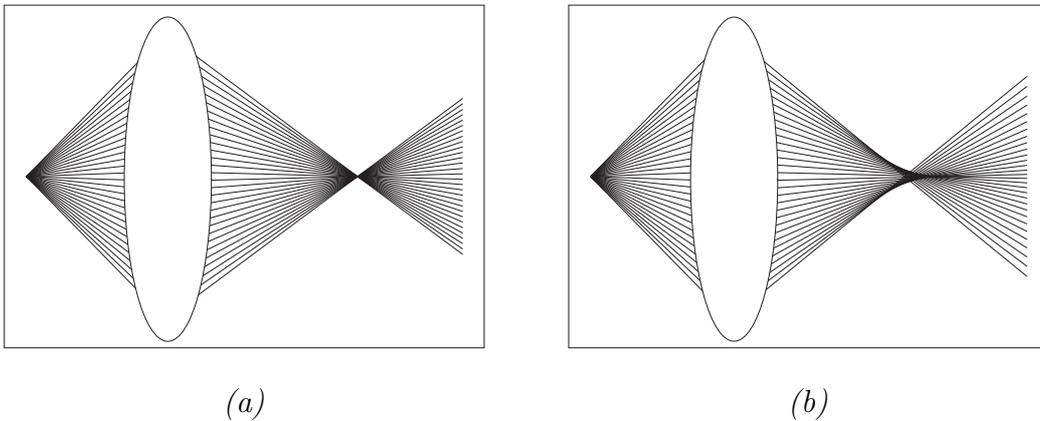


FIG. 2.5 – *Astigmatisme. La lumière va de gauche à droite. (a) Avec un système optique idéal, les rayons lumineux émergents issus d'un même point se croisent en un point unique. (b) Avec un système astigmaté, les rayons ne se croisent plus au même point. Dans ce cas, la netteté de l'image n'est jamais parfaite.*

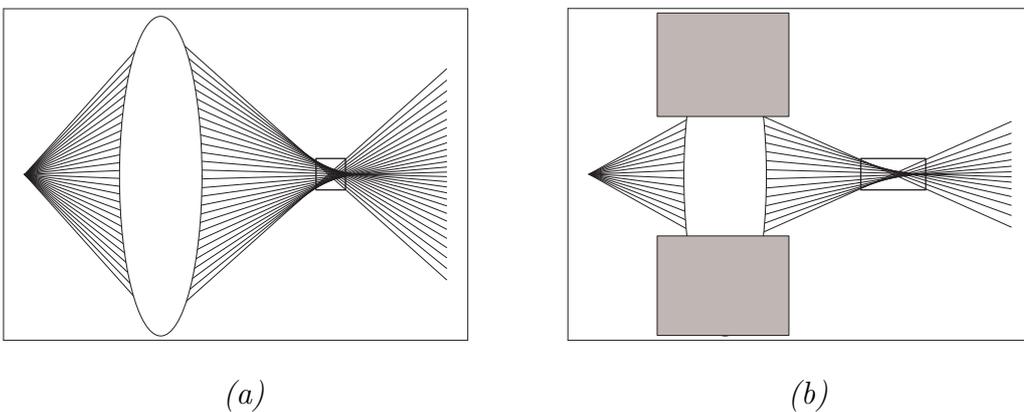


FIG. 2.6 – *Profondeur de champ. La lumière va de gauche à droite. La zone de netteté est le rectangle entourant la zone d'intersection des rayons émergents. Sa hauteur (la même dans les deux cas) détermine la netteté en limitant le flou autorisé, et sa longueur est la profondeur de champ. (a) Diaphragme ouvert. Les rayons externes élargissent l'image et raccourcissent la zone de netteté. (b) Diaphragme fermé. Les rayons externes sont éliminés et la zone de netteté est plus profonde. En contrepartie, l'image est moins lumineuse.*

L'objectif de la caméra est muni d'un diaphragme qui sera utilisé et simulé par la suite. Les très forts grossissements utilisés réduisent énormément la profondeur de champ et obligent donc à travailler à diaphragme plutôt fermé. En réduisant la surface de passage de la lumière, on réduit *ipso facto* la quantité de lumière arrivant sur la surface sensible de la caméra, *i.e.* sa matrice CCD. Cela explique la nécessité d'une source de lumière puissante.

L'astigmatisme et la profondeur de champ seront étudiés en détail dans le chapitre consacré à la reconstitution spatiale des sites de nucléation (chapitre 5).

Chapitre 3

Le Champagne, les fibres et les bulles.

Sommaire

3.1	Le Champagne.	32
3.1.1	Elaboration.	32
3.1.2	Composition chimique.	33
3.1.3	Saturation et sursaturation.	34
3.2	Types de nucléation.	36
3.2.1	Nucléation homogène.	38
3.2.2	Nucléation hétérogène.	40
3.2.3	Résumé.	42
3.3	Nucléation dans le champagne.	43
3.3.1	Nécessité d'une poche de gaz.	43
3.3.2	Emprisonnement des poches lors du versement.	44
3.3.3	Identification des sites.	47
3.4	Les fibres.	50
3.4.1	Géométrie externe.	50
3.4.2	Structure interne.	51
3.4.3	Diffusion dans la paroi de la fibre.	53
3.5	Chronologie détaillée de la naissance.	55
3.5.1	Grossissement de la poche de gaz.	56
3.5.2	Libération de la bulle.	58
3.5.3	Débuts de l'ascension.	59
3.6	Résumé.	62

3.1 Le Champagne.

3.1.1 Elaboration.

Le Champagne est un vin blanc effervescent issu de l'assemblage de trois vins tranquilles, deux cépages noirs (Pinot Noir et Pinot Meunier) et un cépage blanc (Chardonnay). Les proportions du mélange, propres à chaque maison, dépendent des qualités des cuvées des trois vins tranquilles et déterminent la personnalité du produit final.

Le *vin de base* (vin sans CO_2) est obtenu par filtration de l'assemblage stabilisé au froid. Ce vin est ensuite mis en bouteille après addition de la *liqueur de tirage*. Celle-ci est obtenue en ajoutant à du vin de base du sucre, des levures, et des adjuvants de remuage.

Les bouteilles contenant le vin de base (toujours tranquille), sont alors bouchées et stockées en cave pendant cinq à six semaines. C'est la *prise de mousse*, qui est une deuxième fermentation alcoolique ayant lieu en bouteille, et au cours de laquelle le vin devient effervescent. Le CO_2 est produit en accord avec le bilan de Pasteur :



Lorsque les sucres sont consommés, les levures meurent et sont dégradées par des enzymes (autolyse), ce qui dissout leurs constituants dans le vin. La durée de conservation d'un Champagne va de quinze mois minimum à plusieurs années, suivant les Champagnes (c'est le *vieillissement sur lies*). C'est au cours de ce processus, qui libère entre autres des protéines, des lipides et des composés aromatiques, que le Champagne acquiert ses propriétés organoleptiques.

Les bouteilles sont ensuite remuées pour faire descendre le dépôt de levures mortes dans le goulot qui est ensuite refroidi jusqu'à la formation d'un glaçon contenant les levures. Les bouteilles sont alors redressées et décapsulées, entraînant l'éjection du bouchon de glace et d'une partie du liquide (c'est le *dégorgement*) .

Enfin, le *dosage* est l'ajout d'une liqueur d'expédition pour compenser la perte de volume du dégorgement. Cette liqueur est composée de vieux Champagnes, d'antioxydants et de saccharose, dans des proportions dépendant de la qualité de Champagne qu'on souhaite obtenir (doux, brut, sec, demi-sec).

Le Champagne prêt, les bouteilles sont bouchées et muselées. Elles séjournent encore de un à trois mois en cave avant d'être commercialisées.

De plus amples détails sur cette élaboration peuvent être trouvées dans [2, 13].

3.1.2 Composition chimique.

Le Champagne est une solution acide ($pH \approx 3$). Sa composition précise varie suivant les terroirs et les années. Le tableau 3.1 reproduit la composition typique d'un vin de Champagne d'après Dussaud [14].

		Champagne
Fortes concentrations		
Ethanol		$\approx 12.5\%$
Glycérol		$\approx 5 \text{ g.l}^{-1}$
Acide tartrique		$\approx 2.5 - 4 \text{ g.l}^{-1}$
Acide lactique		$\approx 4 \text{ g.l}^{-1}$
Dioxyde de carbone (CO_2)		$\approx 10 - 15 \text{ g.l}^{-1}$
Sucres		$\approx 10 - 50 \text{ g.l}^{-1}$
Faibles concentrations		
Macromolécules :		
	Protéines	$\approx 5 \text{ mg.l}^{-1}$
	Polysaccharides	$> 200 \text{ mg.l}^{-1}$
Polyphénols		$\approx 100 \text{ mg.l}^{-1}$
Acides aminés		$\approx 0.8 - 2 \text{ mg.l}^{-1}$
Volatils (lactate d'éthyle, butanediol, etc.)		$\approx 700 \text{ mg.l}^{-1}$
Lipides		$\approx 10 \text{ mg.l}^{-1}$
Ions minéraux :		
	K^+	$200 - 450 \text{ mg.l}^{-1}$
	Ca^{2+}	$60 - 120 \text{ mg.l}^{-1}$
	Mg^{2+}	$50 - 90 \text{ mg.l}^{-1}$
	SO_4^{2-}	$\approx 200 \text{ mg.l}^{-1}$
	Cl^-	$\approx 10 \text{ mg.l}^{-1}$

TAB. 3.1 – *Composition chimique moyenne d'un vin de Champagne, d'après Dussaud [14].*

On note la forte concentration en éthanol, dont la faible tension de surface ($\sigma \approx 23 \text{ mN.m}^{-1}$ contre $\sigma \approx 72 \text{ mN.m}^{-1}$ pour l'eau) abaisse la tension de surface du Champagne à une valeur $\sigma \approx 47 \text{ mN.m}^{-1}$ [14].

On remarque également la présence de protéines, dont la structure doit être rappelée, étant donné leur rôle probable dans la modification de l'état de surface des bulles (chapitre 7). Les protéines sont de longues chaînes de résidus d'acides aminés. Généralement, du fait des liaisons hydrogènes entre acides, elles ont tendance à se replier sur elles-mêmes. Trois niveaux structurels se distinguent : (i) L'enchaînement des acides aminés forme la *structure primaire*. (ii) Un premier niveau de liaisons hydrogène regroupent des sous chaînes d'acides aminés en hélices (les *hélices α*) ou en plans (les *feuilletts β*), formant les *structures secondaires* de la molécule. (iii) Enfin, les structures secondaires peuvent se lier entre elles pour donner à la molécule sa forme globale, qu'on appelle sa *structure tertiaire*. La figure 3.1 illustre la structure secondaire d'une protéine typique.

Les protéines, et plus particulièrement les glycoprotéines, sont des molécules amphiphiles, et ont donc tendance à s'adsorber aux interfaces liquide-gaz. De ce fait, les protéines rencontrées par la bulle lors de son ascension vont se coller à sa surface et modifier l'écoulement du liquide autour de la bulle. Cette idée sera précisée dans la section 3.5.3 et exploitée au chapitre 7.

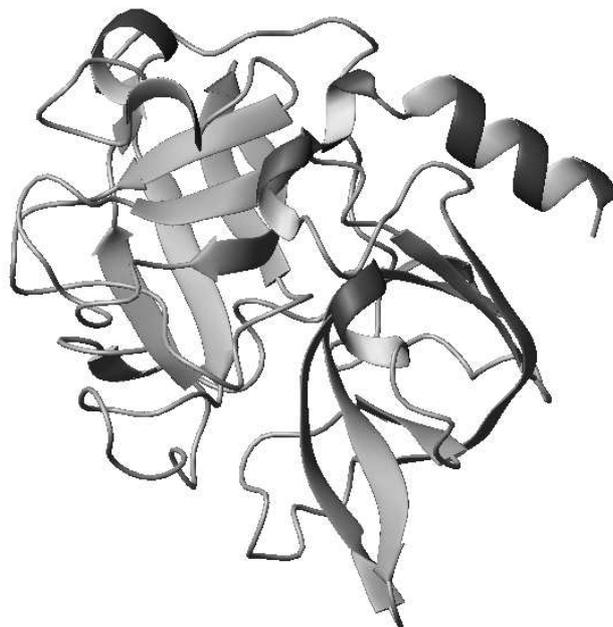


FIG. 3.1 – *Un exemple de protéine. Les structures secondaires —feuillets β (grande flèches plates sur la gauche) et hélices α (en haut à droite)— y sont visibles. Figure calculée par G. Moroy.*

La caractéristique la plus remarquable du Champagne reste cependant sa forte concentration en dioxyde de carbone (CO_2), responsable de son effervescence et qui le distingue donc des autres vins. Cette concentration très élevée est acquise au cours de la prise de mousse et la section suivante lui est consacrée.

3.1.3 Saturation et sursaturation.

Toute fermentation alcoolique produit de l'éthanol et un dégagement de CO_2 . La particularité de la prise de mousse est qu'elle a lieu en bouteille fermée. La capsule empêche le CO_2 de s'évaporer dans l'atmosphère et un équilibre s'établit entre sa concentration dans le liquide et sa pression de vapeur dans l'espace de tête, *i.e.* dans le col de la bouteille bouchée (loi de Henry). Compte tenu de la quantité de CO_2 créée par les levures,

la concentration d'équilibre dans une bouteille fermée est d'environ $12g.l^{-1}$ pour une pression de 6 atmosphères dans le col. Lorsque l'équilibre est atteint, le Champagne est dit saturé en CO_2 . En l'occurrence, saturation signifie équilibre, la particularité de celui-ci étant ses valeurs très supérieures à celles d'une situation standard.

Cet équilibre est rompu lorsque la bouteille est débouchée. La pression partielle du CO_2 redevient instantanément quasiment nulle (le CO_2 est presque absent de l'atmosphère) et réclame donc, toujours au nom de la loi de Henry, une concentration presque nulle du CO_2 dans le liquide. Avec ses $12g.l^{-1}$, le Champagne contient donc un fort excès de CO_2 qu'il doit perdre pour retrouver l'équilibre. Il est alors dit sursaturé en CO_2 .

Le Champagne, désormais en situation hors équilibre, a deux moyens pour éliminer le CO_2 : les échanges avec la surface et l'effervescence. Il a été montré [2] que l'essentiel du dégazage se fait par la surface. Le bullage ne représente qu'entre 15 et 30% du dégazage total [2].

Sursaturation. Pour quantifier la situation thermodynamique du Champagne, le paramètre de sursaturation s est défini comme l'excès relatif de concentration en CO_2 par rapport à une concentration de référence c_0 choisie comme la concentration d'équilibre du CO_2 pour une pression égale à celle du liquide P_L , le long d'une interface plane [15] :

$$c_0 = \frac{P_L}{H_e} \quad (3.2)$$

où H_e est la constante de Henry. La pression du liquide à sa surface est la pression atmosphérique : $P_L = P_a = 1atm$. Avec les données du tableau 2.1 du chapitre 2, c_0 est de l'ordre de $2g.l^{-1}$ (elle varie entre 1.5 et $2g.l^{-1}$ quand la température varie entre 10 et 20 °C). Le paramètre de sursaturation s'écrit donc :

$$s = \frac{c_l - c_0}{c_0} \quad (3.3)$$

où c_l est la concentration du CO_2 dans le liquide à un instant donné. En fait, Wilt [15] définit la sursaturation comme $s = c_l/c_0$, mais la définition de l'équation (3.3) semble se standardiser, c'est pourquoi elle a été adoptée ici. La différence entre les deux définitions est un simple décalage d'une unité.

Lien entre sursaturation, dégazage, et nucléation. Pour se faire une idée claire du rôle de s dans la nucléation et le dégazage, il faut anticiper un peu sur la suite. Il apparaîtra plus tard que les bulles naissent au sein de poches de gaz (CO_2) emprisonnées dans le liquide avec un rayon approximatif de $10\mu m$. La pression du CO_2 dans ces poches est la pression du liquide P_L à laquelle s'ajoute la surpression de Laplace-Young $2\sigma/R$, où R est le rayon de courbure de la poche de gaz. La concentration critique de bullage c_c —concentration en CO_2 au delà de laquelle le bullage a lieu— est la

concentration d'équilibre avec cette pression (la raison en sera donnée dans la section 3.5.1) : $c_c = (P_L + 2\sigma/R)/H_e \approx 1.1c_0$. La sursaturation critique de bullage vaut donc :

$$s_c = \frac{2\sigma}{P_L R} \approx 0.1 \quad (3.4)$$

La valeur 0.1 étant à prendre comme un ordre de grandeur puisque s_c dépend rigoureusement du rayon R de la poche de gaz.

Une boisson gazeuse sucrée standard a un coefficient d'environ $s \approx 2$. Le champagne atteint $s \approx (12 - 2)/2 = 5$ à l'ouverture de la bouteille. Le paramètre de sursaturation décroît au fur et à mesure du dégazage. Il devient critique quand le bullage s'arrête ($c_l = c_c$), puis devient négatif et tend vers -1 (pour la valeur d'équilibre avec l'atmosphère $c_l \approx 0$) tandis que le dégazage se termine par la surface uniquement. La figure 3.2 illustre le lien entre la concentration en CO_2 dans le coeur de phase, celle près de la poche, le paramètre de sursaturation, et le bullage.

Résumé. Le tableau 3.2 résume l'évolution de s et des modes de dégazage correspondants.

s	$5 > s > s_c$	$s = s_c$	$s_c > s > -1$	$s = -1$
Mode de dégazage	Surface libre ($\approx 80\%$) Bullage ($\approx 20\%$)	Arrêt du bullage	Surface libre uniquement	Arrêt complet (Equilibre atteint)
	→ Temps			

TAB. 3.2 – Evolution du paramètre de sursaturation s dans le temps et des différents modes de dégazage. $s_c = 2\sigma/H_e R \approx 0.1$ est la sursaturation critique de bullage.

On ne s'intéresse dans ce travail qu'à la création de bulles, c'est-à-dire uniquement aux valeurs de sursaturation $s > s_c$.

Avant de revenir sur le Champagne, la section suivante rappelle les mécanismes possibles de création d'une bulle dans un liquide sursaturé.

3.2 Types de nucléation.

La nucléation est la création d'une bulle de gaz dans une phase liquide. Cela implique la séparation des molécules du liquide et donc un apport d'énergie.

La nucléation est dite homogène si elle a lieu au sein de la phase liquide, et hétérogène si elle est aidée par le contact avec un corps solide.

La nucléation hétérogène peut être favorisée par la préexistence d'une poche de gaz. Suivant l'existence et la taille de la poche, on parle de nucléation hétérogène classique

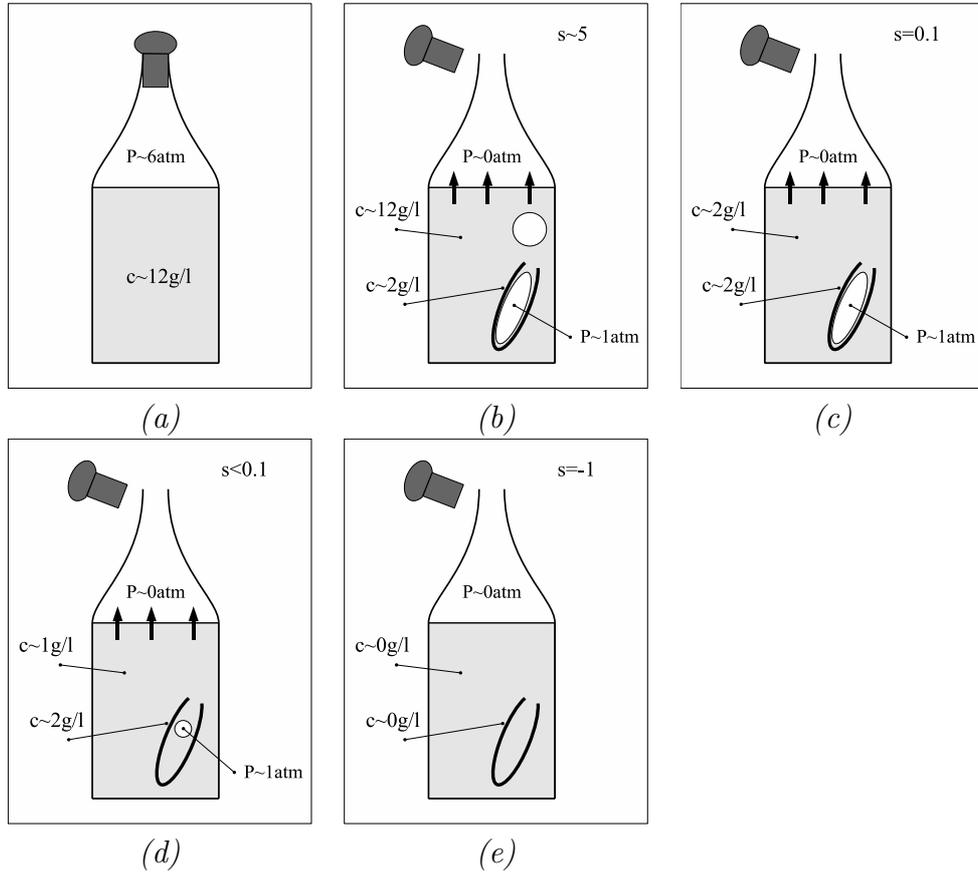


FIG. 3.2 – Sursaturation et nucléation. (a) La bouteille est fermée, le Champagne est saturé en CO_2 . (b) La bouteille est ouverte. La pression partielle du CO_2 devient quasi nulle dans l'espace de tête, le Champagne devient sursaturé ($s \approx 5 > -1$), le bullage s'établit. (c) La concentration dans le coeur de phase devient égale à celle imposée par la poche de gaz, la sursaturation devient critique ($s = s_c \approx 0.1$) et le bullage s'arrête. (d) Le dégazage continue par la surface, la concentration dans le coeur de phase diminue et la poche de gaz se résorbe ($s < s_c$). (e) L'équilibre est rétabli conformément à la pression partielle du CO_2 , la concentration est nulle partout ($s = -1$). Les flèches noires symbolisent le dégazage par la surface. La pression P indiquée fait référence à la pression partielle du CO_2 , elle est donc presque nulle dans l'atmosphère.

(pas de poche), pseudo classique (petite poche), ou non classique (grosse poche). Les sections suivantes précisent ces différentes notions.

3.2.1 Nucléation homogène.

Considérons une solution de dioxyde de carbone. Une bulle contient, sous forme gazeuse, des molécules du soluté (CO_2) et du solvant (H_2O). Par la suite, les indices L et G signifieront respectivement l'état liquide et gazeux.

Rayon critique.

A température constante, le système tend à minimiser son énergie libre [16] :

$$\Delta F = \sigma \Delta S - (P_G - P_L) \Delta V + \sum_i^{\text{constituants}} (\mu_G^i - \mu_L^i) \Delta n_G^i \quad (3.5)$$

L'accroissement de surface et de volume pour une création *ex nihilo* de la bulle sont simplement sa surface et son volume : $\Delta S = 4\pi R^2$ et $\Delta V = 4\pi R^3/3$. Par ailleurs, en considérant les phases gazeuses des constituants i comme des gaz parfaits, il vient : $\Delta n_G^i = P_G^i \Delta V / \mathfrak{R}T$ (on suppose applicable la thermodynamique d'équilibre). Les potentiels chimiques, en vertu de la relation de Gibbs-Duhem [16], dépendent uniquement de la pression et de la température. La température étant constante et la pression, hors équilibre dynamique, étant déterminée par la loi de Henry, les potentiels chimiques peuvent en première approximation être considérés comme indépendants de R . Dans ces conditions, l'énergie libre devient :

$$\Delta F = 4\pi\sigma R^2 - \frac{4}{3}\pi R^3 \left((P_G - P_L) + \sum_i^{\text{constituants}} \frac{\Delta\mu^i}{\mathfrak{R}T} P_G^i \right) \quad (3.6)$$

Elle suit donc une loi en $R^2 - R^3$ dont l'allure est donnée sur la figure 3.3. Une barrière énergétique à la nucléation W_{hom} y apparaît, atteinte pour un rayon critique R_C . Le système tendant à réduire son énergie libre, il s'ensuit que les bulles de rayon inférieur à R_C se résorberont spontanément, tandis que celles de rayon supérieur à R_C s'épanouiront.

Le rayon critique est celui pour lequel la dérivée de l'énergie libre s'annule. Lorsqu'il est atteint, les molécules des constituants cessent de sortir de la bulle et commencent à y pénétrer. Cela signifie que les potentiels chimiques s'équilibrent pour chaque constituant : $\Delta\mu^i = 0$. En dérivant l'équation (3.6) par rapport à R et en annulant, l'expression du rayon critique est obtenue :

$$R_C = \frac{2\sigma}{P_G - P_L} \quad (3.7)$$

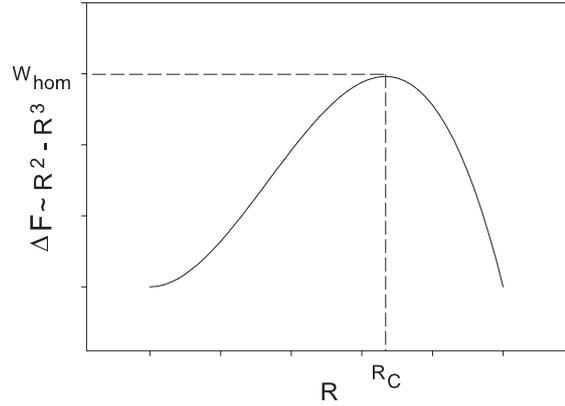


FIG. 3.3 – Allure de la fonction $R^2 - R^3$ qui représente qualitativement l'énergie libre en fonction du rayon. On y constate l'existence d'un maximum W_{hom} correspondant à un rayon critique R_C pour lequel la diminution d'énergie fait croître le rayon, i.e. favorise l'expansion de la bulle.

La pression gazeuse totale est la somme des pressions des constituants, en l'occurrence le CO_2 et la vapeur d'eau : $P_G = P_G^{CO_2} + P_G^{H_2O}$.

La pression du CO_2 est déterminée, hors équilibre dynamique, par la loi de Henry : $P_{CO_2} = H_e c_l$, ce qui se réécrit, grâce à l'équation (3.2) définissant c_0 :

$$P_{CO_2} = \frac{c_l}{c_0} P_L \quad (3.8)$$

La pression gazeuse de l'eau dans un mélange binaire s'écrit [15, 17] :

$$P_G^{H_2O} = \eta P_{vap} \quad (3.9)$$

$$\eta = e^{\frac{V_m(P_L - P_{vap})}{RT} - \frac{c_0^{CO_2}}{c_0^{H_2O}}}$$

où P_{vap} est la pression de vapeur de l'eau pure, V_m le volume molaire de l'eau pure, et c_0^i sont les concentrations des constituants, définies comme dans l'équation (3.2). Le coefficient η , toujours inférieur à 1, marque l'effet du mélange sur le solvant pur. Le mélange fait donc baisser la pression de vapeur de l'eau. Par ailleurs, cette pression vaut 2 à 3 % de la pression atmosphérique [18]. Le produit ηP_{vap} est donc négligeable devant la pression du liquide P_L .

Les équations (3.8) et (3.9) permettent de réécrire l'équation (3.7) sous une forme plus simple :

$$R_C \approx \frac{2\sigma}{P_L s} \quad (3.10)$$

ce qui est en accord avec l'équation (3.4).

Lorsque les équilibres dynamique $P_G - P_L = 2\sigma/R_C$ et chimique $\Delta\mu = 0$ sont établis, l'équation (3.5) donne le travail à fournir pour créer une bulle de rayon R_C :

$$W_{hom} = \frac{4}{3}\pi\sigma R_C^2 \quad (3.11)$$

Ce travail est la quantité d'énergie devant être disponible localement dans la phase liquide pour permettre la nucléation homogène.

Taux de nucléation homogène.

Les fluctuations locales de densité induisent des fluctuations d'énergie au sein de la phase liquide. Une bulle apparaît spontanément si l'énergie devient localement supérieure à la barrière W_{hom} (équation (3.11)), autrement dit si les molécules du soluté se rassemblent en nombre suffisant pour créer un noyau gazeux de rayon supérieur au rayon critique R_C (équation (3.10)).

En mécanique statistique classique (non quantique), la probabilité d'occurrence d'un état d'énergie W pour un système en équilibre avec un réservoir thermique (ce qui permet de définir la température), est proportionnelle à la quantité $\exp(-W/k_B T)$ [19], où k_B est la constante de Boltzmann et T la température. $k_B T$ peut être interprétée comme l'unité naturelle d'énergie du système, son échelle énergétique, fixée par le contact avec le réservoir thermique.

Le nombre de germes gazeux autorisant la nucléation homogène par unités de volume et de temps s'appelle le taux de nucléation homogène J_{hom} . Il est proportionnel à la probabilité d'occurrence d'un état d'énergie locale W_{hom} et le calcul de sa valeur exacte peut être trouvé dans [15] :

$$J_{hom} = N \left(\frac{2\sigma}{\pi m} \right)^{\frac{1}{2}} e^{-\frac{W_{hom}}{k_B T}} \quad (3.12)$$

3.2.2 Nucléation hétérogène.

Dans ce cas, il faut ajouter à l'énergie (3.5) celle de la création des interfaces avec le solide. L'énergie libre devient donc :

$$\Delta F = \sigma \Delta S_{LG} + (\sigma_{SG} - \sigma_{SL}) \Delta S_{SG} - (P_G - P_L) \Delta V + \sum_{\text{constituants}} (\mu_G - \mu_L) \Delta n_G \quad (3.13)$$

Là encore, les équilibres chimique ($\mu_G = \mu_L$) et dynamique permettent de simplifier cette expression. L'équilibre dynamique est exprimé, d'une part par la loi de Laplace ($P_G - P_L = 2\sigma/R$), et d'autre part par la loi de Young ($\sigma_{SG} - \sigma_{SL} = \sigma \cos \theta$).

Exemple du plan solide. Pour illustrer concrètement le calcul de l'énergie requise pour la nucléation hétérogène, il faut choisir la forme du corps solide. Dans le cas simple du plan et en l'absence de gravitation, la poche de gaz créée est une calotte sphérique (figure 3.4). Dans ce cas, le volume et les surfaces créés s'écrivent respectivement $\Delta V = \pi R h^2 - \pi h^3/3$, $\Delta S_{LG} = 2\pi R h$, et $\Delta S_{SG} = \pi r^2$, où $r = R \sin \theta$ et $h = R(1 + \cos \theta)$ sont le rayon et la hauteur de la calotte (*cf.* figure 3.4).

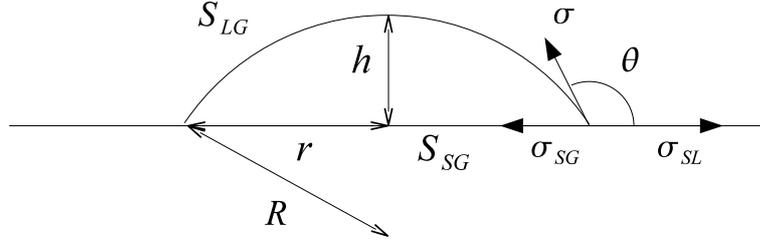


FIG. 3.4 – Notations pour le calcul de l'énergie minimum requise pour la nucléation hétérogène sur un plan solide.

Calculs faits, les quantités géométriques deviennent :

$$\begin{aligned}\Delta V &= \frac{\pi R^3}{3} (2 + 3 \cos \theta - \cos^3 \theta) \\ \Delta S_{LG} &= 2\pi R^2 (1 + \cos \theta) \\ \Delta S_{SG} &= \pi R^2 \sin^2 \theta\end{aligned}\tag{3.14}$$

En injectant les conditions d'équilibres chimique et dynamique, et les expressions géométriques (3.14) dans l'équation (3.13), l'énergie locale requise pour créer une poche de gaz en contact avec le plan est obtenue :

$$\begin{aligned}W_{het} &= W_{hom} \Phi_{het} \\ \Phi_{het} &= (2 - \cos \theta) \cos^4 \frac{\theta}{2}\end{aligned}\tag{3.15}$$

équation qui est plus compliquée que son analogue en nucléation homogène (3.11) car elle fait intervenir la géométrie du corps solide *via* la fonction Φ_{het} .

Taux de nucléation hétérogène.

Le taux de nucléation hétérogène a été calculé par Wilt [15] et prend la forme suivante dans le cas du plan :

$$J_{het} = N^{\frac{2}{3}} (1 + \cos \theta) \left(\frac{2\sigma\Phi_{het}}{\pi m} \right)^{\frac{1}{2}} e^{-\frac{W_{hom}\Phi_{het}}{k_B T}} \quad (3.16)$$

Le calcul analogue des fonctions Φ_{het} et J_{het} dans le cas d'une cavité conique est détaillé par Wilt [15] et ne sera pas répété ici. Les expressions sont plus compliquées mais les ordres de grandeur sont les mêmes, ce qui suffira pour conclure lors de l'application au cas du Champagne (section 3.3).

Types de nucléation hétérogène.

Classique. On parle de nucléation hétérogène classique lorsque la bulle est créée *ex nihilo* sur le corps solide.

Pseudo classique. La nucléation hétérogène est dite pseudo classique lorsqu'une poche de gaz d'énergie inférieure à W_{het} préexiste. La barrière énergétique à franchir s'en trouve réduite et la nucléation facilitée.

Non classique. Enfin, si une poche de gaz d'énergie supérieure à l'énergie de création de la bulle préexiste, le système évolue spontanément vers le grossissement de la bulle (la barrière énergétique est déjà franchie). On parle alors de nucléation hétérogène non classique.

3.2.3 Résumé.

Une classification des différents types de nucléation à été proposée par Jones *et al.* [20]. Le tableau 3.3 résume cette classification. Il est désormais possible de déterminer en connaissance de cause les mécanismes responsables de la nucléation dans le Champagne, ce qui fait l'objet de la section suivante.

Nomenclature	Type I	Type II	Type III	Type IV
Contact solide	non (homogène)	oui (hétérogène)		
Poche d'énergie W préexistante	non (classique)	non (classique)	oui $W < W_{het}$ (pseudo classique)	oui $W > W_{het}$ (non classique)

TAB. 3.3 – Classification des différents types de nucléation d'après Jones et al. [20].

3.3 Nucléation dans le champagne.

3.3.1 Nécessité d'une poche de gaz.

Dans cette section, les résultats précédents vont être appliqués au champagne pour en déterminer les mécanismes de nucléation impliqués.

Nucléation homogène classique. A la température ambiante, la pression de vapeur saturante du solvant (en l'occurrence considéré en première approximation comme de l'eau) vaut environ 2 à 3% de la pression atmosphérique [18] et est donc négligeable.

La pression dans le liquide est rigoureusement la somme du poids de l'atmosphère (pression atmosphérique) et de la colonne liquide dans la flûte, typiquement quelques centimètres. Une atmosphère représente le poids d'une colonne liquide d'environ 10m de hauteur. La surpression due aux quelques centimètres de liquide dans la flûte est donc négligeable et la pression du liquide sera considérée comme égale à la pression atmosphérique.

Dans ces conditions, la taille du rayon critique pour une sursaturation $s = 5$ peut être obtenue :

$$R_C \approx \frac{2\sigma}{P_a s} \approx \frac{2 \times 0.05}{10^5 \times 5} = 0.2 \mu m \quad (3.17)$$

ce qui donne, par application de l'équation (3.11), une barrière énergétique de création $W_{hom} \approx 10^{-14} J$. L'équation (3.12) permet d'évaluer le taux de nucléation homogène dans ce cas :

$$J_{hom} = 10^{38} e^{-2 \times 10^6} \approx 10^{-868551} \approx 0 \quad (3.18)$$

Il s'avère donc qu'en pratique la nucléation homogène est impossible dans le champagne.

A titre indicatif, pour que les fluctuations thermiques à température ambiante génèrent des noyaux gazeux de rayon supérieur à R_C , il faudrait une sursaturation d'au moins 1000 [15].

Nucléation hétérogène classique. La nucléation est supposée avoir lieu pour $100 < J_{het} < 10^6$ [15]. Dans ce cas, l'équation (3.16) permet de montrer que, pour une sursaturation $s \approx 5$, la nucléation n'est possible que pour un angle de contact θ d'au moins 175° . Le calcul analogue dans le cas d'une cavité conique est présenté par Liger-Belair [2] et détaillé par Wilt [15], et donne les même ordres de grandeur. De telles hydrophobicités ne se rencontrant pas dans une flûte de Champagne, la nucléation hétérogène classique y apparaît également impossible.

En conclusion, il apparaît, avant toute observation, que la présence de poches de gaz préexistantes est nécessaire à la production de bulles dans le Champagne. La section suivante explique leur origine.

3.3.2 Emprisonnement des poches lors du versement.

Anfractuosité du verre.

Le piégeage d'une poche de gaz lors du versement a été étudié par Bankoff [21] et plus récemment par Quéré [22] dans le cas d'une anfractuosité solide conique. La cavité doit satisfaire trois conditions pour piéger le gaz :

Condition géométrique. Dans le cas d'un cône de demi ouverture α (figure 3.5), l'angle θ que fait le liquide s'écoulant sur la cavité avec le matériau doit être supérieur à 2α sans quoi la langue liquide touche le fond du cône sans que le contact avec la paroi opposée ait lieu. Cela s'écrit $\alpha < \theta/2$ et montre que la cavité doit avoir une faible ouverture.

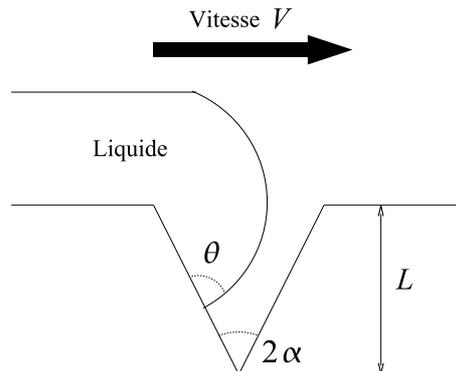


FIG. 3.5 – Condition de piégeage d'une poche d'air dans un cône. L'angle θ doit être supérieur à l'angle 2α , autrement le liquide mouille le fond du cône et le gaz s'échappe.

Condition dynamique. Il faut que la poche se referme avant que la cavité ne soit remplie de liquide. Le temps caractéristique de fermeture est le temps que met la lame liquide progressant à la vitesse V pour franchir l'ouverture L de la cavité : $\tau_{\text{ferm}} \approx L/V$.

Le temps de remplissage de la cavité, de hauteur L comparable à son ouverture, est celui que met la poche de gaz pour s'échapper sous l'effet de la gravité g et vaut : $\tau_{\text{temp}} \approx \sqrt{L/g}$.

La poche reste piégée si la cavité est refermée plus vite qu'elle ne se remplit, donc si $\tau_{\text{ferm}} < \tau_{\text{temp}}$, ce qui s'écrit encore $L < V^2/g$. Pour une vitesse de versement d'environ $V \approx 10\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$, la taille critique des anfractuosités vaut environ 1mm .

Condition thermodynamique. La situation d'emprisonnement est énergétiquement favorable si l'énergie nécessaire au piégeage est négative. Cette énergie s'écrit $\Delta F = (\sigma_{SG} - \sigma_{SL}) S_{SG} + \sigma S_{LG}$, où S_{SG} et S_{LG} sont les surfaces de contact du gaz respectivement avec le solide et le liquide. Compte tenu de la loi de Young ($\sigma_{SG} - \sigma_{SL} = \sigma \cos \theta$) et du fait que l'anfractuosité est étroite ($S_{SG} \gg S_{LG}$), la condition de piégeage devient $\cos \theta < 0$, soit $\theta > 90^\circ$. La surface solide doit donc être hydrophobe.

Les études effectuées sur une anfractuosité du verre montrent donc que le piège doit être étroit, profond, d'ouverture inférieure au millimètre, et hydrophobe.

Capillaire hydrophile.

Anticipant un peu sur les résultats de la section suivante, voyons comment il convient de modifier les conditions de piégeage dans le cas de tubes hydrophiles longs d'un dixième de millimètre et larges d'une vingtaine de microns.

Les notations sont celles de la figure 3.6. Le tube étant supposé hydrophile, l'angle θ est petit, voire nul s'il y a mouillage total. Dans la discussion qui suit, z représentera la hauteur de liquide, en prenant pour origine la base du tube de longueur L . Les valeurs extrêmes de z sont donc 0 et L .

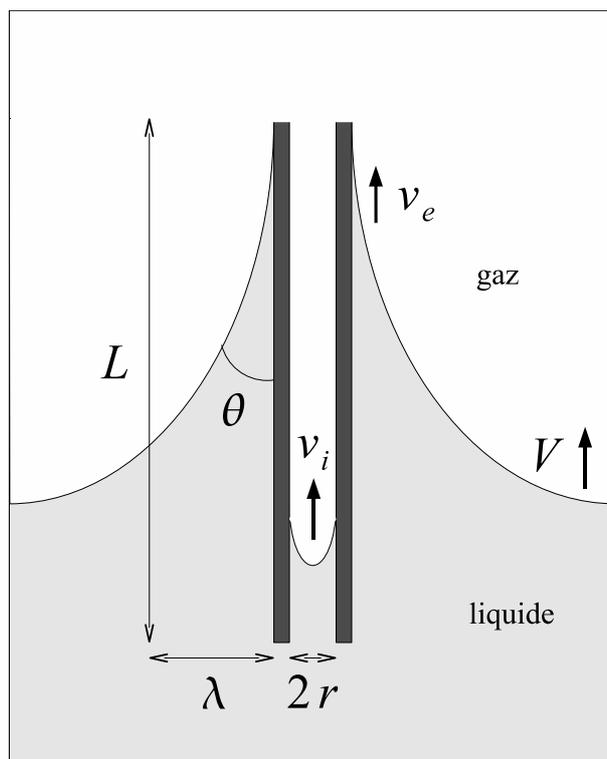


FIG. 3.6 – Condition de piégeage d'une poche de gaz dans un tube. Le piège se referme si le liquide extérieur arrive en haut avant le liquide intérieur. La vitesse V est la vitesse de versement du liquide dans la flûte.

On considèrera qu'une poche de gaz peut être piégée si le tube est immergé avant

de s'être rempli par capillarité, c'est-à-dire si le liquide extérieur arrive en haut avant le liquide intérieur.

Temps de remplissage. La vitesse du liquide à l'intérieur du tube peut être évalué en équilibrant la force capillaire motrice $2\pi r\sigma \cos\theta$ et la force visqueuse résistante $\mu(v_i/2r)2\pi rz = \pi\mu v_i z$. Un calcul exact [23] donne le coefficient $8\pi\mu v_i z$. En écrivant $zv_i = z\partial z/\partial t = 0.5\partial z^2/\partial t$, l'intégration donne la loi de Washburn dont on tire le temps requis par le liquide pour parcourir la hauteur L du tube :

$$t_r = \frac{2\mu L^2}{r\sigma \cos\theta} \quad (3.19)$$

Temps d'immersion. A l'extérieur du capillaire, le liquide est aussi tiré vers le haut par la capillarité, mais le frein visqueux $\mu(v_e/\lambda)2\pi rz$ est moins efficace car la largeur moyenne du ménisque λ est plus grande que le rayon du tube. L'équilibre donne une vitesse $v_e \approx \sigma\lambda/\mu L$ de l'ordre du mètre par seconde. Le liquide arrive donc très rapidement à l'extrémité du capillaire, mais du fait de l'étroitesse du ménisque, la quantité de liquide ne suffit pas à refermer le piège.

On considèrera donc que la poche de gaz peut être piégée si le tube est complètement immergé, soit si $t_i = L/V < t_r$ (temps d'immersion inférieur au temps de remplissage). Cette condition fournit celle que le rayon du capillaire doit satisfaire pour piéger une poche de gaz :

$$r < \frac{2\mu LV}{\sigma} \quad (3.20)$$

où l'on a posé $\cos\theta \approx 1$ (capillaire très hydrophile). Pour un tube de longueur $L = 100\mu m$ et une vitesse de versement standard $V = 10cm.s^{-1}$, l'application numérique donne un rayon critique d'environ $0.7\mu m$, qui est inférieur d'un ordre de grandeur au rayon des tubes observés dans la réalité, qui seront décrits dans la section suivante.

Discussion. Il est probable que dans le calcul qui précède, la vitesse de remplissage est largement surévaluée. En effet, l'aplatissement du ménisque interne lors du mouillage augmente certainement les frottements visqueux, qui devraient être évalués en fonction de l'épaisseur du ménisque $\mu v_i/e$, plutôt qu'avec le diamètre du tube $\mu v_i/2r$. En cas de mouillage total, il peut même y avoir formation d'un film précurseur de quelques nanomètres d'épaisseur, dont la longueur ne serait pas négligeable devant celle du tube, et dont l'extrême finesse serait susceptible de ralentir, par viscosité, la progression du liquide [9].

D'autre part, il est vraisemblable que les tubes ne sont pas tous verticaux. On peut donc [24] pencher le tube d'un angle α , ce qui diminue la longueur d'immersion L qui devient $L \cos\alpha$, ce qui fournit une valeur moyenne $2L/\pi \approx L/2$ si l'on considère que tous

les angles sont autorisés. Calculs faits, le rayon critique est ainsi *multiplié* (contrairement à ce que l'équation (3.20) laisse croire) par environ 2 en moyenne. Cette correction améliore l'ordre de grandeur, mais reste insuffisante.

La formule (3.20), si elle sous estime le rayon critique de piégeage d'au moins un ordre de grandeur, reste néanmoins intéressante qualitativement car elle montre l'importance de la vitesse de versement, qui est le seul paramètre aisément maîtrisable. Il apparaît que le rayon augmente avec la vitesse, ce qui signifie que plus on verse lentement, plus on restreint le nombre de sites autorisés à piéger une poche, et moins on aura de bulles dans la flûte. Cette prédiction se vérifie très facilement dans la pratique : en versant le champagne très lentement, la sélection de sites plus étroits que la moyenne limite l'apparition des bulles, tandis qu'en le versant rapidement, l'activation des sites larges provoque une effervescence plus importante.

La nécessité de la présence d'une poche de gaz et les conditions de son emprisonnement ayant été examinées, il faut à présent tâcher d'identifier par l'observation les sites responsables de la nucléation.

3.3.3 Identification des sites.

Imperfections du verre.

La nucléation dans les anfractuosités de la paroi du verre n'a jamais été observée durant ce travail. Du fait de l'excellente qualité des verres modernes, elles n'existent pas à l'état naturel si l'on peut dire. En revanche, elles peuvent être créées artificiellement, par bombardement de sable à haute vitesse, par impact laser, ou par application d'une pointe de diamant [25], procédés très étudiés chez les fabricants de verres. Ces sites artificiels ne seront pas examinés dans ce travail.

Cristaux de tartre.

Les ions tartrate et bitartrate du vin réagissent avec certains cations minéraux (potassium et calcium) pour former des sels tartriques, lesquels peuvent précipiter et former un dépôt dur de cristaux de tartre. Ces cristaux peuvent servir de germes et favoriser la nucléation (figure 3.7). D'après nos observations, ces sites de nucléation cristallins représentent environ 5 à 10% des sites actifs dans une flûte standard. Les poches de gaz ne sont pas toujours visibles et il est possible qu'il s'agisse d'une nucléation hétérogène pseudo classique. En raison de leur très faible occurrence, ces sites n'ont pas été étudiés dans ce travail.



FIG. 3.7 – Exemples de nucléation sur cristaux de tartre. Les cristaux sont identifiables à leur géométrie très irrégulière. Ils représentent entre 5 et 10% des sites observés.

Fibres.

La majorité des sites de nucléation observés (entre 90 et 95%) sont des particules tubulaires creuses ayant emprisonné une poche de gaz. La figure 3.8 en montre quelques unes telles qu'on les observe à la caméra. Dans la suite de ce travail, ces particules seront appelées les fibres, en raison de leur aspect longiligne et de leur composition, laquelle sera détaillée dans la section suivante. Les poches de gaz piégées apparaissent comme des taches sombres à l'intérieur des fibres (figure 3.8).

Les dimensions de ces poches de gaz (environ $100 \times 20 \mu m$) sont au moins dix fois inférieures à la longueur capillaire dans le Champagne (environ $2.2 mm$), ce qui justifie l'abandon de l'intervention de la gravitation dans les conditions de piégeage des poches de gaz lors du versement.

Les dimensions des poches de gaz prisonnières sont sensiblement identiques à celles des fibres qui les composent, c'est-à-dire bien supérieures à l'échelle du rayon critique de nucléation classique. Les observations permettent donc de trancher entre les nucléations hétérogènes pseudo classique et non classique en faveur de la nucléation non classique.

Les fibres de cellulose sont présentes partout dans nos vêtements, sur les chiffons, dans les papiers hygiéniques (de type Sopalín), bref dans nombre d'objets utilisés quotidiennement. Ceci explique leur très grande abondance dans l'atmosphère sous forme de particules de poussière, qui se déposent à la surface de tout objet entreposé, en particulier les verres utilisés pour le Champagne. Les fibres rencontrées dans la nucléation ont principalement pour origine l'atmosphère et les chiffons utilisés pour essuyer les flûtes.

Du fait de leur extrême légèreté et des frottements avec la surface du verre, certaines fibres restent collées à la paroi de la flûte. Cette immobilité est une condition *sine qua non* de leur observation à la caméra. Toutefois, le versement et la nucléation ont bien souvent raison de cette adhérence précaire et l'on observe le plus souvent les fibres actives descendant lentement le long de la paroi (une fibre peut couramment mettre 15 à

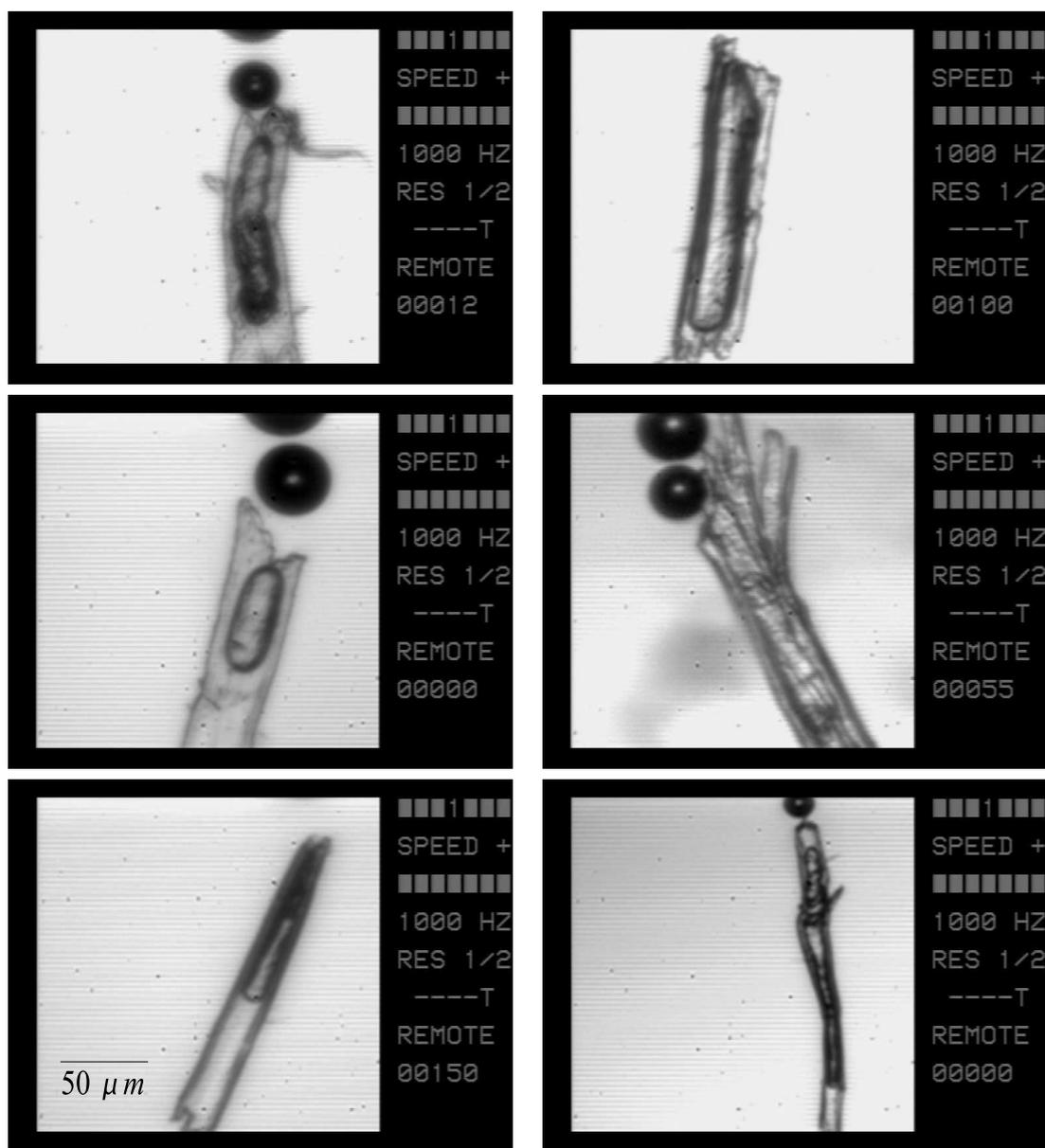


FIG. 3.8 – Exemples de nucléation dans des fibres telles qu’elles sont vues à la caméra. Elles représentent 90 à 95% des sites observés. Les poches de gaz emprisonnées apparaissent clairement sur les clichés.

20 minutes pour atteindre le fond d'une flûte). Cette lenteur n'interdit pas l'observation, mais nécessite un suivi et donc des réglages fréquents. Quelques rares fibres restent accrochées à la paroi pendant toute leur activité. Certaines autres, au contraire, virevoltent librement dans le liquide et restent inobservables à la caméra.

En résumé, la nucléation dans le champagne est pour l'essentiel une nucléation hétérogène non classique, *i.e.* de type IV dans la classification de Jones *et al.* [20] résumée dans le tableau 3.3. Les poches de gaz nécessaires sont piégées dans des fibres de cellulose de dimensions décimillimétriques. Il importe donc de mieux connaître les fibres, dans leur structure et leurs propriétés physiques. La section suivante s'attache à les présenter en détail.

3.4 Les fibres.

3.4.1 Géométrie externe.

Les fibres observées à la caméra (figure 3.8) apparaissent grossièrement comme des tubes creux, plus ou moins réguliers, d'une longueur pouvant aller de quelques dizaines de microns à environ deux millimètres. Dans les fibres les plus longues, les poches de gaz dépassent rarement deux ou trois centaines de microns, et même quand c'est le cas, aucune poche dont l'amplitude de variation dépasse $100\mu m$ n'a été observée. De ce fait, la présence de fibres longues contenant plusieurs poches est courante. Le diamètre apparent des fibres et donc des poches, varie de 10 à $50\mu m$. La cavité centrale de la fibre s'appelle le *lumen*, et l'épaisseur des parois de la fibre varie autour de $5\mu m$.

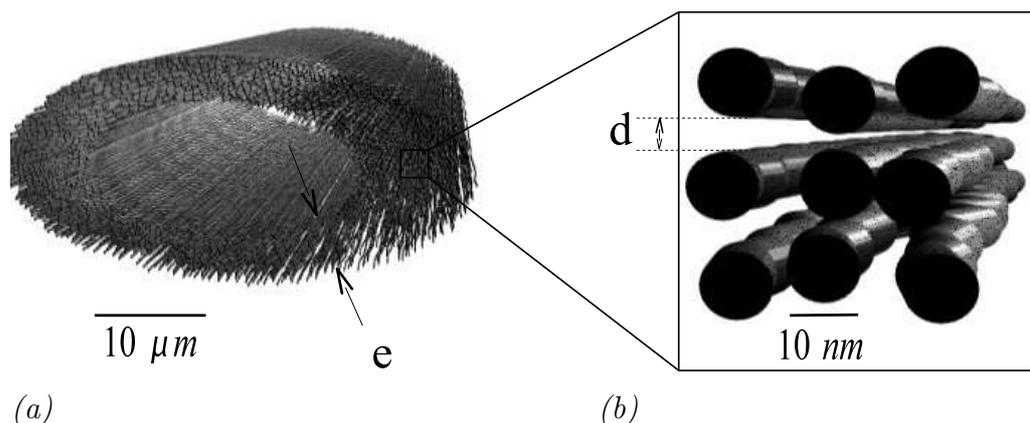


FIG. 3.9 – Structure d'une fibre de cellulose. La fibre (a) est constituée de nombreuses microfibrilles de cellulose entassées (b). Les microfibrilles ont un diamètre d'environ $10\ nm$ et une longueur $\approx 1\ \mu m$. e est l'épaisseur de la paroi de la fibre ($\approx 5\ \mu m$), d la distance entre les microfibrilles ($\approx 4\ nm$).

La caméra ne nous renseigne pas directement sur la troisième dimension, en sorte

que la forme spatiale des fibres est *a priori* inconnue. Les fibres de celluloses sont décrites comme des tubes aplatis, sans autre précision [26, 27]. La figure 3.9(a) illustre la représentation d'une fibre typique. Le chapitre 5 montrera comment il est possible d'obtenir indirectement des informations plus précises sur la géométrie spatiale des fibres.

3.4.2 Structure interne.

La cellulose.

La cellulose, constituant principal des végétaux, est une molécule bien connue. Une description en est donnée par exemple dans la référence [28]. C'est un polysaccharide, c'est-à-dire un polymère dont l'unité monomère est un glucose. En l'occurrence les monomères sont des β -D-glucopyranoses (figure 3.10) qui s'assemblent en de longues chaînes linéaires, unis par les positions 1 et 4 (figure 3.11) pour former la molécule de cellulose.

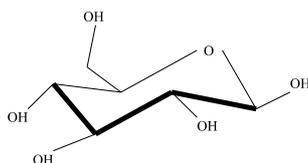


FIG. 3.10 – Monomère constituant de la cellulose : le β -D-glucopyranose.

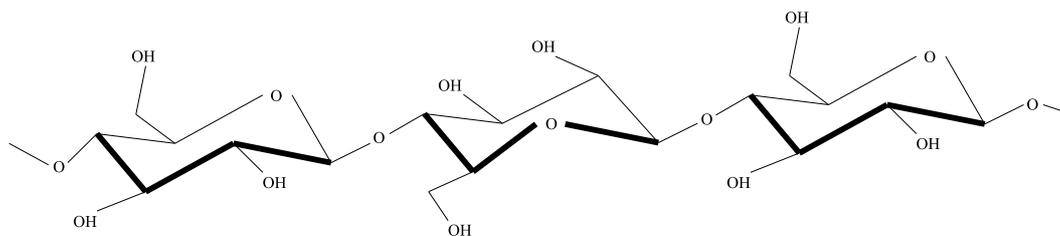


FIG. 3.11 – Structure d'une molécule de cellulose.

Les molécules forment de longs rubans qui se lient entre eux par des liaisons hydrogène (figure 3.12) pour former des structures compactes et rigides, les microfibrilles. Ces microfibrilles se présentent comme des bâtonnets d'une longueur micrométrique et d'un diamètre d'environ $10nm$. Elles sont les constituants élémentaires de la fibre, à son échelle.

Les microfibrilles s'entrelacent pour former la paroi plus souple de la fibre (figure 3.9). Cet empilement confère à la fibre ses propriétés mécaniques [29].

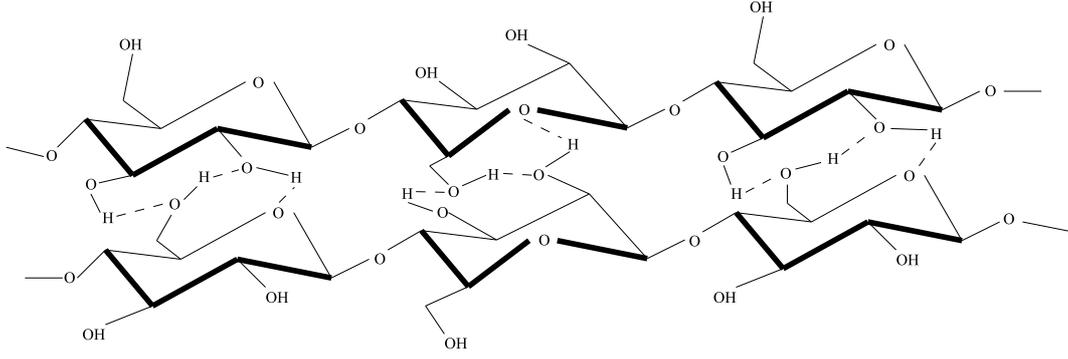


FIG. 3.12 – *Structure moléculaire d'une microfibrille : les molécules de cellulose sont liées par des liaisons hydrogène représentées en pointillés.*

Répartition des microfibrilles.

La structure interne des fibres de cellulose à l'échelle de la microfibrille a été étudiée en détail [27]. La paroi cellulosique est un matériau poreux, l'espace entre les microfibrilles pouvant contenir de l'air ou bien du liquide dans une proportion définie par la teneur en humidité [30, 31] :

$$\Omega = \frac{m_L}{m_C} \quad (3.21)$$

où m_L et m_C désignent respectivement la masse de liquide et celle de la cellulose (*i.e.* la masse des microfibrilles). On définit également la fraction de volume de cellulose comme le rapport du volume des microfibrilles V_C au volume total V (microfibrilles + espace poreux) :

$$\Phi = \frac{V_C}{V} \quad (3.22)$$

En appelant ρ_C et ρ_L les densités respectives des microfibrilles et du liquide, il est possible d'exprimer la fraction de volume en fonction de la teneur en humidité :

$$\Phi = \frac{1}{1 + \frac{\rho_C}{\rho_L} \Omega} \quad (3.23)$$

L'équation (3.23) illustre le fait intuitif que plus la fibre est imbibée (augmentation de Ω), plus l'espace entre les microfibrilles est important (baisse de Φ).

On suppose qu'une fibre noyée dans le Champagne est entièrement imbibée de liquide. Elle atteint alors son *point de saturation*, le FSP (pour Fiber Saturation Point) [30]. Des expériences récentes [32, 26] ont montré que la teneur en humidité Ω vaut environ $0.8g.g^{-1}$ lorsque le point de saturation est atteint. La densité des microfibrilles ρ_C vaut environ $1.55g.cm^{-3}$ [33] et celle du liquide ρ_L environ $1g.cm^{-3}$. Ainsi, la fraction volumique au FSP vaut $\Phi_{FSP} \approx 0.45$.

La géométrie d'empilement des microfibrilles est irrégulière et inconnue, mais il est possible d'obtenir un ordre de grandeur de la distance d qui les sépare en supposant une géométrie régulière, par exemple une répartition sur une grille carrée (figure 3.13).

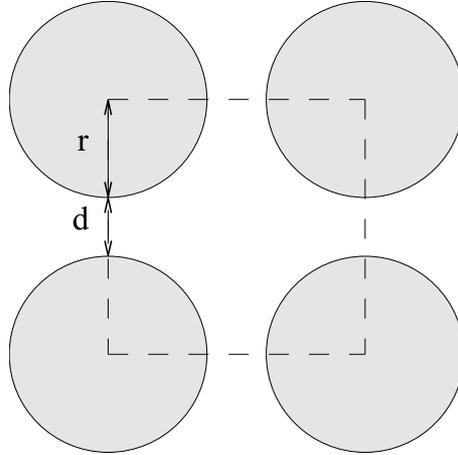


FIG. 3.13 – Notations pour le calcul de l'espace inter microfibrillaire d dans le cas d'une répartition régulière des microfibrilles sur une grille carrée. Les microfibrilles s'allongent dans le plan perpendiculaire à celui de la figure.

La figure 3.13 permet d'exprimer la distance minimale d qui sépare les microfibrilles, en fonction de leur rayon $r = 5nm$ et de la fraction de volume au FSP $\Phi_{FSP} = 0.45$. Etant donné la symétrie du problème, Φ_{FSP} est le rapport de la surface occupée par les disques dans le carré en pointillé (soit un disque entier) sur la surface du carré. On trouve :

$$d = r \left(\sqrt{\frac{\pi}{\Phi_{FSP}}} - 2 \right) \approx 3.2nm \quad (3.24)$$

Le calcul analogue pour une maille hexagonale est effectué dans la référence [27] et aboutit à $d \approx 4.2nm$, c'est-à-dire à peu près la même chose. Il faut retenir que l'espace poreux est du même ordre de grandeur que le rayon des microfibrilles, ce qui est illustré par la figure 3.9(b).

Connaissant la porosité de la paroi cellulosique, il est possible de déterminer le coefficient de diffusion des molécules de CO_2 à travers cette paroi, coefficient qui sera utile au chapitre 4.

3.4.3 Diffusion dans la paroi de la fibre.

Echelle de diffusion.

La diffusion dans un milieu poreux dépend de l'échelle d'observation (figure 3.14). Dans un espace inférieur à la taille des pores, une particule ne voit pas d'obstacle et

diffuse comme dans un liquide pur (figure 3.14(a)). En revanche, à plus grande échelle, les microfibrilles vont ralentir la diffusion et ainsi abaisser le coefficient de diffusion (figure 3.14(b)). Entre ces deux cas extrêmes, une taille intermédiaire apparaît pour laquelle le coefficient de diffusion est dans une région de transition. La diffusion de molécules de CO_2 est ici étudiée à l'échelle de la paroi de la fibre, large d'environ $5 \mu m$. Cette distance, environ 1000 fois supérieure à celle qui sépare les microfibrilles, est très supérieure à l'échelle de transition, ce qui autorisera l'utilisation du coefficient de diffusion à grande échelle.

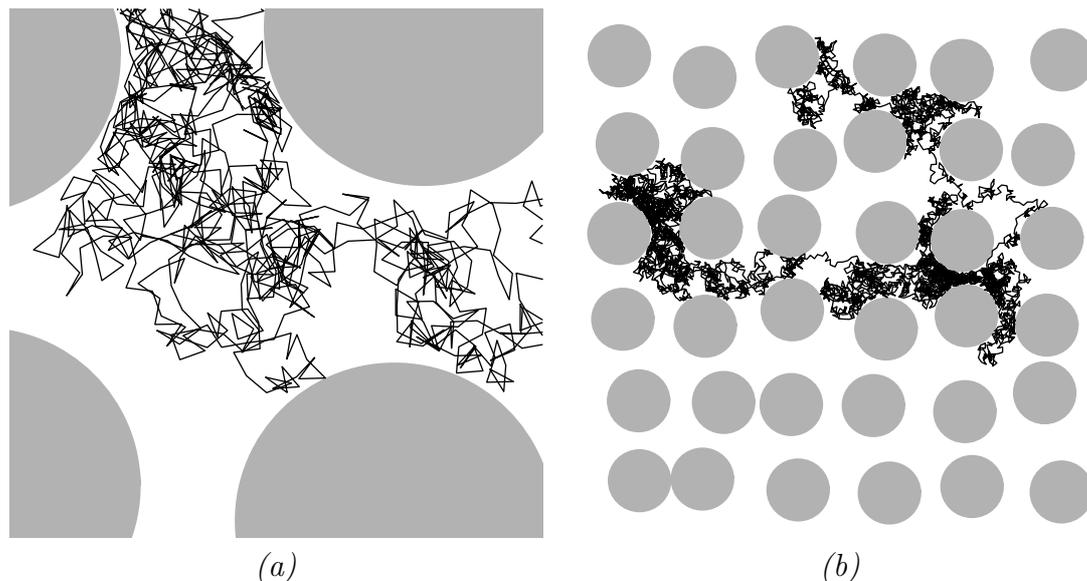


FIG. 3.14 – Les deux régimes de diffusion à travers la paroi de la fibre. (a) A petite échelle, la particule ne voit pas les microfibrilles et diffuse comme dans un liquide pur. (b) A grande échelle, les microfibrilles forment des obstacles à la diffusion de la particule et diminuent son coefficient de diffusion.

Diffusion anisotrope.

La paroi de cellulose possède une autre propriété importante : ses directions ne sont pas équivalentes (figure 3.15) car les microfibrilles sont très allongées et disposées parallèlement les unes aux autres. Par conséquent, la diffusion ne se fait pas identiquement dans toutes les directions de l'espace. Une particule diffuse différemment dans les deux directions principales imposées par la symétrie du système, *i.e.* suivant qu'elle évolue parallèlement (coefficient $D_{//}$) ou perpendiculairement (coefficient D_{\perp}) aux microfibrilles.

Une méthode a été mise au point [27] pour déterminer D_{\perp} , qui nous intéressera dans ce travail. En écrivant le coefficient général D_f comme la moyenne de ceux correspondant aux trois directions de l'espace, $D_f = (2D_{\perp} + D_{//}) / 3$, et en divisant par le coefficient de diffusion dans le liquide pur $D_0 \approx 1.49 \times 10^{-9} m^2.s^{-1}$ [34], il vient :

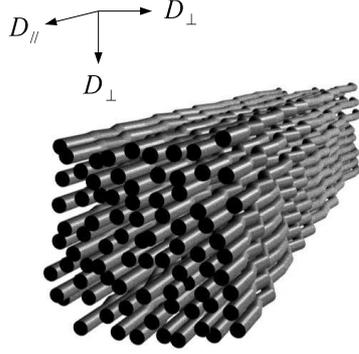


FIG. 3.15 – Anisotropie de la paroi de la fibre. Les microfibrilles étant beaucoup plus longues qu'épaisses, la paroi cellulosique ne diffuse pas de façon égale dans toutes les directions de l'espace. Du fait de la géométrie particulière présente, les diffusions perpendiculaire et parallèle à la direction des microfibrilles se font différemment, et il faut donc distinguer les coefficients de diffusion perpendiculaire D_{\perp} et parallèle $D_{//}$.

$$\frac{D_f}{D_0} = \frac{D_{\perp}}{D_0} \left(\frac{2 + \frac{D_{//}}{D_{\perp}}}{3} \right) \quad (3.25)$$

Le rapport D_f/D_0 a été mesuré expérimentalement au FSP et vaut environ 0.3 [26, 32]. Le facteur d'anisotropie $D_{//}/D_{\perp}$ a été mesuré pour une teneur en humidité $\Omega = 0.15$ et vaut environ 6.4 [35]. Lorsque l'imbibition Ω croît, l'espace entre les microfibrilles augmente, ce que confirme la diminution de la fraction de volume de cellulose Φ (équation (3.23)). En conséquence, un amoindrissement de l'anisotropie avec l'augmentation de la teneur en humidité est attendu. L'humidité $\Omega = 0.8$ étant ici plus importante que dans [35] ($\Omega = 0.15$), la valeur $D_{//}/D_{\perp} = 6.4$ est donc une limite supérieure. Lorsque $D_{//}/D_{\perp}$ varie de 6.4 (valeur maximale) à 1 (valeur minimale), D_{\perp}/D_0 varie entre 0.1 et 0.3 (équation (3.25)). Suivant [27], la valeur intermédiaire $D_{\perp}/D_0 \approx 0.2$ sera utilisée, ce qui donne finalement pour le coefficient de diffusion perpendiculaire : $D_{\perp} \approx 0.2D_0 \approx 0.3 \times 10^{-9} m^2 \cdot s^{-1}$

3.5 Chronologie détaillée de la naissance.

L'observation montre que le processus complet menant à la libération d'une bulle dans le coeur du liquide est complexe. Il commence par le grossissement de la poche de gaz prisonnière à l'intérieur de la fibre. Lorsque la poche de gaz devient trop grosse, elle éjecte une partie de son gaz tandis que la partie restante reprend sa taille initiale. Le détachement de la bulle, c'est-à-dire la rupture de la poche de gaz en deux parties, est très rapide, mais il est essentiel car sans lui la totalité de la poche de gaz serait éjectée et le Champagne serait un vin plat. La bulle nouvellement créée n'est pas encore tout à

fait libre : elle subit encore l'influence de la présence de la fibre du fait de la viscosité du liquide jusqu'à ce qu'elle soit suffisamment éloignée de la fibre.

La durée d'un cycle de naissance détermine la période du bullage et dure en moyenne $0.1s$, ce qui fournit des trains de bulles fréquentés à $10Hz$ en moyenne. En réalité, la fréquence dépend fortement de la concentration du CO_2 dans le liquide : l'observation révèle qu'elle décroît de ≈ 30 à $\approx 1Hz$ au fur et à mesure du dégazage. Elle dépend également des propriétés géométriques de la fibre, et la valeur $10Hz$ doit donc être considérée comme un ordre de grandeur. L'écllosion de la bulle et le retour à l'état initial sont des phénomènes très rapides, de l'ordre de la milliseconde, et la quasi totalité du temps de création de la bulle est due au grossissement de la poche dans la fibre, qui dure donc en moyenne $100ms$.

Les sections suivantes précisent ces notions.

3.5.1 Grossissement de la poche de gaz.

L'évolution de longues bulles dans des tubes plus ou moins fins (bulles de Taylor) a largement été étudiée, depuis l'article classique de Bretherton [36] jusqu'à des travaux plus récents [37, 38, 39, 40]. Les tubes sont en général circulaires ou polygonaux et constitués de matière lisse, le plus souvent du verre ou du plexiglas, et quasiment toujours millimétriques ou centimétriques. Les boissons gazeuses sont en général traitées sans l'aide des bulles de Taylor, puisqu'on y suppose toujours l'existence d'une anfractuosité dans le verre, le plus souvent conique ou cylindrique [2, 41]. En résumé : d'un coté, des bulles de Taylor dans des gros tubes de verre, de l'autre, des bulles qui grossissent directement au contact du liquide sursaturé. Il n'existe pas, à notre connaissance, de description de grossissement de poches de gaz dans des tubes poreux impliquant une entrée latérale du gaz dans la poche, *a fortiori* aux dimensions rencontrées en conditions réelles (de l'ordre de la dizaine de microns).

Jusqu'à présent, l'extrême petitesse du système en a interdit la reproduction artificielle, ce qui impose une étude *in vivo* du phénomène. La figure 3.16 montre une séquence de croissance typique d'une poche de gaz emprisonnée dans une fibre horizontale.

Le grossissement de la poche de gaz emprisonnée dans la fibre sera étudié en détail au chapitre 4, mais il est d'ores et déjà possible d'en expliquer les principes de base. La pression du CO_2 dans la poche est à peu près la pression atmosphérique (la surpression due à la tension de surface, qui est d'environ 10%, sera négligée dans ce paragraphe). La poche de gaz, *via* la loi de Henry, impose donc près d'elle une concentration en CO_2 proportionnelle à la pression atmosphérique, soit environ $2g.l^{-1}$. Cette concentration étant inférieure à la concentration dans le coeur du liquide (qui vaut $\approx 12g.l^{-1}$ au versement), il se crée un gradient de concentration du CO_2 et donc un flux de diffusion de CO_2 en direction de la fibre. En quelque sorte, celle ci impose un vide relatif autour

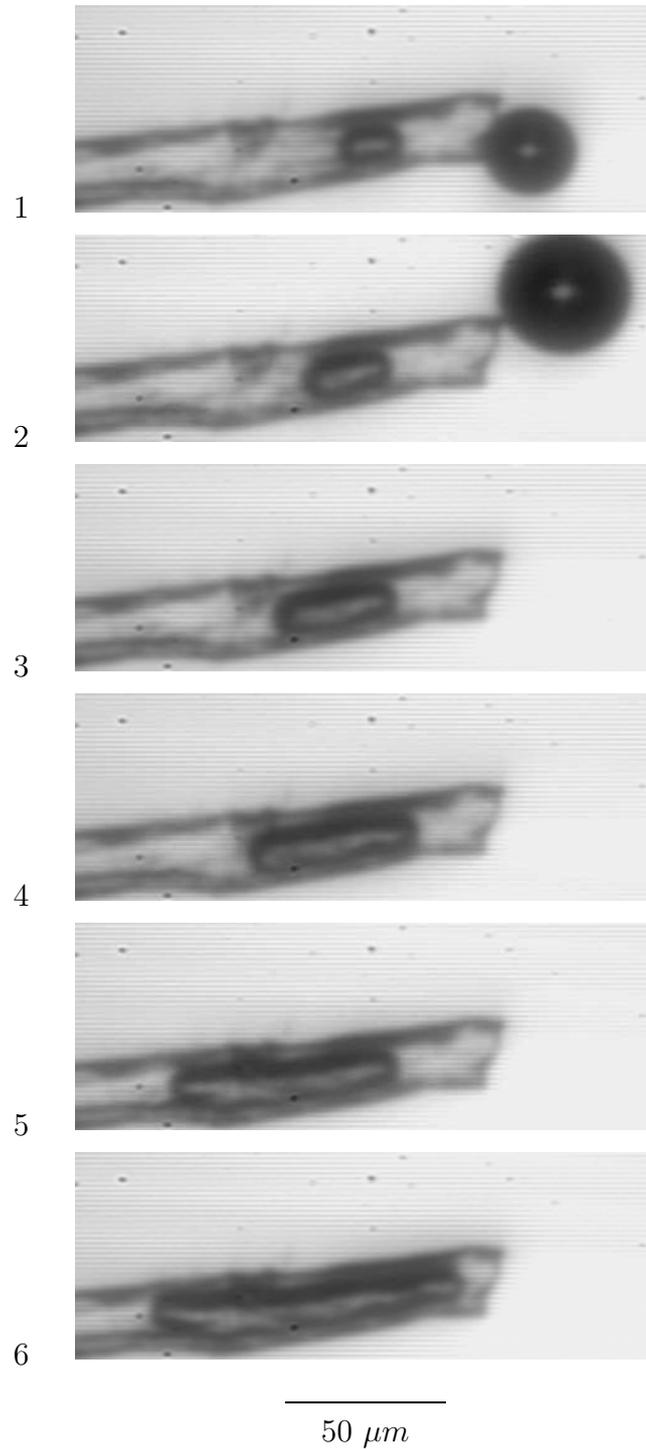


FIG. 3.16 – Séquence de croissance d'une poche de gaz dans une fibre. Les images sont séparées de 0.2 s (la séquence totale dure 1 s). Cette séquence a été enregistrée dans une flûte ayant eu le temps de dégazer, ce qui explique sa durée inhabituellement longue.

d'elle et crée ainsi un appel du CO_2 contenu dans la phase liquide. Le CO_2 arrivant sur la fibre diffuse à travers la paroi de cellulose et pénètre la poche, ce qui fait augmenter sa pression et lui impose de grossir pour retrouver la pression d'équilibre fixée par le liquide. Ce mécanisme, résumé dans la figure 3.17, met en lumière le rôle de la concentration en CO_2 dans le coeur de phase sur la fréquence de bullage et explique pourquoi le bullage s'arrête lorsque cette concentration devient inférieure à $2g.l^{-1}$, c'est-à-dire lorsque le paramètre de sursaturation s (équation (3.3)) devient inférieur à sa valeur critique s_c (équation (3.4)).

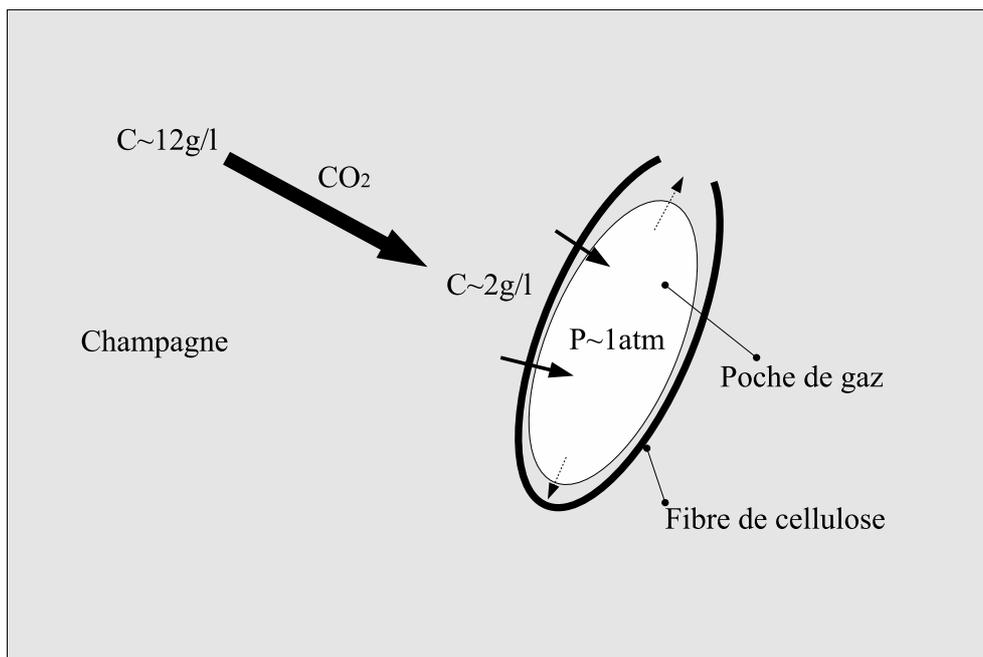


FIG. 3.17 – Principe du grossissement d'une poche de gaz piégée dans une fibre. Le gradient de concentration entre la concentration dans le liquide et celle imposée par la pression de la poche (loi de Henry) entraîne une migration du CO_2 vers la poche (grosse flèche noire). Le CO_2 entre dans la poche (petites flèches noires) et la fait grossir (flèches en pointillés).

3.5.2 Libération de la bulle.

La libération de la bulle est l'éjection d'une partie de la poche à l'extérieur de la fibre, suivie par sa rupture en deux parties, l'une à l'extérieur qui devient la bulle et l'autre à l'intérieur qui reprend sa taille initiale et recommence le cycle. L'observation montre que cette libération est un phénomène très rapide : il faut au plus quatre millisecondes à la poche pour se vider dans la bulle et moins d'une milliseconde pour la rupture. La résolution temporelle du matériel utilisé étant de l'ordre de la milliseconde, il est difficile de faire une description précise du phénomène.

Les observations révèlent toutefois une foule de comportements différents, nécessairement dépendants de la géométrie des fibres, qui possèdent des formes très diverses. L'interface de la poche semble parfois mobile, parfois non, les bulles sont créées avec des rayons initiaux variables.

La vidage de la poche à l'extérieur de la fibre peut se faire de différentes façons. Il serait intéressant d'en comprendre les mécanismes de base pour répondre à certaines questions. La poche qui se vide se déplace t-elle ? Se vide t-elle à vitesse constante, en accélérant ou en ralentissant ? Et pour quelles raisons ? Quels rôles tiennent les propriétés physiques du Champagne (densité, viscosité, *etc.*) et celles de la fibre ?

L'aspect le plus remarquable de la rupture est son extrême précision dans le temps. Le phénomène est cyclique, ce qui signifie que cette rupture n'est pas un accident. En l'espace de quatre millisecondes, les conditions de rupture se mettent en place et conduisent invariablement à la coupure de la poche juste avant qu'elle ne se vide complètement. Un scénario dans lequel la poche se viderait entièrement semble pourtant plausible. Ce scénario serait catastrophique pour le Champagne, puisque, chaque fibre ne créant qu'une seule bulle, il resterait un vin tranquille. On a d'ailleurs observé une fibre dans laquelle cela arrivait (et qui sera présentée au chapitre 6), mais il s'agit d'une exception. La règle est le détachement, régulier et précis. Il semble donc intéressant d'en comprendre le fonctionnement. La description précise des observations et quelques éléments de réponses aux questions qui précèdent feront l'objet du chapitre 6.

3.5.3 Début de l'ascension.

Les premiers stades de l'ascension de la bulle ne font plus vraiment partie de la nucléation. Cependant, la jeune bulle n'est pas encore libérée de l'influence de la fibre dont la proximité modifie l'écoulement autour de la bulle et donc sa course, *via* la viscosité du liquide. En fait, la bulle subit l'influence non seulement de la fibre, mais également de la paroi de la flûte dont la présence est inévitable puisqu'on ne peut filmer que des fibres qui y sont collées, et des autres bulles, également très proches les unes des autres en début de parcours, en particulier lorsque le site est très actif (figure 3.18).

Ce travail se focalisera sur l'état de surface des jeunes bulles, dans la continuité des travaux effectués par G. Liger-Belair au cours de sa thèse [2]. Une bulle de rayon constant montant dans une eau pure acquiert rapidement une vitesse stationnaire qui résulte de la compensation de la poussée d'Archimède par les forces de traînée visqueuses. Une telle bulle montant dans une solution de protéines ralentit jusqu'à une vitesse limite constante, inférieure à la vitesse d'une bulle identique en eau pure. La nouvelle vitesse est atteinte plus ou moins rapidement, suivant la concentration en protéines, mais sa valeur est indépendante de cette concentration (voir par exemple le travail de C. Ybert et J-M Di Meglio [42]). Ce résultat s'explique par l'adsorption des protéines à la surface de la

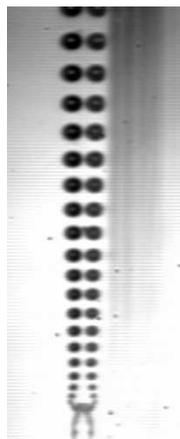


FIG. 3.18 – *Les premiers instants de l’ascension sur un site à haute fréquence, vu de profil. Les proximités de la fibre (pour les dernières bulles), des bulles les unes par rapport aux autres, et de la paroi de verre (qu’on devine grâce aux reflets), y apparaissent et vont influencer la vitesse des bulles.*

bulle. Ces dernières, poussées par l’écoulement vers l’arrière de la bulle, s’y accumulent et y amoindrissent la tension de surface. Il se crée donc un gradient de tension à l’interface de la bulle, responsable d’un courant de surface dirigé vers l’avant, où la tension est plus importante (effet Marangoni). L’équilibre qui résulte de la répartition irrégulière de protéines diminue (voire annule) la mobilité de l’interface, recréant ainsi les conditions aux limites d’une sphère solide (vitesse nulle sur la surface). Ainsi, la bulle se rigidifie en apparence au cours de son ascension (figure 3.19).

La situation dans un liquide carbonaté est plus complexe car la bulle ne cesse de grossir par absorption du CO_2 dissous et dilue ainsi le matériel tensioactif adsorbé. Les bulles de Champagne subissent ainsi deux effets antagonistes, la population par les protéines du vin et leur dilution par le grossissement, le premier augmentant la traînée et le second la diminuant. La mesure du coefficient de traînée de la bulle permet donc en principe de déterminer l’état de surface de la bulle et de déterminer lequel des deux effets l’emporte. G. Liger-Belair a appliqué cette méthode à l’ascension de la bulle dans une flûte de Champagne [3].

Le coefficient de traînée ne dépend que du rayon R et de la vitesse U de la bulle :

$$C_D = \frac{8gR}{3U^2} \quad (3.26)$$

où g est l’accélération de pesanteur. L’idée est de comparer cette valeur expérimentale aux deux valeurs extrêmes théoriques du coefficient de traînée. Celui d’une sphère totalement propre (sphère *fluide*, FS) s’écrit [43] :

$$C_{FS} = \frac{16}{Re} (1 + 0.15Re^{0.5}) \quad (3.27)$$

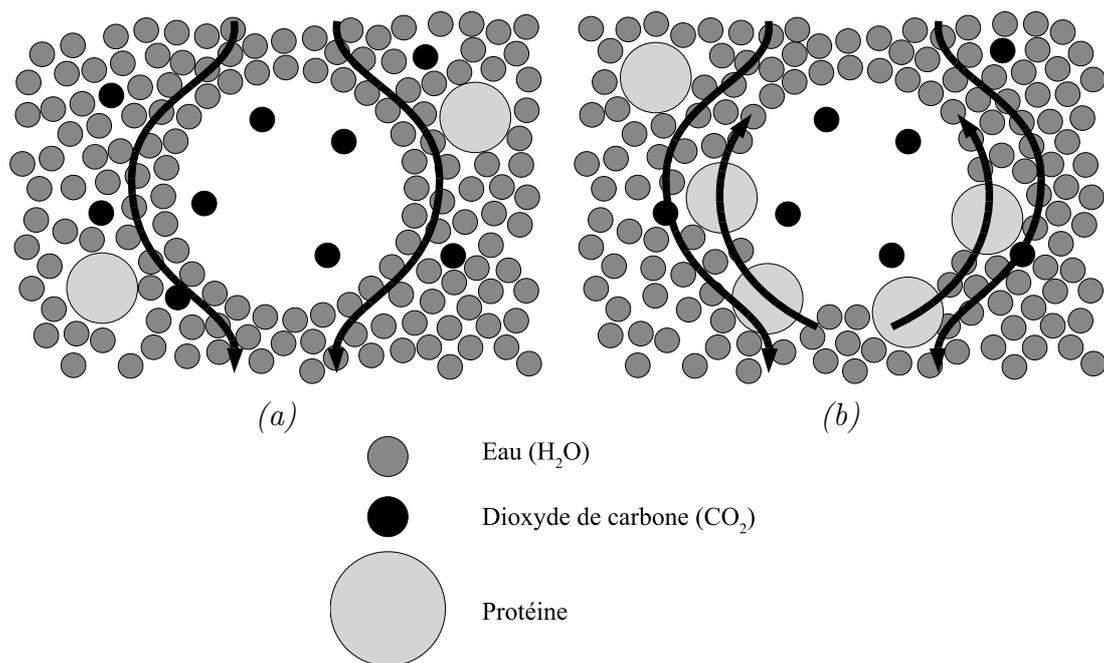


FIG. 3.19 – Variation du coefficient de traînée C_D avec l'état de surface de la bulle. (a) Surface propre : l'écoulement autour de la bulle se fait facilement, ce qui fait baisser le coefficient de traînée. (b) Surface contaminée par les protéines du vin : ces dernières, poussées à l'arrière de la bulle, y amoindrissent la tension de surface par rapport au front de la bulle, générant un courant de Marangoni à sa surface, dirigé vers l'avant de la bulle. L'équilibre s'établit entre l'écoulement et l'effet Marangoni, et peut annuler la mobilité de l'interface (bulle hydrodynamiquement rigide).

Tandis que celui d'une sphère encombrée (sphère *rigide*, RS) vaut [44] :

$$C_{RS} = \frac{24}{Re} (1 + 0.15Re^{0.687}) \quad (3.28)$$

où Re est le nombre de Reynolds de la bulle. Par ce moyen, G. Liger-Belair [3] a pu conclure que l'effet de dilution l'emporte, si bien que la bulle de Champagne se fluidifie au cours de son ascension malgré sa population par les protéines du vin. La figure 3.20 illustre ses résultats. A l'extrême gauche de la figure, le coefficient expérimental devient toutefois supérieur à sa valeur théorique maximale, ce qui est interdit et indique donc que des corrections doivent être apportées aux données concernant le début de course des bulles.

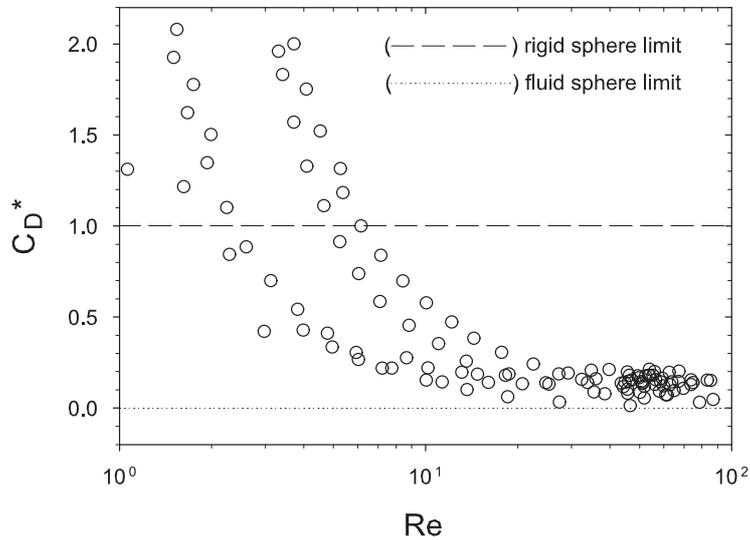


FIG. 3.20 – Résultats obtenus par Liger-Belair et Jeandet [3]. Le coefficient normalisé, qui représente l'écart entre le coefficient expérimental et celui de la bulle fluide, tend vers zéro, signe de la fluidification de la bulle. Des valeurs trop élevées apparaissent à l'extrême gauche de la courbe, révélant la nécessité des corrections (d'après des données fournies par G. Liger-Belair).

Le suivi des bulles sur les premiers millimètres de leur ascension ainsi que l'étude des corrections résultant de la proximité de la fibre, du verre et des autres bulles font l'objet du chapitre 7.

3.6 Résumé.

Dans ce chapitre, la composition du Champagne ainsi que les différents mécanismes possibles de nucléation ont été rappelés. La nucléation hétérogène non classique ayant

été identifiée comme le mécanisme effectif, les conditions de piégeage d'une poche de gaz ont pu être précisées, ce qui a permis de montrer l'importance décisive de la vitesse de versement dans la sélection des sites actifs et, par conséquent, dans l'obtention d'une flûte très ou peu effervescente.

Les fibres de cellulose ont été identifiées par l'observation comme les principaux agents de la nucléation dans le Champagne. A ce titre, elles ont été largement décrites sur les plans géométrique et structural. Le coefficient perpendiculaire de diffusion du CO_2 , indispensable dans l'étude du grossissement de la poche piégée dans la fibre, a également été déterminé.

Enfin, une chronologie descriptive des premiers instants de la vie d'une bulle a été esquissée, étayée par quelques données bibliographiques.

Il ressort de cette étude que le grossissement de la poche de gaz est l'étape la plus longue du cycle de production d'une bulle. Elle détermine en particulier la fréquence de bullage du site, ce qui lui vaudra d'être étudiée en détail au chapitre 4.

Par ailleurs, la géométrie tridimensionnelle des fibres étant mal connue et son importance étant confirmée par l'étude conduite au chapitre 4, le chapitre 5 est dédié à une étude détaillée de leur forme par une méthode tenant compte des contraintes expérimentales imposées.

Le caractère à la fois surprenant et essentiel du détachement de la bulle a été démontré. Ce point sera décrit au chapitre 6.

Enfin, la nécessité de prendre en compte la présence de l'environnement aux premiers instants de l'ascension a été expliquée, et le chapitre 7 sera consacré aux détails des corrections à apporter aux mesures effectuées sur le système.

Chapitre 4

Grossissement de la poche de gaz piégée dans la fibre.

Sommaire

4.1	Introduction.	65
4.2	Résultats expérimentaux.	66
4.3	Pression interne de la poche de gaz.	70
4.4	Variation du volume de la poche de gaz.	70
4.5	Transfert de masse du CO_2.	71
4.5.1	Cas d'une fibre imperméable au CO_2 .	72
4.5.2	Cas d'une fibre perméable au CO_2 .	73
4.6	Renouvellement du gaz autour de la poche.	75
4.6.1	Diffusion pure.	75
4.6.2	Diffusion-convection.	76
4.7	Paramètres et résultats.	76
4.7.1	Solution formelle.	76
4.7.2	Paramètres physiques.	77
4.7.3	Paramètres géométriques.	77
4.7.4	Résultats.	79
4.8	Résumé.	79
4.9	Conclusion.	81

4.1 Introduction.

Ce chapitre décrit en détail les événements survenant lors de la croissance de la poche de gaz à l'intérieur de fibres réelles de forme cylindrique.

4.2 Résultats expérimentaux.

Les fibres se présentent à l’observation comme des tubes plus ou moins réguliers. Certaines sont suffisamment régulières pour ressembler à des tubes droits et cylindriques. Dans ce chapitre, seules ces dernières seront considérées.

Les enregistrements permettent de mesurer les caractéristiques géométriques apparentes de la fibre et de la poche de gaz au cours du temps. Les longueurs sont directement mesurées à l’écran en pixels à l’aide du logiciel AUTOBULLE (Vannier). Les données, mesurées en unités pratiques (pixels, images) sont ensuite converties en unités usuelles (microns, secondes) en connaissant le grossissement de l’objectif ($520 \text{ pixels} = 220 \mu\text{m}$) et la fréquence d’enregistrement du film —le nombre d’images par secondes—. La figure 4.1 représente la longueur de la poche de gaz en fonction du temps pour trois sites dont les caractéristiques géométriques sont données dans le tableau 4.1, avec les notations de la figure 4.2.

Site n°	1	2	3
Rayon r_f (μm)	6	6	5
Épaisseur de la paroi e (μm)	3	4	3
Longueur initiale z_0 (μm)	22	19	27
Longueur finale z_f (μm)	113	80	82
Temps de croissance t (s)	1	0.26	0.22

TAB. 4.1 – Valeurs mesurées des principales grandeurs caractérisant la croissance pour trois sites de nucléation. Le site n° 1 est plus lent car, dans ce cas, le Champagne avait déjà largement dégazé.

Les courbes de la figure 4.1 ont une caractéristique commune importante : dans chaque cas, la vitesse de croissance augmente avec la longueur de la poche de gaz, ce qui définit une croissance exponentielle et se traduit par une droite en échelle semi logarithmique. Les ordres de grandeur géométriques sont les suivants : $r_f \approx 10\mu\text{m}$, $e \approx 3\mu\text{m}$, $z_0 \approx 20\mu\text{m}$, $z_f \approx 100\mu\text{m}$. Les temps de croissance, qu’on peut assimiler aux périodes des trains de bulles, vont de 0.1 à 1 s. Cette différence importante pour des sites de dimensions comparables provient du dégazage progressif du liquide dans le temps [2, 45]. Le site n° 1, quatre fois plus lent que les deux autres, a été enregistré environ 45 minutes après le versement, alors que le Champagne avait déjà bien dégazé.

Il arrive parfois qu’une poche de gaz glisse à l’intérieur de la fibre qui la contient (figure 4.3). Ceci révèle l’existence vraisemblable d’un film liquide entre la paroi interne de la fibre et la poche de gaz. Ce film, s’il existe, est trop mince pour être observé sur les photos. Son existence signifie l’absence d’une ligne triple et donc d’un angle de contact. L’angle de contact et le film liquide s’excluent physiquement l’un l’autre. Certaines poches glissant et d’autres non, il est difficile de trancher définitivement. Du fait de la possibilité

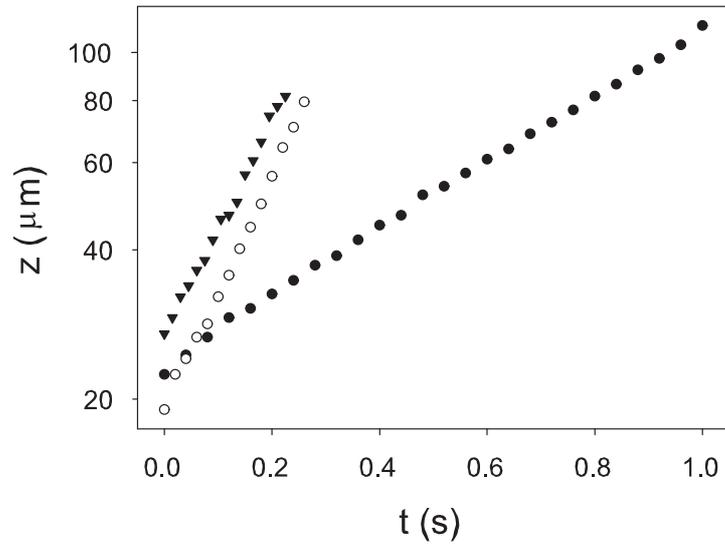


FIG. 4.1 – Longueur de la poche de gaz en fonction du temps pour les trois sites présentés dans le tableau 4.1. L'échelle est semi logarithmique. Les droites représentent donc des croissances exponentielles de la longueur dans le temps. L'incertitude sur les longueurs est de $1 \mu m$.

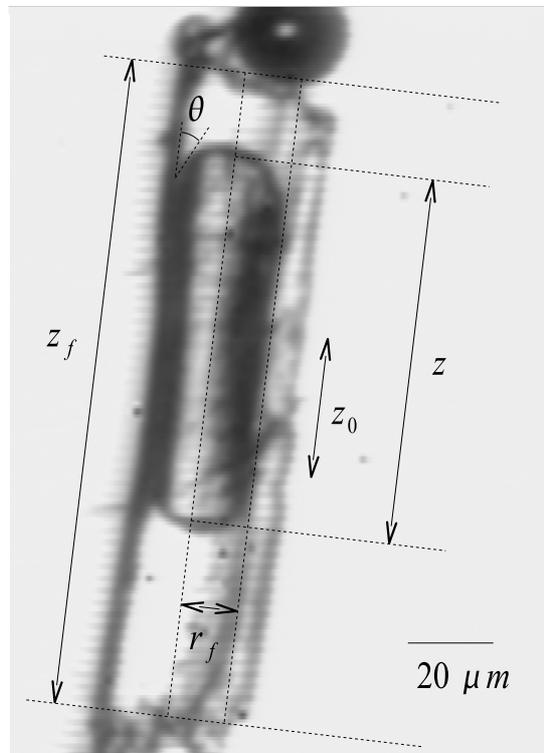


FIG. 4.2 – Notations utilisées pour les caractéristiques géométriques de la fibre.

de glissement et des propriétés hydrophiles de la paroi cellulosique, le film mouillant existe probablement, bien qu'il soit invisible. L'absence d'un angle de contact sera admise dans la suite. Une courte section sera toutefois consacrée aux conséquences d'un contact entre la poche et la paroi.

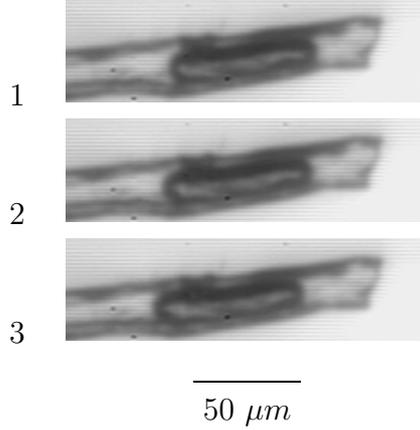


FIG. 4.3 – *Détail du glissement vers la gauche de la poche de gaz dans la fibre. Cette séquence s'intercale entre les étapes 4 et 5 de la figure 3.16. Il y a 12 ms entre chaque image (La séquence totale dure 24 ms). Le glissement montre qu'il existe un espace liquide δ invisible entre la poche de gaz et la paroi intérieure de la fibre.*

La possibilité pour la poche de glisser librement le long de la fibre pose le problème de l'intervention de la gravité. Dans son papier classique sur les bulles dans des tubes capillaires, Bretherton [36] a démontré l'existence d'un rayon critique $0.918\sqrt{\sigma/\rho g} \approx 2mm$, sous lequel la bulle ne peut plus monter dans le tube sous la seule action de la gravitation. Les rayons typiques de la présente étude ($\approx 10\mu m$) étant très inférieurs à cette valeur critique, il faut retenir que la poche de gaz ne peut être déplacée par le poids du liquide qui l'entoure, même si elle peut glisser librement à l'intérieur de la fibre. La gravitation sera donc ignorée.

Du fait d'un contenant supposé cylindrique, la poche de gaz sera limitée latéralement par un cylindre et longitudinalement par deux demi sphères. La figure 4.4 donne l'allure et les notations du système ainsi modélisé.

Le but étant de décrire l'évolution d'une poche de gaz à température constante, il faut comprendre l'évolution dans le temps des trois propriétés variables du gaz (P, V, n) —Pression, Volume, Nombre de moles— en fonction des paramètres géométriques (dimensions de la fibre) et physiques (densité, viscosité, tension de surface, *etc.*) du système.

Commençons par déterminer la pression à l'intérieur de la poche de gaz.

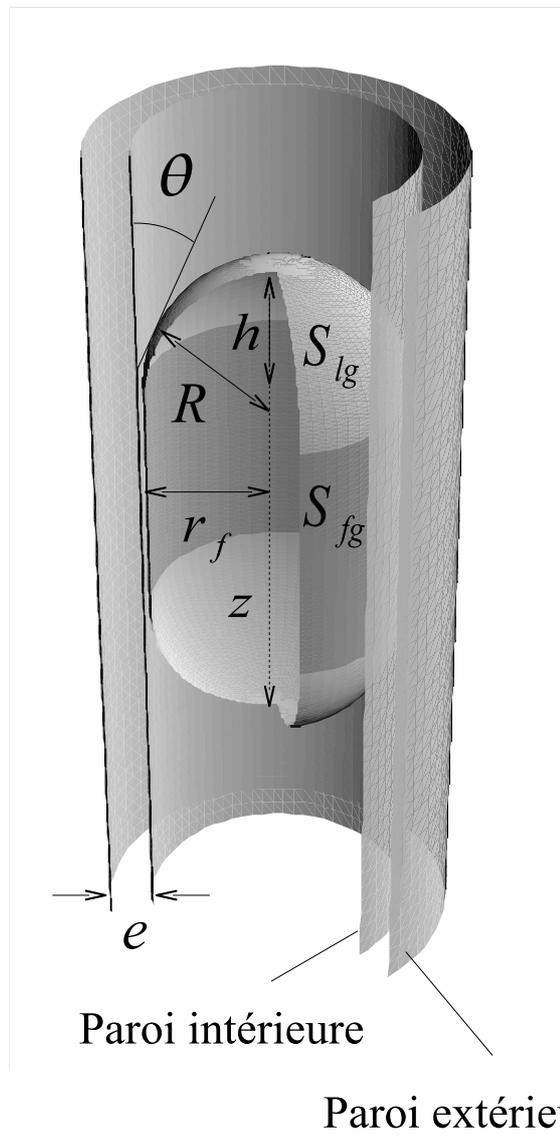


FIG. 4.4 – Notations utilisées dans la modélisation tri dimensionnelle de la fibre cylindrique.

4.3 Pression interne de la poche de gaz.

Les vitesse u et longueur r_f caractéristiques du problème permettent d'en calculer les nombres de Weber $We = \rho u^2 r_f / \sigma \approx 2 \times 10^{-7}$ et capillaire $Ca = \mu u / \sigma \approx 3 \times 10^{-5}$. Cela montre que l'inertie et la viscosité du liquide sont négligeables devant la tension de surface, signifiant que la dynamique est gouvernée par la pression et la tension de surface. Le terme inertiel est négligeable à cause de la masse minuscule de liquide déplacé. Le terme visqueux, quant à lui, disparaît à cause de la lenteur relative ($u \approx 1 \text{ mm.s}^{-1}$) du liquide. L'inertie et la viscosité étant négligeables, le système peut être considéré comme quasi statique, ce qui autorise l'application de la loi de Laplace-Young. A température ambiante, la pression de vapeur du liquide est environ 2-3% de la pression atmosphérique [18] et sera négligée. La pression de la colonne liquide contenue dans la flûte (quelques cm) est de l'ordre de $\Delta P_{liq} = \rho g \Delta z \approx 1000 \text{ Pa}$, soit un centième de la pression atmosphérique, et sera donc également omise. En définitive, la pression du liquide est sensiblement égale à la pression atmosphérique dans toute la flûte, soit $P_{ext} \approx P_a$. La pression du gaz s'écrit donc :

$$P = P_a + \sigma k \quad (4.1)$$

La poche étant supposée cylindrique et sans ligne triple, elle est refermée en haut et en bas par deux calottes hémisphériques de rayon r_f (annexe A), lesquelles ont, par définition, une courbure constante :

$$k = \frac{2}{r_f} \quad (4.2)$$

Combinant les équations (4.1) et (4.2), il apparaît que la pression interne de la poche de gaz reste constante durant sa croissance. Avec ce résultat, il devient possible de déterminer les conséquences de l'entrée de gaz dans la poche sur son volume.

4.4 Variation du volume de la poche de gaz.

Le CO_2 à l'intérieur de la poche est supposé se comporter comme un gaz parfait :

$$PV = n\mathcal{R}T \quad (4.3)$$

A pression constante (équations (4.1) et (4.2)), le volume V et la quantité de gaz n de la poche sont proportionnels. Le volume total d'une poche cylindrique vaut $V = \pi r_f^2 z + 2V_{cap}$, où $V_{cap} = 2\pi r_f^3 / 3$ est celui d'une calotte hémisphérique refermant la poche. En injectant ce volume dans l'équation (4.3) et en différenciant par rapport au temps, une relation linéaire entre la vitesse de croissance et l'entrée du gaz dans la poche est

obtenue :

$$\frac{\partial z}{\partial t} = \frac{\mathfrak{R}T}{\left(P_a + \frac{2\sigma}{r_f}\right) \pi r_f^2} \frac{\partial n}{\partial t} \quad (4.4)$$

ce qui signifie que, dans ce modèle, chaque molécule de CO_2 entrante fait uniquement grossir la poche de gaz, sans entraîner aucun autre effet comme l'augmentation de température ou de pression.

Il faut à présent expliciter l'entrée du gaz dans la poche $\partial n/\partial t$ pour pouvoir résoudre l'équation (4.4).

4.5 Transfert de masse du CO_2 .

Les notations de cette section font référence à la figure 4.5.

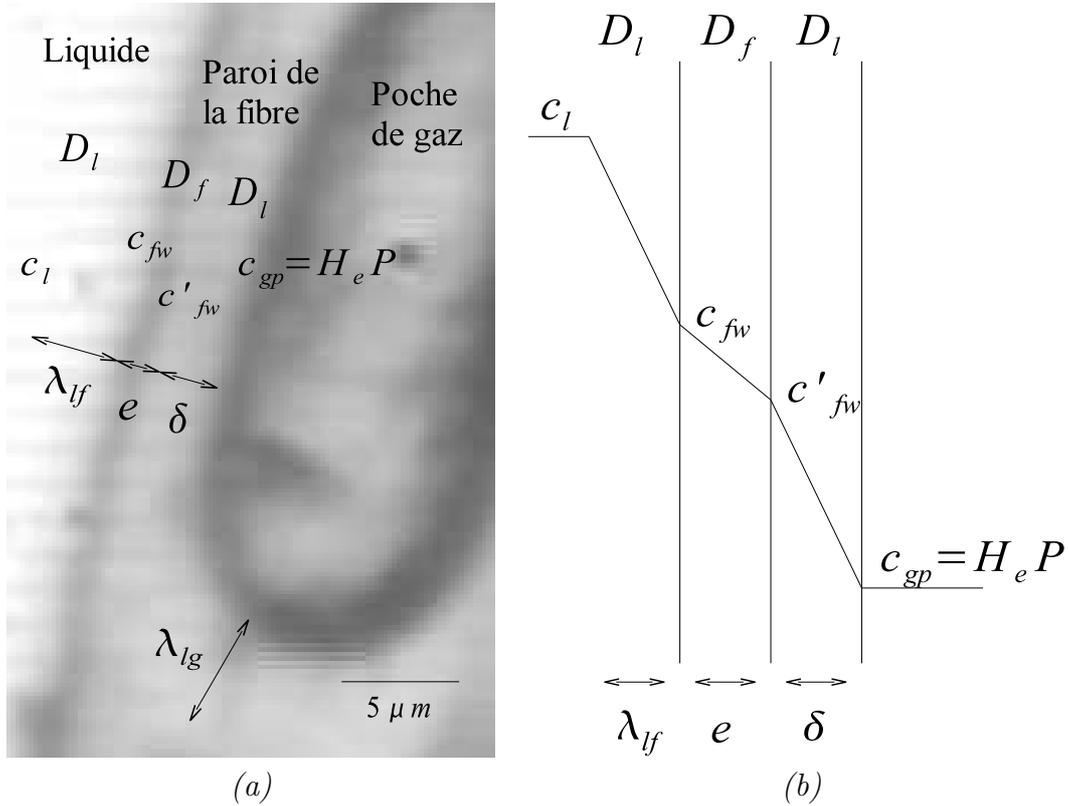


FIG. 4.5 – Détail de la fibre et notations utilisées pour la diffusion. (a) Détail photographique. L'espace δ compris entre la poche et la paroi intérieure est invisible sur la photo et a été arbitrairement agrandi pour les besoins de la figure. (b) Affaiblissement progressif de la concentration.

Deux lois vont être comparées pour le transfert du CO_2 , la diffusion pure et la diffusion-convection. Dans les deux cas, la variation du nombre de moles de gaz dans la poche est le flux de gaz entrant par sa surface :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \int_S \vec{J} \cdot d\vec{S} \quad (4.5)$$

Cette intégrale peut être séparée en deux intégrales correspondant à deux surfaces ayant chacune un flux constant. La première surface S_{lg} — lg pour liquide-gaz— est l'interface liquide gaz des calottes semi-sphériques. La seconde, S_{fg} — fg pour fibre-gaz— est l'interface liquide-gaz (puisque l'on suppose l'existence d'un film mouillant) de la partie cylindrique de la poche, qui est presque au contact de la fibre. Le flux à travers S_{lg} existe sans condition, mais celui qui traverse S_{fg} n'existe que si la fibre est perméable au CO_2 , ce qui sera examiné en détail plus bas. La loi de Fick s'écrit :

$$J = -D\nabla c \approx D \frac{\Delta c}{\lambda} \quad (4.6)$$

où D est le coefficient de diffusion des molécules de CO_2 , Δc la différence de concentration en CO_2 entre la matrice liquide et le bord extérieur de la poche de gaz et λ l'épaisseur de la couche de diffusion, c'est-à-dire la distance le long de laquelle la concentration en CO_2 décroît linéairement de son maximum à son minimum. Si le flux J est constant sur une surface, il peut être sorti de l'intégrale qui devient un simple produit $\partial n / \partial t = JS$, formule qui sera désormais utilisée :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = (JS)_{calottes} + (JS)_{cylindre} \quad (4.7)$$

4.5.1 Cas d'une fibre imperméable au CO_2 .

Dans le cas le plus simple, la fibre est imperméable au CO_2 . Dans ce cas, le gaz n'entre que par les calottes hémisphériques :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = 2D_l S_{lg} \frac{\Delta c}{\lambda_{lg}} \quad (4.8)$$

Le facteur 2 compte les deux calottes. Un argument qualitatif est suffisant pour éliminer ce modèle. Il sera montré plus loin que λ_{lg} est constant. En combinant les équations (4.4) et (4.8), il vient :

$$\frac{\partial z}{\partial t} = \text{constante} \quad (4.9)$$

prévoyant une croissance linéaire de la poche dans le temps, qui n'est pas observée. Cet argument démontre la perméabilité de la fibre au CO_2 , en accord avec le résultat obtenu dans la référence [27] par une autre méthode.

Examinons à présent le cas d'une paroi perméable.

4.5.2 Cas d'une fibre perméable au CO_2 .

Deux cas se présentent, suivant que la paroi cellulosique est hydrophile ou hydrophobe.

Paroi hydrophile.

Le liquide tend à mouiller la paroi et un film liquide d'épaisseur δ se forme entre la poche de gaz et la paroi, ce qui crée deux interfaces supplémentaires sur le chemin du CO_2 vers la poche de gaz. Une molécule doit donc traverser trois milieux avant d'arriver dans la poche : la couche de diffusion extérieure à la fibre λ_{lf} , la paroi de la fibre e , et le film δ . La conservation du flux à travers ces trois couches permet d'égaliser les flux de CO_2 traversant ces trois couches :

$$D_l \frac{c_l - c_{fw}}{\lambda_{lf}} = D_f \frac{c_{fw} - c'_{fw}}{e} = D_l \frac{c'_{fw} - c_{gp}}{\delta} \quad (4.10)$$

Cette double équation permet d'exprimer les concentrations intermédiaires c_{fw} et c'_{fw} en fonction des autres paramètres. En injectant les expressions obtenues dans l'un des trois membres de (4.10), une expression du flux de CO_2 arrivant dans la poche de gaz (équation (4.6)) est trouvée :

$$J = \frac{c_l - c_{gp}}{\frac{\lambda_{lf}}{D_l} + \frac{e}{D_f} + \frac{\delta}{D_l}} \quad (4.11)$$

Multiplier cette expression par la surface S_{fg} fournit la fraction de CO_2 entrant par la partie cylindrique de la poche. En y ajoutant la fraction entrante par les calottes (équation (4.8)), la quantité totale de gaz entrant dans la fibre (équation (4.7)) est obtenue :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = 2D_l S_{lg} \frac{\Delta c}{\lambda_{lg}} + \frac{\Delta c}{\frac{\lambda_{lf}}{D_l} + \frac{e}{D_f} + \frac{\delta}{D_l}} S_{fg} \quad (4.12)$$

où $\Delta c = c_l - c_{gp}$.

Pour que l'équation (4.12) soit utilisable, il faut expliciter les surfaces interfaciales S_{lg} et S_{fg} . S_{lg} est la surface d'une calotte hémisphérique de rayon $R = r_f$ et de hauteur $h = R$. C'est donc une constante :

$$S_{lg} = 2\pi R h = 2\pi r_f^2 \quad (4.13)$$

L'équation (4.13) est évidente dans le cas d'une demi sphère, mais la formule générale s'avèrera nécessaire en étudiant la possibilité d'existence d'un angle de contact. S_{fg} est la surface d'un cylindre de rayon r_f et de hauteur z :

$$S_{lg} = 2\pi r_f z \quad (4.14)$$

En combinant les équations (4.4), (4.13), (4.14) et (4.12), l'équation différentielle gouvernant la croissance $z(t)$ de la poche de gaz est obtenue :

$$\frac{\partial z}{\partial t} = \frac{4D_l \Re T}{(P_a + \sigma k) \lambda_{lg}} \frac{\Delta c}{\lambda_{lg}} + \frac{2\Re T}{(P_a + \sigma k) r_f} \frac{\Delta c}{\frac{\lambda_{lf}}{D_l} + \frac{e}{D_f} + \frac{\delta}{D_l}} z \quad (4.15)$$

qui peut être réécrite plus clairement :

$$\frac{\partial z}{\partial t} = v_{lg} + \frac{z}{\tau} \quad (4.16)$$

où v_{lg} et τ sont deux constantes ayant respectivement les dimensions d'une vitesse et d'un temps :

$$\begin{aligned} v_{lg} &= \frac{4\Re T \Delta c D_l}{(P_a + \sigma k) \lambda_{lg}} \\ \tau &= \frac{(P_a + \sigma k) r_f}{2\Re T \Delta c} \left(\frac{\lambda_{lf}}{D_l} + \frac{e}{D_f} + \frac{\delta}{D_l} \right) \end{aligned} \quad (4.17)$$

Paroi hydrophobe.

Dans ce cas, le liquide ne mouille pas la paroi, ce qui entraîne l'existence d'une ligne triple de contact, qui change légèrement les équations. Le rayon de courbure des calottes devient $R = r_f / \cos \theta$ et leur hauteur $h = R(1 - \sin \theta)$. Les conséquences sont les suivantes :

Dans l'équation (4.2), la courbure devient $k = 2 \cos \theta / r_f$. Dans l'équation (4.13), la surface d'une calotte devient $S_{lg} = 2\pi r_f^2 (1 - \sin \theta) / \cos^2 \theta$. L'absence de film impose $c'_{fw} = c_{gp}$ et $\delta = 0$ dans les équations (4.10) et (4.11). La prise en compte de tous ces changements amène de nouvelles expressions de v_{lg} et τ :

$$\begin{aligned} v_{lg} &= \frac{4\Re T \Delta c D_l (1 - \sin \theta)}{(P_a + \sigma k) \lambda_{lg} \cos^2 \theta} \\ \tau &= \frac{(P_a + \sigma k) r_f}{2\Re T \Delta c} \left(\frac{\lambda_{lf}}{D_l} + \frac{e}{D_f} \right) \end{aligned} \quad (4.18)$$

Ainsi, l'existence de θ multiplie v_{lg} par $(1 - \sin \theta) / \cos^2 \theta$ qui varie entre 1 et 2 quand θ va de 0 à $\pi/2$ et supprime de τ la fraction δ/D_l de toute façon très peu influente, ainsi qu'il sera montré plus loin. En somme, l'existence ou non d'un contact entre la poche de gaz et la paroi interne de la fibre, si elle modifie la compréhension physique du phénomène, n'a en revanche que peu d'influence sur le résultat numérique tant qu'on ne

s'intéresse qu'à la croissance. Dans ce travail, l'existence du film mouillant δ est supposée et les équations (4.17) seront donc dorénavant utilisées.

La section suivante examine deux modes de renouvellement du CO_2 aux alentours de la fibre et leurs conséquences sur les épaisseurs de couche λ .

4.6 Renouvellement du gaz autour de la poche.

4.6.1 Diffusion pure.

Pour un modèle purement diffusif, λ_{lg} et λ_{lf} sont évalués par conservation de la masse. En supposant que chaque mole contenue dans la couche d'épaisseur $d\lambda_{lg}$ (respectivement $d\lambda_{lf}$) pénètre la poche de gaz, il vient :

$$\Delta c 2\pi r_f^2 d\lambda_{lg} = \frac{\pi r_f^2 dz}{V_m} \quad (4.19)$$

pour les calottes sphériques, et :

$$\Delta c 2\pi r_f d\lambda_{lf} z = \frac{\pi r_f^2 dz}{V_m} \quad (4.20)$$

pour la partie cylindrique, où V_m est le volume molaire du gaz. L'intégration des équations (4.19) et (4.20) donne respectivement :

$$\lambda_{lg}(z) = \lambda_{lg}(z_0) + \frac{z - z_0}{2V_m \Delta c} \quad (4.21)$$

et :

$$\lambda_{lf}(z) = \lambda_{lf}(z_0) + \frac{r_f}{2V_m \Delta c} \ln \frac{z}{z_0} \quad (4.22)$$

Une poche d'air est emprisonnée dans la fibre au moment du versement. A cet instant, juste avant que la première bulle ne se forme, $\lambda_{lg}(z_0) = \lambda_{lf}(z_0) = 0$. Dès lors, λ_{lg} et λ_{lf} commencent à grossir suivant les équations (4.21) et (4.22). Après l'éjection de la première bulle et le retour à l'état initial de la poche, le cycle recommence, mais cette fois-ci $\lambda_{lg}(z_0)$ et $\lambda_{lf}(z_0)$ ne sont plus nuls car λ_{lg} et λ_{lf} gardent leurs valeurs courantes, données par les seconds termes des membres de droite des équations (4.21) et (4.22). Ainsi, après N bulles, $\lambda_{lg}(z_0)$ et $\lambda_{lf}(z_0)$ valent :

$$\lambda_{lg}(z_0) = N \frac{z - z_0}{2V_m \Delta c} \quad (4.23)$$

et :

$$\lambda_{lf}(z_0) = N \frac{r_f}{2V_m \Delta c} \ln \frac{z}{z_0} \quad (4.24)$$

Après quelques bulles, $\lambda_{lg}(z_0)$ et $\lambda_{lf}(z_0)$ sont suffisamment gros pour que λ_{lg} et λ_{lf} puissent être considérés comme constants et égaux à $\lambda_{lg}(z_0)$ et $\lambda_{lf}(z_0)$ le temps de l'émission d'une bulle. Ainsi, dans le cas purement diffusif :

$$\lambda_{lg} = N \frac{z - z_0}{2V_m \Delta c} \quad (4.25)$$

et :

$$\lambda_{lf} = N \frac{r_f}{2V_m \Delta c} \ln \frac{z}{z_0} \quad (4.26)$$

où N est le nombre total de bulles émises par le site. Ainsi, en supposant que seule la diffusion renouvelle le CO_2 aux alentours de la fibre, les équations (4.25) et (4.26) montrent que λ_{lg} et λ_{lf} atteignent rapidement de grandes valeurs à cause de la linéarité avec N (on rappelle qu'environ 10 bulles sont émises chaque seconde). Dans ce cas, l'équation (4.6) prédit un affaiblissement rapide du flux de gaz entrant et donc un ralentissement également significatif de la fréquence de bullage qui n'est jamais observé.

La diffusion seule est donc insuffisante pour assurer le renouvellement du CO_2 autour de la fibre.

4.6.2 Diffusion-convection.

La convection est le mouvement du liquide entraîné par l'ascension des bulles environnantes. Ce courant favorise le renouvellement du CO_2 dans les couches de diffusion et en limite ainsi l'expansion démesurée trouvée dans le cas de la diffusion pure. En maintenant ces couches dans des valeurs raisonnables [46, 47], la convection évite l'annulation du flux de gaz vers la poche (équation (4.6)) et autorise donc un bullage durable. Ce raisonnement montre le caractère indispensable de la convection. Par la suite, il sera admis que le renouvellement en gaz dissous à proximité de la fibre est assuré par diffusion-convection.

Ayant montré la perméabilité de la fibre, la présence d'un film liquide mouillant la paroi de cellulose, et la nécessité de la convection, il est désormais possible de proposer une solution théorique au modèle développé dans ce chapitre.

4.7 Paramètres et résultats.

4.7.1 Solution formelle.

L'équation (4.16) admet la solution suivante :

$$z(t) = (z_0 + v_{lg}\tau) e^{\frac{t}{\tau}} - v_{lg}\tau \quad (4.27)$$

où v_{lg} et τ sont donnés par les équations (4.17).

4.7.2 Paramètres physiques.

Densité. La densité ρ du champagne est la même que celle de l'eau ($\rho = 998 \text{kg.m}^{-3}$). Sa viscosité dynamique vaut $\mu = 1.6 \times 10^{-3} \text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ [48].

Coefficient de diffusion. Le coefficient de diffusion D_l du CO_2 dans le champagne a été déterminé par Résonance Magnétique Nucléaire [34] et vaut $1.41 \times 10^{-9} \text{m}^2.\text{s}^{-1}$.

Au début de ce travail, un coefficient de diffusion du CO_2 dans la fibre $D_f \approx D_l$ [49] avait été utilisé. Puis, plus récemment, en 2004, une nouvelle approche [27] basée sur la géométrie interne des fibres, et décrite au chapitre 3, a affiné ce résultat pour donner $D_f \approx D_l/5$.

Concentration en CO_2 près de la poche. La concentration en CO_2 dissous près de la poche de gaz c_{gp} est donnée par la loi de Henry $P = H_e c_{gp}$. Pour le CO_2 et l'eau à température ambiante, la constante de Henry vaut $H_e \approx 7 \times 10^4 \text{pa.m}^3.\text{kg}^{-1}$.

Concentration en CO_2 dans le coeur de phase. La concentration en CO_2 dissous dans la matrice liquide c_l est connue en début ($\approx 12 \text{g.l}^{-1}$) et en fin ($\approx 2 \text{g.l}^{-1}$) de dégazage, mais sa valeur n'étant pas mesurable en temps réel, elle est *a priori* inconnue au moment de l'enregistrement du film. Il est cependant possible de la retrouver par une méthode indirecte. Après sa libération, la bulle commence son ascension vers la surface du liquide, ascension au cours de laquelle elle va grossir sans interruption par absorption du CO_2 dissous. Or sa vitesse de grossissement $\partial r / \partial t$ est une fonction linéaire de la concentration du gaz dans le liquide c_l [45] :

$$\frac{\partial r}{\partial t} = 0.63 \frac{k_B T}{P_a} D_l^{2/3} \left(\frac{2\alpha g}{9\eta} \right)^{1/3} (c_l - c_0) \quad (4.28)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T la température ambiante, P_a la pression atmosphérique, D_l le coefficient de diffusion du CO_2 dans le liquide, α un coefficient numérique sans dimensions ($0.6 < \alpha < 0.8$ [48]), g l'accélération de gravité, η la viscosité cinématique du liquide, et c_0 la concentration de CO_2 à l'arrêt du bullage ($c_0 \approx 2 \text{g.l}^{-1}$). Il a été possible de mesurer la vitesse de grossissement $\partial_t r$ des bulles éjectées par les sites étudiés (figure 4.6). Pour chaque site, les points trouvés sont fittés par une droite dont la pente donne $\partial_t r$. La formule (4.28) permet ensuite de remonter jusqu'à la concentration c_l au moment de l'enregistrement. Les concentrations trouvées sont exposées dans le tableau 4.2.

4.7.3 Paramètres géométriques.

Dimensions. z_0 , z_f , r_f et e sont directement mesurés sur les films enregistrés.

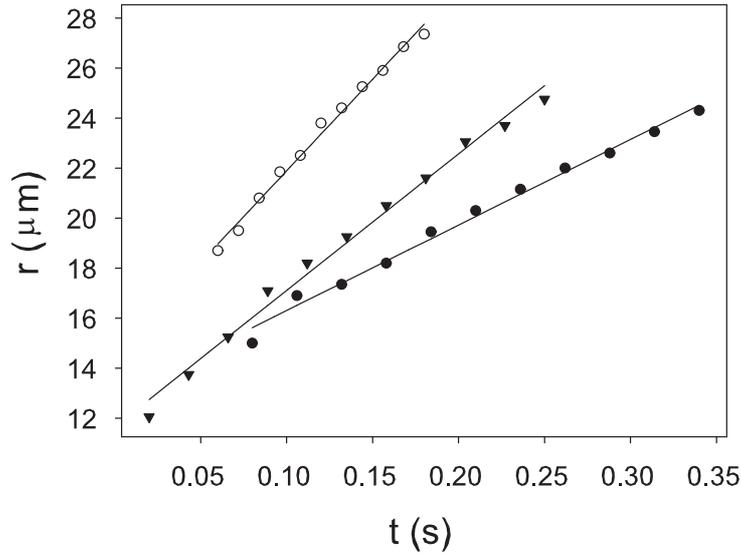


FIG. 4.6 – *Evolution linéaire observée du rayon des jeunes bulles en fonction du temps. Les points sont les valeurs expérimentales et les traits continus les droites numériques obtenues par la méthode des moindres carrés. Dans chaque cas, la pente de la droite donne la valeur du paramètre $\partial_t r$, nécessaire pour déterminer la concentration via l'équation (4.28). L'incertitude sur les rayons est de $1 \mu\text{m}$.*

Film mouillant. En ce qui concerne δ , il est possible de montrer [50] que, pour des poches de gaz suffisamment petites ($z < 20r_f$) et lentes ($Ca \approx 10^{-5}$), la théorie de Bretherton [36] est valide et donc que $\delta = 0.64r_f(3Ca)^{2/3} \approx 10\text{nm}$. Cette extrême étroitesse autorise à négliger δ dans les équations (4.11) à (4.17). Le film mouillant, quoique altérant la mobilité de la poche dans la fibre, ne joue donc quasiment aucun rôle dans sa croissance.

Couches de diffusion. λ_{lg} et λ_{fg} étant tous deux contrôlés par le même mécanisme convectif-diffusif, seront supposés égaux : $\lambda_{lg} = \lambda_{fg} = \lambda$. D'une manière générale, la couche de diffusion diminue avec la vitesse de convection [46, 47]. Rossier [47] donne $1\mu\text{m} < \lambda < 100\mu\text{m}$ dans des solutions remuées ou en écoulement. Les équations (4.17) et (4.27) peuvent toutefois être utilisées pour préciser λ dans notre cas. Le temps théorique t_{th} requis par la poche pour grandir de sa taille initiale z_0 à sa taille finale z_f peut être extrait de (4.27) :

$$t_{th} = \tau \ln \frac{z_f + v_{lg}\tau}{z_0 + v_{lg}\tau} \quad (4.29)$$

L'équation (4.29) est une relation entre t_{th} , c_l et λ . Par conséquent, le couple (t_{th}, c_l) suffit à déterminer la couche λ pour un site donné. La détermination de c_l grâce à la mesure de $\partial_t r$ a été expliquée plus haut. Le temps t_{th} est mesurable puisque c'est le

temps de croissance de la poche ($t_{th} = t$). Le tableau 4.2 résume les résultats obtenus pour les λ . Le modèle prévoit ainsi des $\lambda \approx 80\mu m$, ce qui est en accord avec la littérature [46, 47]. Le site n° 1 dans le tableau 4.2 présente une couche λ nettement plus épaisse que les deux autres. Ceci est dû au fait que le champagne avait déjà largement dégazé lors de l'enregistrement, ce que traduisent son temps de croissance t plus long et sa concentration c_l moindre. Sa faible fréquence réduit d'autant la convection, ce qui explique un λ plus grand.

Site n°	1	2	3
Rayon r_f (μm)	6	6	5
Épaisseur de la paroi e (μm)	3	4	3
Longueur initiale z_0 (μm)	22	19	27
Longueur finale z_f (μm)	113	80	82
Temps de croissance t (s)	1	0.26	0.22
Vitesse de croissance des bulles libérées $\partial_t r$ ($\mu m.s^{-1}$)	34	73	54
Concentration en CO_2 dans le liquide c_l ($g.l^{-1}$)	2.6	3.4	3
Épaisseur de la couche de diffusion λ (μm)	120	82	80

TAB. 4.2 – Valeurs des paramètres pour trois sites de nucléation. Ce tableau répète les données du tableau 4.1 pour plus de clarté.

4.7.4 Résultats.

Les valeurs des paramètres utiles sont réunies dans le tableau 4.3. Les résultats obtenus en insérant ces paramètres et ceux du tableau 4.2 dans les équations (4.17) et (4.27) sont présentés sur la figure 4.7. Le modèle est en accord qualitatif et quantitatif avec les données expérimentales.

4.8 Résumé.

Ce chapitre présente d'abord les observations sur les grossissements de poches de gaz dans des fibres réelles (section 4.2). La pression dans la poche est ensuite déterminée (section 4.3), puis il est montré que l'entrée du gaz a pour seul effet la croissance de la poche (section 4.4) à un taux qui dépend de la quantité de gaz entrant. Différentes hypothèses sont ensuite examinées quant au mode de pénétration du gaz et de son renouvellement aux alentours de la poche (sections 4.5 et 4.6) pour proposer une équation de l'évolution de la taille de la poche dans le temps (équations (4.16) et (4.17)). Les valeurs des paramètres utiles sont déterminées et l'équation résolue (figure 4.7) dans le cas de fibres cylindriques et régulières.

Symbole	Signification	Ordre de grandeur
\mathfrak{R}	Constante des gaz parfaits	$8.31 J.K^{-1}$
T	Température	$297 K$
ρ	Densité du liquide	$998 kg.m^{-3}$
μ	Viscosité du liquide	$1.6 \times 10^{-3} kg.m^{-1}.s^{-1}$
σ	Tension de l'interface	$47 mN.m^{-1}$
P_a	Pression atmosphérique	$10^5 Pa$
Δc	Différence de concentration	$0-10 g.l^{-1}$
D_l	Coefficient de diffusion dans le liquide	$1.41 \times 10^{-9} m^2.s^{-1}$
D_f	Coefficient de diffusion dans la fibre	$0.3 \times 10^{-9} m^2.s^{-1}$
λ	Couche de diffusion-convection	$80 \mu m$
r_f	Rayon de la fibre	$10 \mu m$
z_0	Longueur initiale de la poche	$20 \mu m$
z_f	Longueur finale de la poche	$90 \mu m$
e	Épaisseur de la paroi de cellulose	$5 \mu m$
δ	Épaisseur du film mouillant	$10 nm$

TAB. 4.3 – *Nomenclature et ordres de grandeur des paramètres physiques et géométriques utiles.*

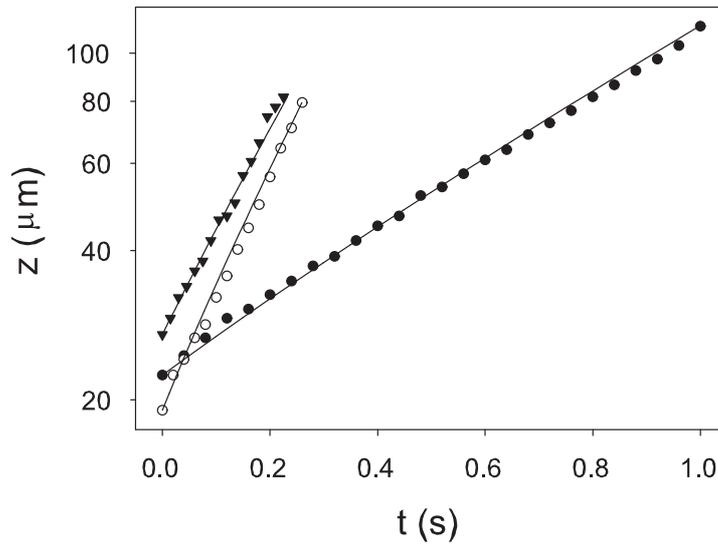


FIG. 4.7 – *Comparaison entre les données expérimentales (les points) et les solutions théoriques (traits continus) du modèle.*

4.9 Conclusion.

La genèse de la bulle est apparue comme un phénomène beaucoup plus riche qu'il n'était supposé jusqu'alors et certains mécanismes en ont été compris, lesquels permettent d'en prévoir quelques propriétés générales.

L'observation de poches glissantes dans la fibre montre l'existence probable d'un film mouillant entre la poche de gaz et la paroi interne de la fibre.

La perméabilité de la fibre au CO_2 est démontrée, l'hypothèse d'imperméabilité aboutissant à une solution jamais observée expérimentalement. Cette transparence de la paroi de cellulose au dioxyde de carbone a été confirmée par une autre méthode [27] présentée au chapitre 3.

Le modèle permet également de montrer la nécessité de la convection dans le renouvellement du CO_2 près de la fibre. Cette convection est le mouvement du liquide entraîné par le(s) train(s) de bulles environnant(s).

Quelques manipulations mathématiques de la solution trouvée permettent de prévoir notamment la période (donc la fréquence) de bullage, ainsi que l'épaisseur de la couche de diffusion-convection entourant la fibre. Le modèle est, dans ces cas simples (fibres régulières et cylindriques), en accord avec les observations.

Il faut cependant rappeler qu'un faible pourcentage des fibres observées peuvent être considérées comme satisfaisant les conditions requises pour le modèle (géométrie cylindrique et régulière). Il apparaît donc naturel de s'intéresser à la forme réelle de l'immense majorité des fibres qui ne sont souvent ni cylindriques ni régulières. L'objet du chapitre suivant est de déterminer plus précisément la forme spatiale de ces fibres.

Il est d'ores et déjà possible de faire quelques remarques à propos du comportement mathématique du modèle vis à vis de fibres plus complexes. L'abandon du cylindre signifie que les diverses expressions des surfaces et volumes utilisés ne pourraient plus être exprimées par des formules simples. Il en est de même pour la forme de l'interface et *a fortiori* pour sa courbure (annexe A). Outre la difficulté d'exprimer cette courbure, il faut noter qu'elle deviendrait variable. La pression le serait donc également, et l'équation différentielle résultante n'admettrait plus de solution simple sous forme d'exponentielle. Une solution analytique semble *a priori* exclue. En un mot, la complication de la forme des fibres a des conséquences importantes mathématiquement. Le cas échéant, un recours à des solutions numériques serait sans doute indispensable. Cela justifie en partie la simplicité des hypothèses jusqu'alors admises pour les fibres : ce sont les seules qui permettent de dire quelque chose sans faire appel à des méthodes lourdes.

Chapitre 5

Détermination de la forme des fibres par des méthodes optiques.

Sommaire

5.1	Introduction.	84
5.2	Idée générale.	85
5.3	Profils d'intensité expérimentaux	85
5.3.1	Obtention d'un profil d'intensité.	85
5.3.2	Carte des pourcentages.	88
5.3.3	Problèmes potentiels et leurs résolutions.	88
5.3.4	Dépendance expérimentale du pourcentage avec la largeur réelle.	91
5.4	Profils d'intensité numériques.	93
5.4.1	Reconstruction numérique du système optique.	93
5.4.2	Approximation paraxiale.	96
5.4.3	Lancer de rayons inverse.	96
5.4.4	Lancer de rayons conforme.	98
5.4.5	Validation des méthodes numériques.	102
5.5	Angle d'inclinaison de la fibre.	104
5.6	Reconstruction de poches de gaz.	104
5.6.1	Principe.	104
5.6.2	Résultats.	107
5.6.3	Vérification à l'aide de fibres en rotation.	110
5.7	Résumé.	110
5.8	Conclusion.	111

5.1 Introduction.

Le chapitre précédent a montré le rôle des caractéristiques géométriques de la fibre dans la dynamique de la poche de gaz. La surface détermine la quantité de CO_2 entrant, et la courbure fixe la pression.

L'étude analytique exposée au chapitre précédent est autorisée par l'hypothèse simplificatrice de fibres cylindriques. Cette géométrie permet de calculer simplement le volume, la surface, et la courbure de la poche de gaz. Toutefois, la majorité des fibres observées ne sont pas aussi régulières. Des sites présentant des rétrécissements et des élargissements qui perturbent la croissance de la poche de gaz (figure 5.1) sont, en effet, couramment observés.

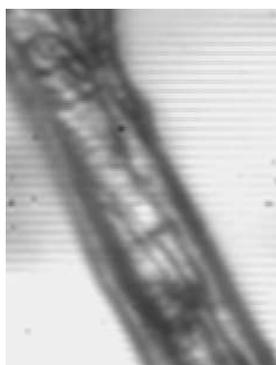


FIG. 5.1 – *Fibre à géométrie interne irrégulière. La poche de gaz présente des rétrécissements et des élargissements trahissant l'irrégularité de la fibre.*

Topgaard [26] décrit les fibres comme des tubes aplatis mais sans quantifier cet aplatissement. Quant au profil accidenté de la géométrie interne, à notre connaissance, il n'est pas mentionné. En abandonnant l'hypothèse d'une fibre cylindrique régulière, on introduit deux nouveaux aspects distincts : l'aplatissement et l'irrégularité. L'aplatissement ne modifie pas sensiblement les résultats du chapitre précédent : l'exponentielle reste une exponentielle, même si en pratique, le calcul de la forme et de la courbure de l'interface libre devient plus compliqué. La géométrie irrégulière, en revanche, fait varier la courbure et donc la pression interne au cours du temps.

Le but de ce chapitre est de déterminer la forme spatiale des sites observés. Cette connaissance donnerait accès, d'une part aux irrégularités propres à chaque fibre, et d'autre part à leur aplatissement moyen.

La microscopie électronique semble indiquée pour ce genre d'étude. Elle présente toutefois l'inconvénient, dans notre cas, d'être très invasive pour la fibre. Outre le fait que l'extraction de la fibre depuis la paroi du verre risque de l'endommager, les traitements

nécessaires à l'obtention d'une bonne image en microscopie électronique peuvent altérer sa forme. La géométrie de la fibre imbibée et gonflée par le liquide est différente de celle d'une fibre sèche. Enfin, la méthode est lourde : il faut disposer d'un microscope électronique et effectuer, pour chaque fibre observée dans la flûte, un nombre important d'opérations risquant de modifier la fibre. Pour ces raisons, le microscope électronique n'a pas été utilisé.

Une méthode originale et non invasive, basée sur l'optique géométrique, sera mise au point dans ce chapitre. Elle donne des résultats moins précis qu'un microscope électronique, mais permet de travailler dans les conditions réelles d'observation. En outre, cette méthode ne requiert aucun appareillage lourd supplémentaire, puisque tout se fait sur un ordinateur personnel (de type PC). Elle est donc plus légère à mettre en oeuvre, ce qui est important quand de nombreuses fibres sont étudiées.

5.2 Idée générale.

La figure 5.2 montre une fibre contenant une poche de gaz ainsi qu'une bulle libérée. Une tache blanche centrale (oblongue dans la poche de gaz et circulaire dans la bulle) occupe une partie de la surface visible de ces objets. Il apparaîtra plus loin que cette tache claire est l'image de la lampe vue à travers les objets gazeux. Ces poches de gaz étant plongées dans un liquide, elles se comportent comme des lentilles divergentes et donnent une image rétrécie et déformée du réel. La taille et la forme de la tache, image de la lampe, doivent donc dépendre de la forme de l'objet réfractant, ce qui se vérifie sur la figure 5.2. L'exploitation de cette dépendance devrait permettre, en comprenant comment se construit la tache, de remonter jusqu'à la forme de la poche de gaz [51].

La bulle ayant un très petit nombre de Weber $We = 2\rho RU^2/\sigma \approx 10^{-5} \ll 1$, la tension de surface est prépondérante et par conséquent, la bulle sera considérée comme une sphère parfaite [2]. La tache blanche étant plus importante dans la poche de gaz que dans la bulle, la poche n'a donc pas, comme la bulle, une section sphérique et n'est donc pas un cylindre. Cette brève observation montre qu'il est possible obtenir des informations sur la troisième dimension en comprenant la formation de la tache blanche centrale. L'exploitation quantitative de cette idée est l'objet de ce chapitre.

5.3 Profils d'intensité expérimentaux

5.3.1 Obtention d'un profil d'intensité.

Partant d'une image comme celle de la figure 5.3 *a*, une intensité comprise entre 0 (noir) et 1 (blanc) est associée à chaque pixel afin d'obtenir une carte d'intensité de la photo (5.3 *b*). Un profil d'intensité est une coupe transversale de la carte (5.3 *c*).

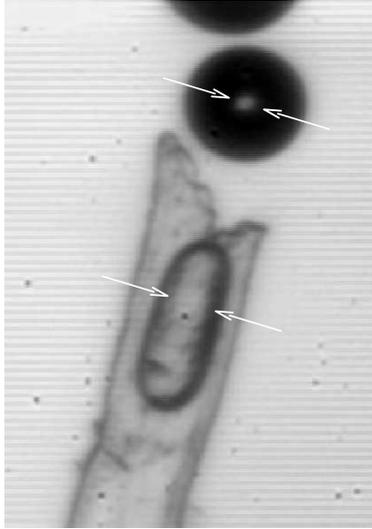


FIG. 5.2 – *Comparaison entre les taches blanches centrales (indiquées par les flèches). La tache au centre de la bulle est plus petite que celle de la poche de gaz, du fait de leurs formes différentes. Ces taches sont les images de la lampe données par les objets gazeux réfractant la lumière.*

Numériquement, une image est une matrice de pixels. Pour obtenir une coupe transverse de la fibre, une portion de l'image est redressée par application d'une matrice de rotation sur les indices des pixels (qui représentent également leurs coordonnées) pour amener la fibre en position verticale (figure 5.4). Dès lors, faire une coupe revient à extraire une ligne de la matrice.

Les bosses et les creux dans un profil correspondent respectivement aux parties claires et sombres de la photo (figure 5.3c). Pour calculer la taille d'un objet, que ce soit la tache blanche centrale ou la poche de gaz, il faut déterminer la position de ses frontières. Ces frontières étant caractérisées par la transition généralement progressive d'une zone claire vers une zone sombre (ou l'inverse), leur position exacte est une affaire de convention. La frontière peut, par exemple, être définie comme l'endroit où la pente de la variation est maximum. Une autre possibilité est de choisir une intensité seuil (représentée par une droite horizontale) et de prendre ses intersections avec le profil, mais se pose alors le choix de la valeur de cette intensité. Il est également envisageable de raisonner sur les courbures en positionnant le bord à l'endroit où la courbure est extrême, mais ce faisant, la solution dépend beaucoup de la forme du profil. En principe, un traitement statistique des courbes est aussi possible, en calculant la position du maximum, puis l'écart type par rapport à cette position, mais ici, les profils expérimentaux ont généralement une faible résolution, et donc un nombre de points insuffisant pour des calculs statistiques. Ces méthodes ont été testées. Elles présentent toutes des avantages et des inconvénients différents et donnent des résultats variables. En pratique, il faut choisir une méthode et s'y tenir, pour assurer la cohérence interne des résultats. La méthode de la pente

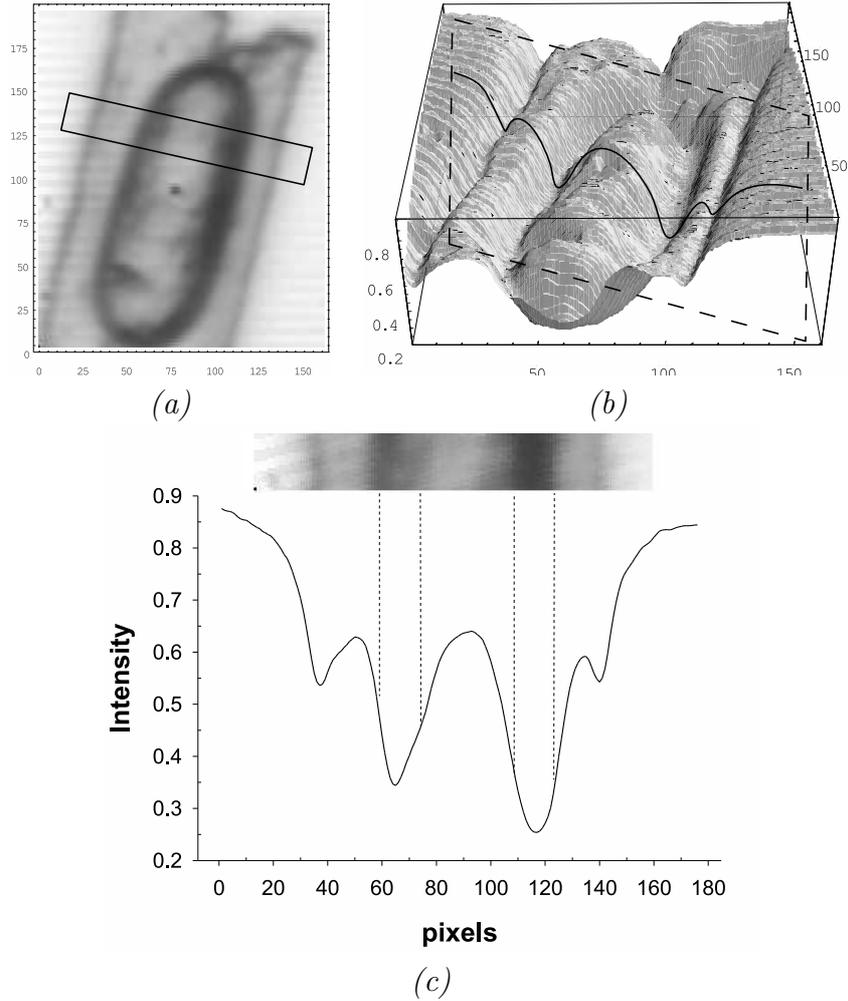


FIG. 5.3 – *Obtention d'un profil expérimental. (a) Photo originale. (b) Carte des intensités de la photo, obtenue en associant à chaque pixel la hauteur correspondant à son intensité. (c) Tranche de la carte des intensités donnant le profil d'intensité d'une tranche de la photo. Les lignes verticales en pointillés indiquent l'emplacement des pentes maximales sur le profil et leur correspondance avec la position des frontières sur la photo.*

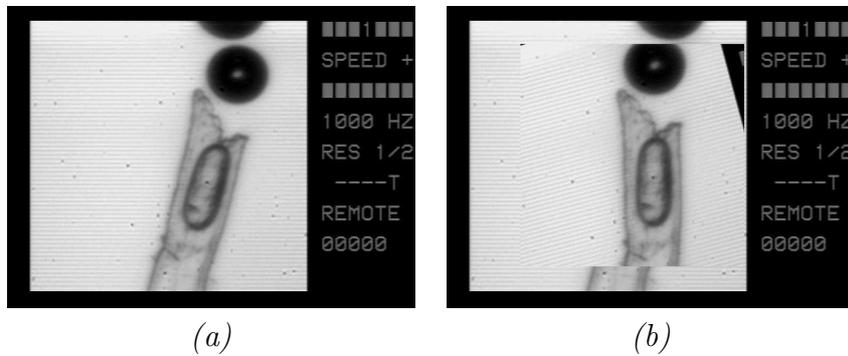


FIG. 5.4 – *Rotation de la partie intéressante de l'image. L'image étant considérée comme un tableau de pixels, cet effet est obtenu par application d'une matrice de rotation sur les indices des pixels. (a) Avant. (b) Après.*

maximale a été choisie, et semble en accord intuitif, dans le principe et dans les résultats, avec ce que l'oeil humain perçoit (lignes en pointillés sur la figure 5.3c). Pour un profil donné, la dérivée est calculée et les frontières sont les maxima et les minima principaux de cette courbe. La figure 5.5 montre un exemple de profil type et sa dérivée.

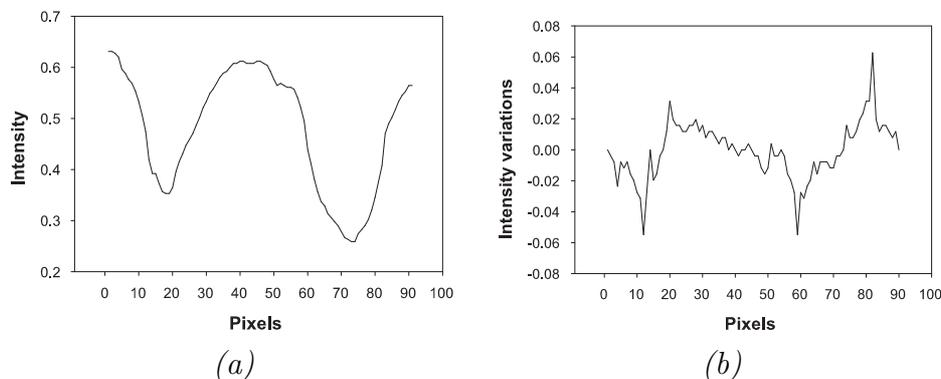


FIG. 5.5 – Profil expérimental correct. (a) Intensité. (b) Variation de l'intensité. Les quatre extrema de la variation donnent les positions des bords de la tache blanche (au centre) et de la poche de gaz (sur les cotés).

5.3.2 Carte des pourcentages.

Connaissant les positions des bords de la tache blanche et de la poche de gaz, il est possible de calculer leurs largeurs respectives, dont le rapport donne le pourcentage de place occupée par la tache blanche dans la poche.

$$\text{pourcentage} = \frac{\text{largeur de la tache blanche}}{\text{largeur de la poche de gaz}} \times 100 \quad (5.1)$$

En recommençant ce travail pour toutes les lignes de la photo, c'est-à-dire pour chaque ligne de la matrice de pixels, la valeur du pourcentage en fonction de la position est obtenue (figure 5.6).

5.3.3 Problèmes potentiels et leurs résolutions.

Cette méthode présente des inconvénients. Les procédures automatiques qui traitent les images peuvent être induites en erreur principalement par deux phénomènes, la présence d'impuretés et la pixellisation.

Présence d'impuretés.

C'est un problème d'origine physique. La nécessité de travailler sur des flûtes légèrement poussiéreuses entraîne inévitablement la présence de micro impuretés pouvant polluer

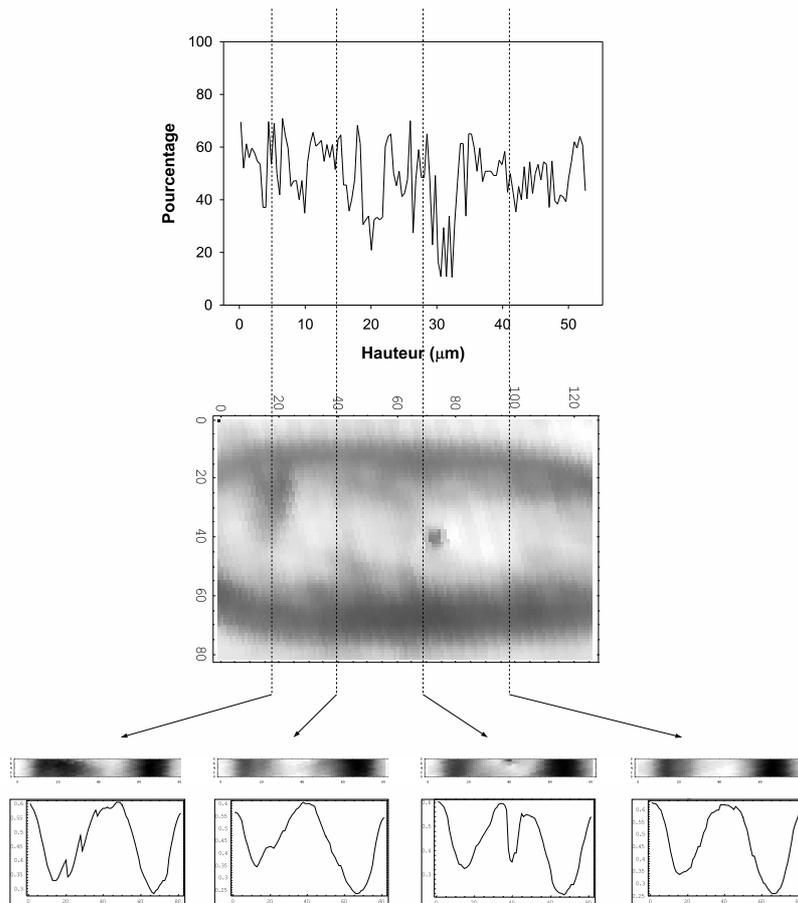


FIG. 5.6 – *Pourcentage pour chaque ligne de la photo. Quatre groupes de lignes sont montrés à leurs positions respectives. Pour chaque ligne de la photo, un profil a été extrait et le pourcentage correspondant calculé.*

l'image. La figure 5.7 montre de quelle façon une micropoussière agit comme un parasite optique en modifiant radicalement le profil et sa dérivée, induisant *ipso facto* les traitements automatisés en erreur.

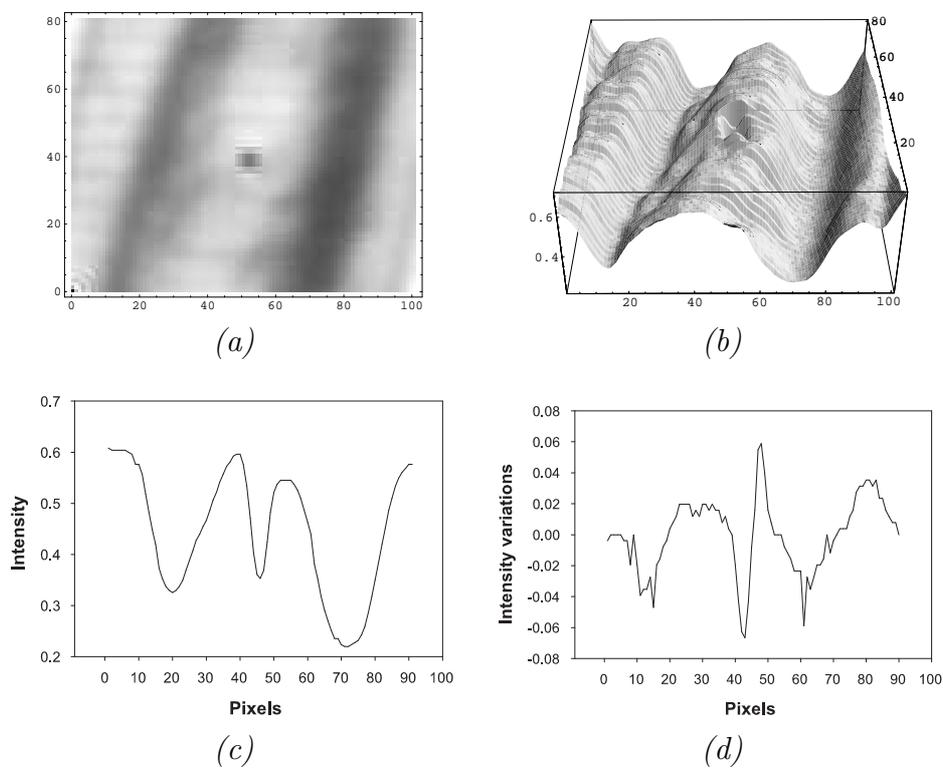


FIG. 5.7 – *Parasitage optique.* (a) *Extrait de la photo originale.* Le défaut est la petite tache sombre au centre de l'image. (b) *Carte d'intensité autour du défaut.* La petite poussière forme un trou dans la zone de la tache blanche. (c) *Profil d'intensité correspondant.* Le trou se traduit par un creux important au centre du profil. (d) *Variation de l'intensité.* Les pentes min et max ne se situent plus sur les frontières des objets qui nous intéressent.

Pixellisation.

L'origine de ce problème est cette fois ci technique. En travaillant sur des détails des images obtenues, leurs limites de résolution sont souvent atteintes. L'intensité effectuant un saut discret entre deux pixels voisins, le profil n'apparaît plus comme une courbe lisse et se brise à petite échelle. Cette rugosité peut causer l'apparition locale de très fortes pentes et produire des erreurs dans le positionnement précis des bordures par les programmes. La figure 5.8 illustre ce problème.

En fait, il s'avère que, même pour des profils corrects comme celui de la figure 5.5, la pixellisation fait varier localement les positions des pentes et donc les tailles évaluées de la tache blanche et de la poche de gaz. En conséquence, le pourcentage déterminé varie de façon saccadée (figure 5.9(a)). L'irrégularité de la courbe du pourcentage ne

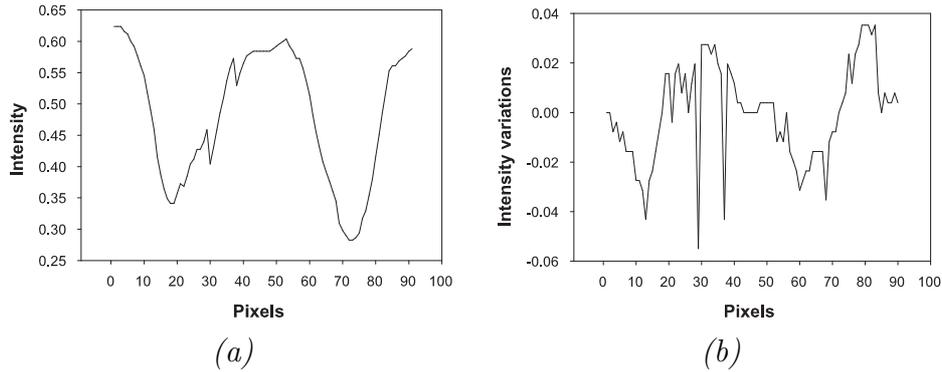


FIG. 5.8 – *Pixellisation.* (a) *Profil d'intensité.* (b) *Variation de l'intensité.* Les deux zigzags du côté gauche de la bosse centrale en (a) se traduisent en (b) par deux pics négatifs très importants qui vont tromper les procédures automatisées.

traduit donc pas une irrégularité réelle de la poche de gaz mais simplement le manque de résolution de la photo.

Pour résoudre ce problème, l'image est divisée en groupes de lignes. Chaque groupe est ensuite remplacé par la valeur moyenne de ses lignes. Ce procédé lisse les profils et adoucit la variation d'un profil à l'autre. Les cartes de pourcentage obtenues pour différentes divisions de la même image sont représentées sur la figure 5.9. Le nombre de groupes et le nombre de lignes par groupe sont mutuellement dépendants puisque leur produit doit être le nombre de lignes de l'image. Le nombre de lignes par groupe doit être suffisamment important pour gommer les défauts optiques (pixellisation ou micropoussières) et suffisamment petit pour ne pas gommer les propriétés réelles de la poche de gaz. Des tests effectués sur plusieurs photos ont montré que des groupes d'une dizaine de lignes chacun représentaient un bon compromis pour lisser les effets de pixellisation et seulement eux. Pour les micropoussières, le nombre optimal de lignes par groupe dépend de la taille de l'impureté.

5.3.4 Dépendance expérimentale du pourcentage avec la largeur réelle.

Puisqu'on ne s'intéresse qu'à des tailles relatives, il est utile de vérifier si les pourcentages mesurés dépendent de la taille réelle des objets. Le cas échéant, il faudrait en tenir compte lors de l'étude numérique. Le seul objet de géométrie constante observable à différentes tailles est la bulle. Les pourcentages occupés par la tache blanche centrale pour des bulles de différentes grosseurs ont donc été mesurés. Le tableau 5.1 résume ces résultats et montre l'indépendance du pourcentage avec le diamètre des bulles dans la gamme de tailles intéressantes ici (10-100 μm). Par la suite, seules seront considérées les dimensions relatives du système.

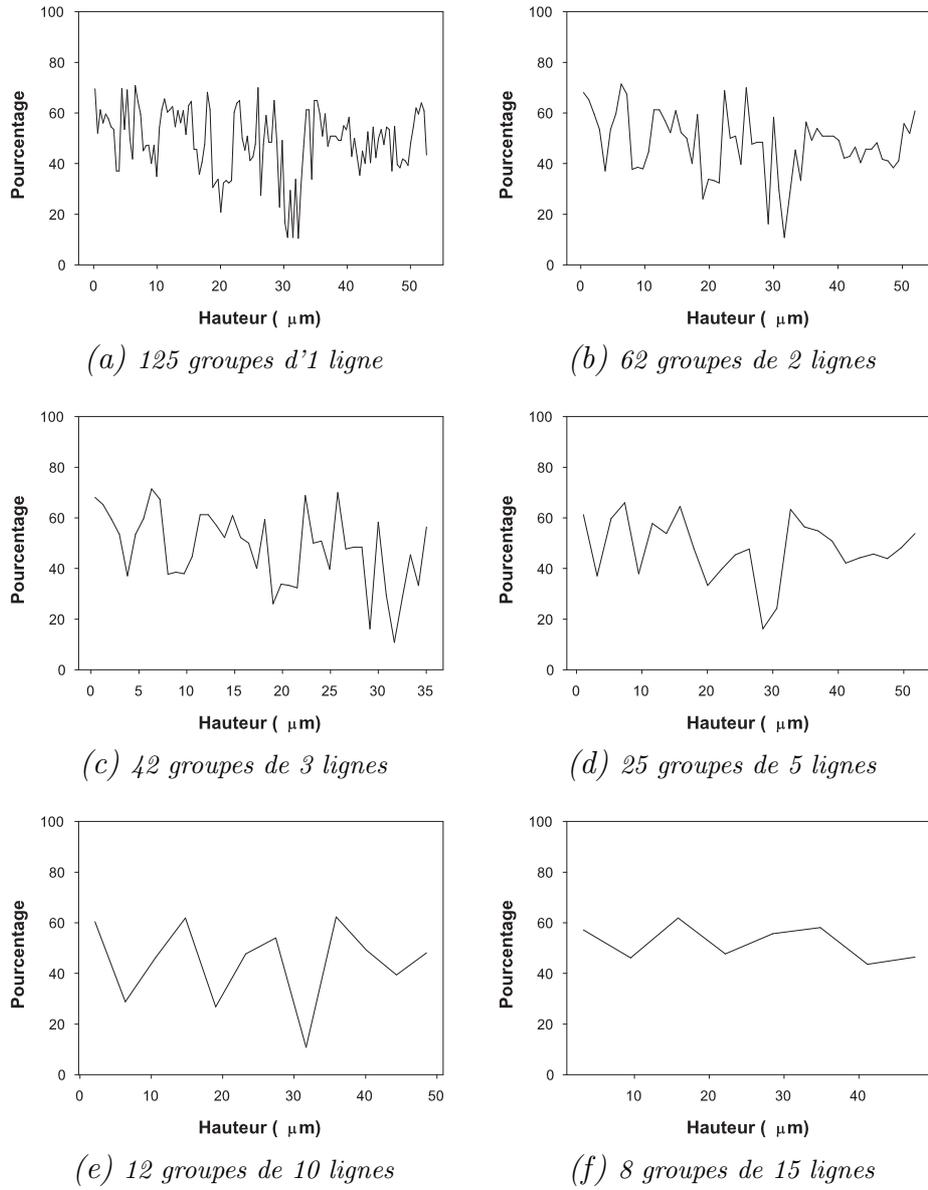


FIG. 5.9 – *Pixellisation. Cartes de pourcentages obtenues pour différentes divisions de la photo. L'image originale compte 125 lignes.*

Diamètre (μm)	23.2	104.1	180.2
Pourcentage (± 0.3)	16.7	16.4	16.5

TAB. 5.1 – *Pourcentage mesuré pour trois tailles différentes de bulles dans la gamme 10-100 μm .*

5.4 Profils d'intensité numériques.

5.4.1 Reconstruction numérique du système optique.

Géométrie.

Du fait de la symétrie du système, seule sa section a été reconstruite. La figure 5.10 montre donc (en vues de dessus) une photo du système et sa représentation numérique pour trois grossissements différents. A l'échelle centimétrique, la flûte et la lampe se reconnaissent, telles que sur la photo. Au niveau millimétrique (épaisseur de la paroi du verre), la fibre apparaît encore comme un point unique et presque invisible. Enfin, à l'échelle micrométrique, la fibre contenant la poche de gaz se révèle clairement. Elles sont toutes deux représentées par des ellipses. L'approximation la plus simple pour un tube aplati irrégulier est une pile d'ellipses de centres et de dimensions différents. Ainsi, la section de la poche de gaz est modélisée par une ellipse de demi grand axe a et de demi petit axe b . La section de la fibre est constituée de deux ellipses (puisque sa paroi possède une épaisseur) ayant toutes deux le même rapport a/b que celui de la poche de gaz.

Indices de réfraction.

Les indices de réfraction du gaz (air ou CO_2) et du verre ont été pris dans leurs approximations standards, respectivement 1 et 1.5. Celui du champagne a été mesuré à l'aide d'un réfractomètre (Euromex, The Netherlands) et vaut 1.344.

La structure de la fibre a déjà été détaillée : elle est poreuse et imbibée de liquide. Mais l'indice de réfraction de la fibre mouillée n'est pas connu. La cellulose sèche a un indice d'environ 1.5 [52, 53]. En général, l'opacité du papier est en partie due à la diffusion de la lumière réfractée par les microfibrilles. Cette réfraction est d'autant plus forte que l'indice relatif des fibres et du milieu dans lequel elles baignent est important (loi de Snell-Descartes). Cet indice est amoindri lors de l'imbibition de la fibre par le liquide, ce qui réduit la diffusion et confère à l'ensemble {microfibrilles + milieu} un indice de réfraction effectif [54]. C'est, par exemple, la raison pour laquelle une goutte d'huile rend du papier transparent, et c'est le principe de fabrication du papier calque. Le calcul de l'indice effectif du milieu résultant est très complexe. Il a semblé préférable d'effectuer des tests pour certaines géométries typiques avec les deux valeurs extrêmes permises (1.34 et 1.5). Les différences trouvées sont négligeables, comme le montre le tableau 5.2, ce qui rend insignifiante l'influence de l'indice effectif et en autorise donc l'utilisation d'une valeur approximative.

Les résultats présentés par la suite ont été calculés en utilisant, pour l'indice de réfraction de la fibre, la valeur moyenne entre les deux valeurs extrêmes, soit 1.422. Le tableau 5.3 résume les indices pris pour les différentes substances du système optique.

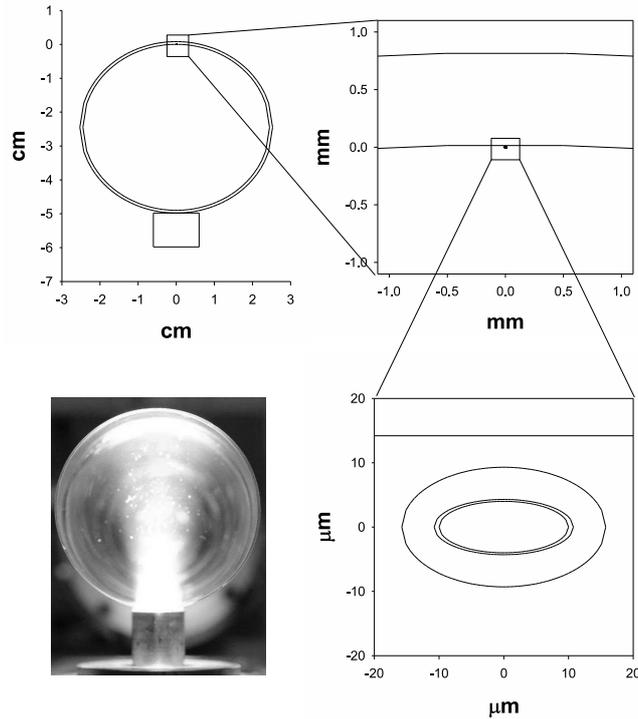


FIG. 5.10 – Reconstitution numérique du système optique. La photo en bas à gauche représente la flûte et la lampe vues de haut. Les trois vues numériques sont trois agrandissements du système numérique. Tout d’abord à l’échelle de la photo, la lampe et la flûte se reconnaissent. Puis, à l’échelle de la paroi de verre (millimétrique), le site peut être deviné. Enfin, à l’échelle de la fibre (micrométrique), les détails de la fibre telle qu’elle est modélisée sont révélés, avec sa paroi épaisse de cellulose et la poche de gaz à l’intérieur.

	Indice de réfraction	
	1.344	1.5
Épaisseur de fibre : $5 \mu\text{m}$	48.05%	49.58%

TAB. 5.2 – Pourcentages calculés pour les indices extrêmes possibles pour la paroi de la fibre.

Substance	Air	Verre	Champagne	Fibre	CO_2
Indice de réfraction	1	1.5	1.344	1.422	1

TAB. 5.3 – Indices de réfractons utilisés.

Omission de l'objectif de la caméra.

L'objectif de la caméra est le dernier obstacle entre la lumière et la matrice CCD de la caméra. Cet objectif est un ensemble complexe de lentilles dont les caractéristiques géométriques et indicielles sont inconnues. En revanche, la qualité de l'optique utilisée par le fabricant permet de supposer que cet objectif donne une réplique exacte de l'image qui lui arrive, à une homothétie près. Dès lors, il ne change pas les proportions ni la forme de l'image et peut donc être omis dans la reconstruction numérique du système.

Limite optique de l'empilement de sections planes.

Du point de vue de l'optique, la représentation du système complet par une superposition de sections horizontales n'est valable que sur une échelle grande devant les irrégularités verticales de la poche de gaz. En réalité, du fait des pentes locales, certains rayons ne restent pas dans le plan horizontal mais sont aussi déviés vers le haut ou vers le bas (figure 5.11). Ces rayons étant *ipso facto* ignorés par le découpage planaire du système, la méthode utilisée exclut la possibilité d'étudier finement la géométrie des fibres. Il faudrait, pour cela, travailler sur l'image globale et donc utiliser un traceur tridimensionnel, ce qui n'a pas été fait dans ce travail, car, ainsi que l'a montré la section précédente, les découpes trop fines (ligne à ligne) ne sont pas fidèles à la géométrie réelle de la fibre du fait du manque de résolution des images. Il est rappelé que les images sont divisées en zones contenant chacune une dizaine de lignes, ce qui représente 5 à 10% de la hauteur totale de la poche de gaz. Dans la mesure où cette dernière ne présente pas d'importantes variations d'épaisseur à cette échelle (ce qui se traduirait par une forte pente locale et donc par une déviation verticale significative de la lumière), ce problème peut être ignoré.

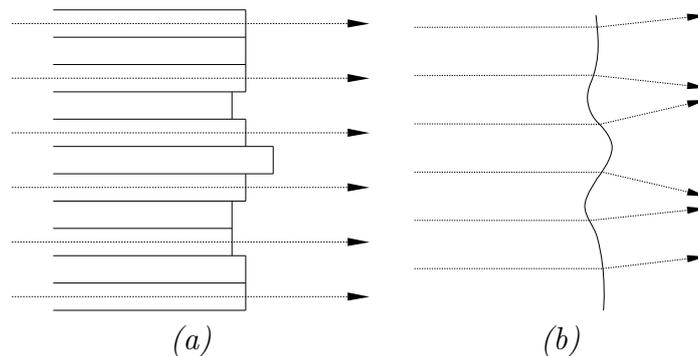


FIG. 5.11 – *Déviation verticale des rayons lumineux. Le bord de la poche est représenté de profil. (a) Méthode numérique : la lumière traverse chaque tranche elliptique en restant dans le plan de la section. (b) Poche réelle : la lumière est déviée verticalement. Dans les deux cas, la déviation horizontale, perpendiculaire au plan de la figure, n'est pas visible.*

5.4.2 Approximation paraxiale.

L'approximation de Gauss permet de calculer rapidement l'emplacement de l'image connaissant celui de l'objet mais elle exige des rayons faiblement inclinés et une symétrie axiale, conditions qui ne sont plus respectées dès que la poche est aplatie ou inclinée. Dans la pratique cette approximation a uniquement été utilisée dans le cas de la bulle (couplée à des rotations), pour valider les modèles plus complexes présentés plus loin. Il a, grâce à elle, été possible de vérifier l'indépendance théorique du pourcentage avec la taille de la bulle (figure 5.12), conformément à ce que l'expérience avait montré (tableau 5.1).

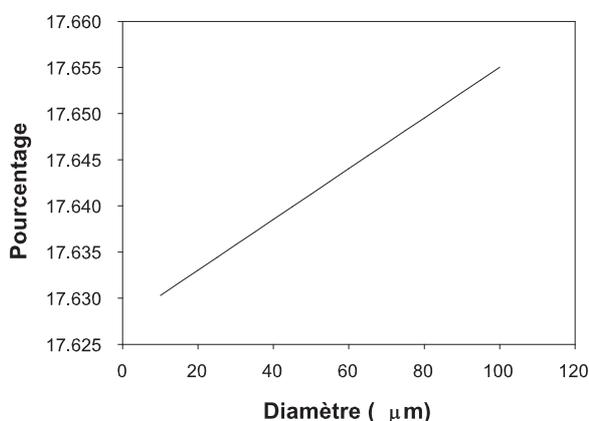


FIG. 5.12 – Vérification de l'indépendance du pourcentage avec la taille de la bulle dans l'approximation de Gauss. La variation se fait sur la deuxième décimale et est donc clairement négligeable.

5.4.3 Lancer de rayons inverse.

Le principe de cette méthode est illustré sur la figure 5.13. Un rayon de lumière partant de l'oeil (objectif) et croisant le plan d'observation est envoyé à travers le système optique. Chaque fois qu'il change de milieu, sa nouvelle direction est calculée par la loi de Snell-Descartes. S'il rencontre la lampe en sortant du système, le pixel correspondant à son intersection avec le plan d'observation est allumé. La lumière va de l'objectif à la source, d'où le nom de la méthode (en anglais : backward ray tracing).

Cette méthode n'est pas trop gourmande en temps de calcul, mais elle ne rend pas compte de l'extinction progressive des frontières des objets. Les pixels sont soit allumés, soit éteints, puisque les rayons ne contiennent pas d'information sur l'intensité. L'information est donc binaire et produit des profils droits, comme celui montré sur la figure 5.14. En conséquence, l'intensité des pixels frontaliers et donc les largeurs calculées sont légèrement surestimées.

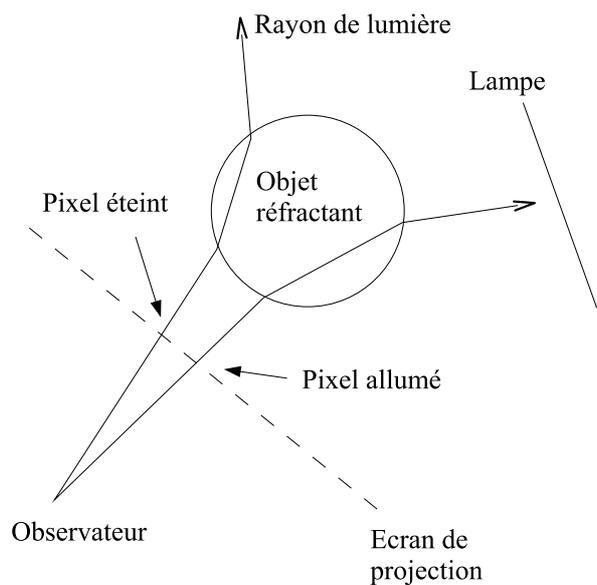


FIG. 5.13 – Principe du lancer de rayons inverse. La lumière va de l'observateur à la lampe en traversant le système optique. Chaque rayon croise l'écran d'observation en un pixel. Si un rayon sortant rencontre la lampe, le pixel qui lui correspond sur l'écran est allumé.

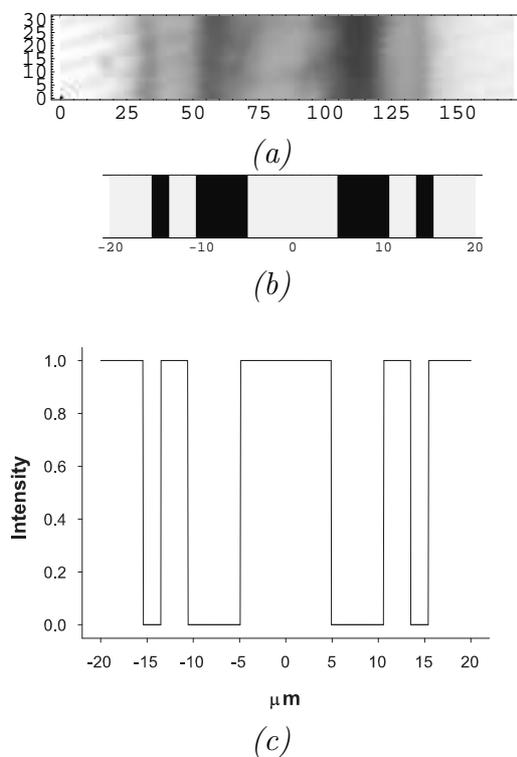


FIG. 5.14 – Profil et reconstitution obtenus par lancer de rayons inverse. (a) Image originale (pour comparaison). (b) Reconstitution obtenue d'après le profil numérique. (c) Profil numérique obtenu pour 1000 rayons lancés.

5.4.4 Lancer de rayons conforme.

Afin d'obtenir des informations sur l'intensité, et donc des profils plus proches de ceux mesurés, une autre méthode a été imaginée, consistant cette fois à envoyer les rayons lumineux dans le bon sens, c'est-à-dire de la lampe vers l'objectif. L'image de la lampe est reconstituée point par point en envoyant depuis chaque point un faisceau de lumière constitué d'un nombre fini de rayons. Les rayons partant d'un point de la lampe quittent le système avec des orientations différentes (figure 5.15). En principe, l'image du point se situe à l'endroit d'où les rayons émergents semblent provenir, c'est-à-dire à l'endroit de leur intersection. Mais le système optique est astigmatique et, par conséquent, les rayons ne se croisent pas en un point unique, mais forment une caustique (figure 5.16).

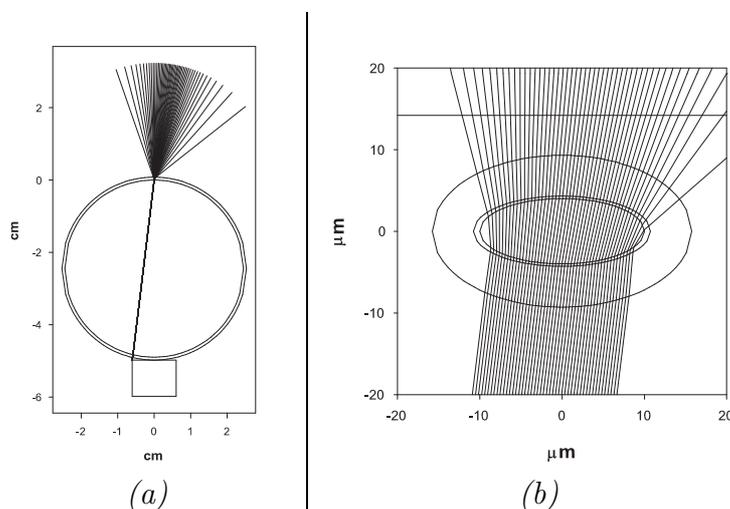


FIG. 5.15 – Lancer de rayons à travers le système optique. (a) À l'échelle de la flûte. (b) À l'échelle de la fibre. Le faisceau initial de rayons ressort très divergent après son passage à travers la poche de gaz. En (a), les rayons ont tous la même longueur optique, donc la même phase. L'extrémité sortante du faisceau donne donc l'allure du front d'onde, quasi circulaire, et donc de courbure quasi constante. Cette caractéristique permettra de supposer avec une bonne approximation que tous les rayons transportent une énergie identique.

Profil d'intensité pour un point.

Landau et Lifchitz [55] montrent que chaque rayon transporte une énergie proportionnelle à la courbure gaussienne du front d'onde du faisceau. Les rayons apparaissant sur la figure 5.15 ont tous la même longueur optique (\sum longueurs \times indices) et donc la même phase. Par suite, l'extrémité du faisceau est un front d'onde, qui apparaît pratiquement circulaire, ce qui signifie que sa courbure peut, en première approximation, être considérée comme constante. En conséquence, les rayons du faisceau transportent

tous la même énergie. Un profil d'intensité est une densité d'énergie. Puisque chaque rayon apporte la même énergie, la densité d'énergie est proportionnelle à la densité de rayons. La forme du profil d'intensité sur un plan choisi sera donc donnée par la densité de rayons frappant ce plan (figure 5.16). Cela montre de quelle façon le plan de mise au point détermine la netteté de l'image.

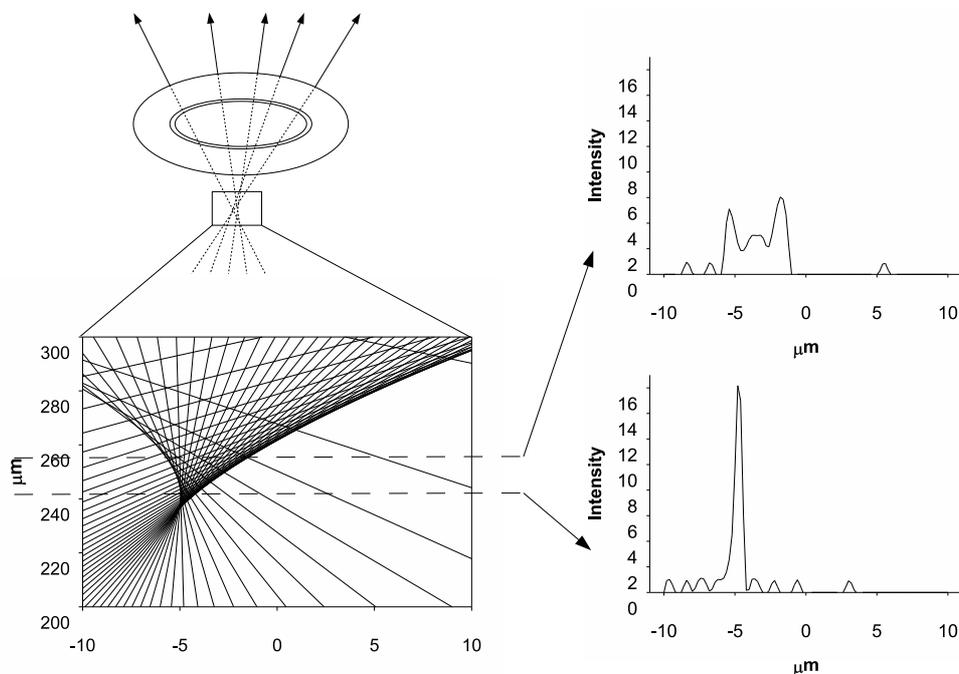


FIG. 5.16 – *Obtention du profil d'intensité d'un point de la source. Les directions des rayons émergents sont prolongées jusqu'à leur intersection, qui est une caustique. La densité de rayons dans un plan choisi donne le profil d'intensité dans ce plan. Plus le profil d'intensité est étroit, plus l'image de ce point (qui, idéalement, est un pic de Dirac) est nette.*

Profil complet.

Les différents points de la lampe émettant des photons non cohérents, le profil d'intensité de l'image de la lampe se construit en additionnant les profils obtenus pour chaque point. La figure 5.17 présente deux profils complets obtenus en répartissant respectivement 6 et 50 points sources sur la lampe. La figure 5.17 a été calculée avec 70 rayons par point. Pour les résultats suivants, les calculs ont été menés avec 50 points envoyant chacun 1000 rayons.

Obtention d'un profil moyen.

En pratique, puisqu'on travaille avec un nombre fini de points et de rayons, les profils présentent des irrégularités légères, qui apparaissent clairement sur la figure 5.17 calculée

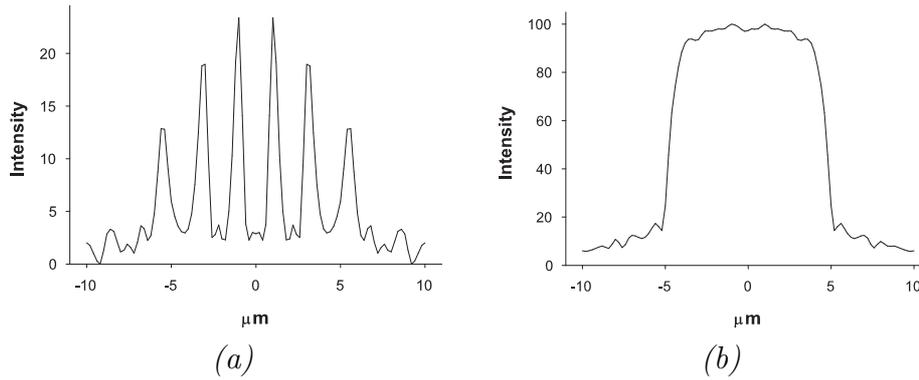


FIG. 5.17 – Formation du profil complet pour la poche de gaz seule. (a) profil obtenu avec 6 points. (b) Profil obtenu avec 50 points. La forme générale du profil se devine en (a) et apparaît pleinement en (b).

avec un nombre restreint de rayons par point), et qui peuvent influencer la détermination des positions des pentes maximales. Le pourcentage trouvé dépend alors du choix du plan de mise au point. Ce plan est, en principe, choisi à l'endroit où le profil complet est le plus étroit, et donc où l'image est la plus nette. Mais l'image et la zone de netteté s'étendent dans l'espace, ce qui rend le choix d'un plan unique parfois arbitraire. En termes photographiques, la profondeur de champ rend arbitraire le choix d'un plan de mise au point. L'extension spatiale de l'image est illustrée sur la figure 5.18 pour un point unique.

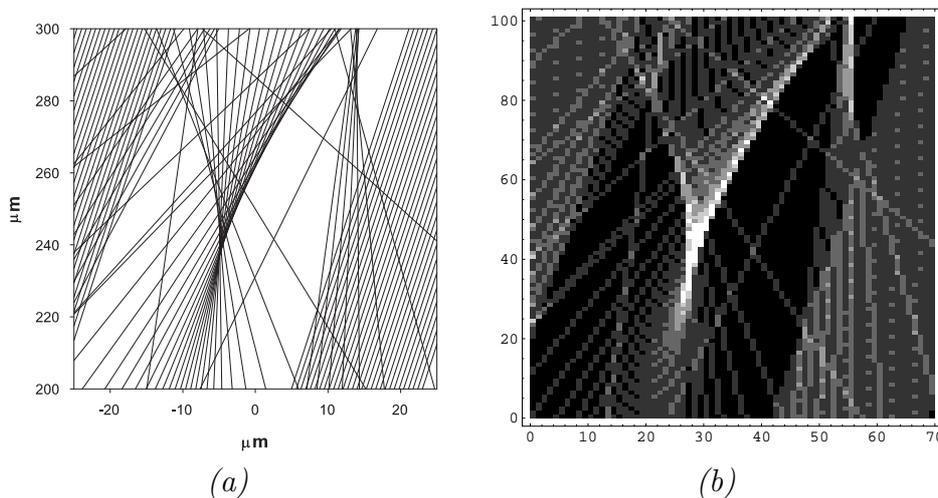


FIG. 5.18 – Obtention d'une représentation spatiale de l'image d'un point unique de la lampe. (a) Caustique. (b) Densité horizontale de rayons dans la caustique. La disposition de la caustique est la même que pour la figure 5.16, mais tous les rayons sont montrés, y compris ceux qui ne passent pas par la poche de gaz. Les deux représentations (a) et (b) sont vues de dessus. Elles contiennent la même information représentée différemment, en (a) sous forme de rayons et en (b) sous forme de densité de rayons.

On peut simuler la présence d'un diaphragme en ne sélectionnant que les rayons passant à l'intérieur d'une zone située à l'emplacement de l'objectif. En éliminant ainsi les rayons périphériques qui rendent l'image moins nette loin de la mise au point, la profondeur de champ est augmentée. Ce phénomène est illustré sur la figure 5.19, sur laquelle quatre représentations spatiales de la même image sont montrées pour quatre fermetures d'objectif différentes.

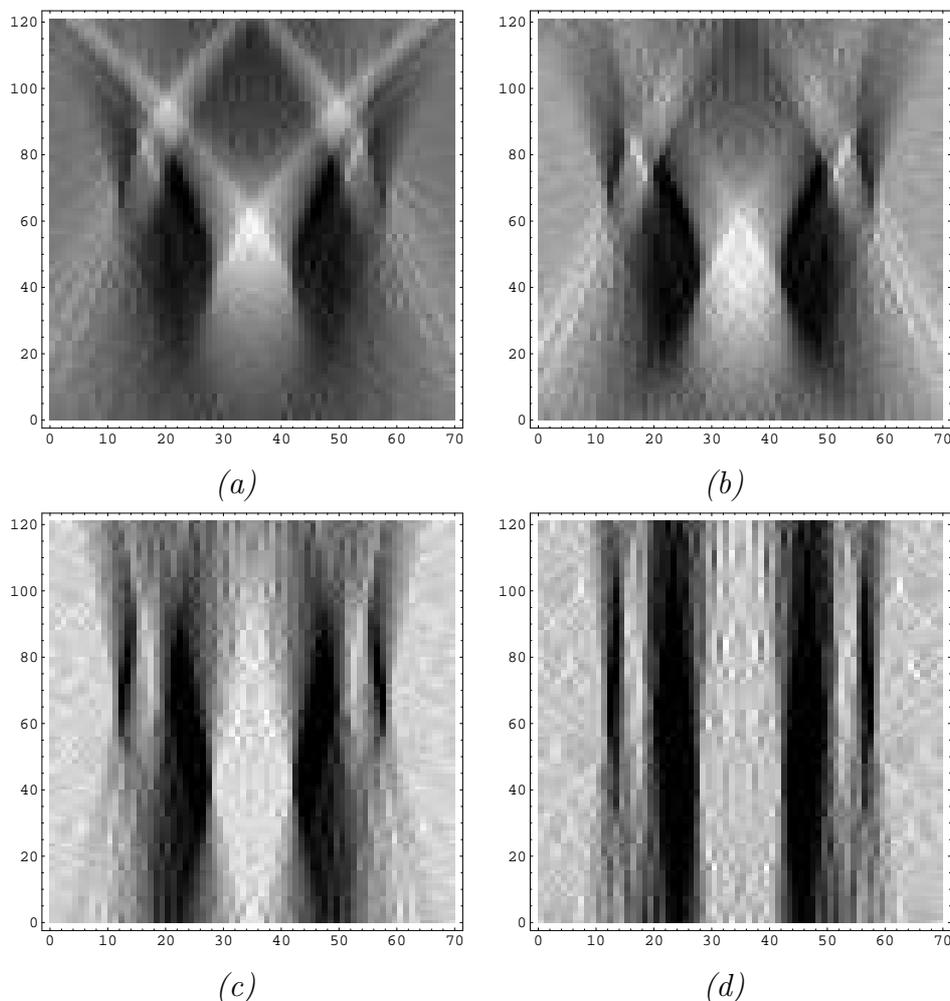


FIG. 5.19 – Influence du diaphragme. Ces figures sont construites comme la figure 5.18, mais avec tous les points de la lampe. Le diamètre \varnothing de l'objectif est progressivement diminué. (a) \varnothing (b) $\frac{\varnothing}{2}$ (c) $\frac{\varnothing}{5}$ (d) $\frac{\varnothing}{10}$. La zone la plus étroite s'étend avec la fermeture du diaphragme (augmentation de la profondeur de champ).

Le fort grossissement impliqué par la taille minuscule des fibres entraîne une très faible profondeur de champ et nécessite donc la fermeture du diaphragme. Expérimentalement, le diaphragme réel étant en général fermé à environ $\frac{\varnothing}{5}$, son analogue numérique a également été réduit à cette valeur. Les calculs ont ainsi été réalisés dans les conditions de la figure 5.19(c), donc avec une zone de netteté assez longue. Dans le double but d'éviter un choix arbitraire du plan de mise au point et de lisser les profils, une moyenne a

systématiquement été faite sur les lignes de la zone de netteté, ce qui représente en général entre 10 et 20 lignes. Un exemple de ce type de reconstitution est donné sur la figure 5.20. Le profil numérique (figure 5.20(b)) reproduit correctement le profil expérimental (figure 5.20(a)). Le pic central est plus élevé dans le profil numérique que dans le profil expérimental parce que l'absorption de lumière n'est pas prise en compte dans la modélisation. En effet, une partie de l'énergie de la lumière est absorbée par la fibre lors de sa traversée, ce qui se traduit par une diminution de l'intensité centrale dans le profil expérimental, inexistante par construction dans le profil numérique.

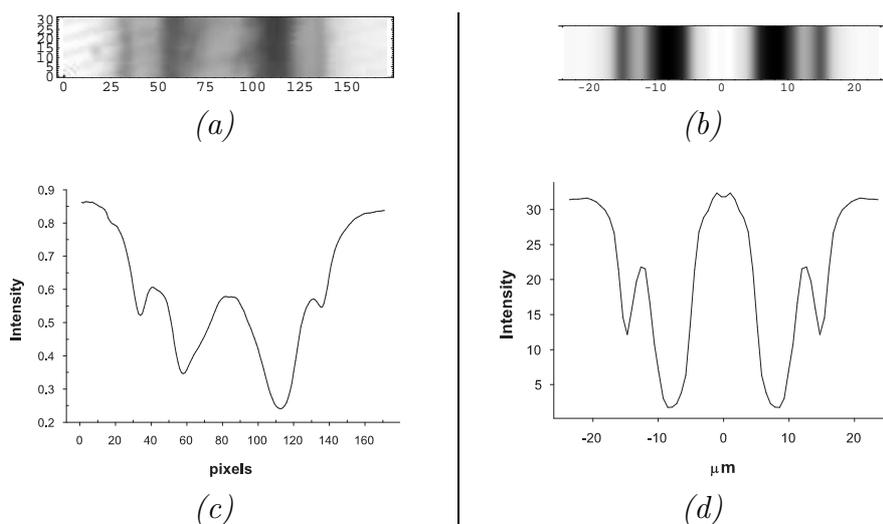


FIG. 5.20 – Profil et reconstitution obtenus par lancer de rayons conforme. (a) Photo originale. (b) Reconstitution d'après le profil numérique. (c) Profil expérimental obtenu d'après la photo. (d) Profil numérique. Le pic central est plus important dans le profil numérique car l'absorption de la lumière n'est pas prise en compte.

5.4.5 Validation des méthodes numériques.

Afin de comparer et de valider les méthodes présentées, celles-ci ont été appliquées à la bulle, seul objet dont la forme soit connue. Le tableau 5.4 résume les résultats obtenus expérimentalement et numériquement. Les trois méthodes donnent des résultats corrects, mais la méthode de lancer conforme semble légèrement plus précise que les deux autres. C'est donc elle qui a été utilisée dans la suite du travail.

La figure 5.21 compare une bulle expérimentale avec une reconstitution numérique de bulle par lancer conforme. Le profil expérimental a été obtenu sur la tranche centrale de la bulle, ce qui représente une épaisseur d'une dizaine de lignes.

Le tableau 5.4 et la figure 5.21 valident les méthodes optiques (en particulier le lancer conforme) qualitativement et quantitativement.

	Expérience	Gauss	Lancer inverse	Lancer conforme
Pourcentage	16.7 ± 0.2	17.6	17.2	16.5

TAB. 5.4 – Comparaison des trois méthodes et de l'expérience pour une bulle. Dans l'expérience, le pourcentage est calculé sur la tranche centrale de la bulle. Le lancer de rayons conforme est légèrement plus précis que les deux autres, ce qui a déterminé son utilisation pour des géométries inconnues.

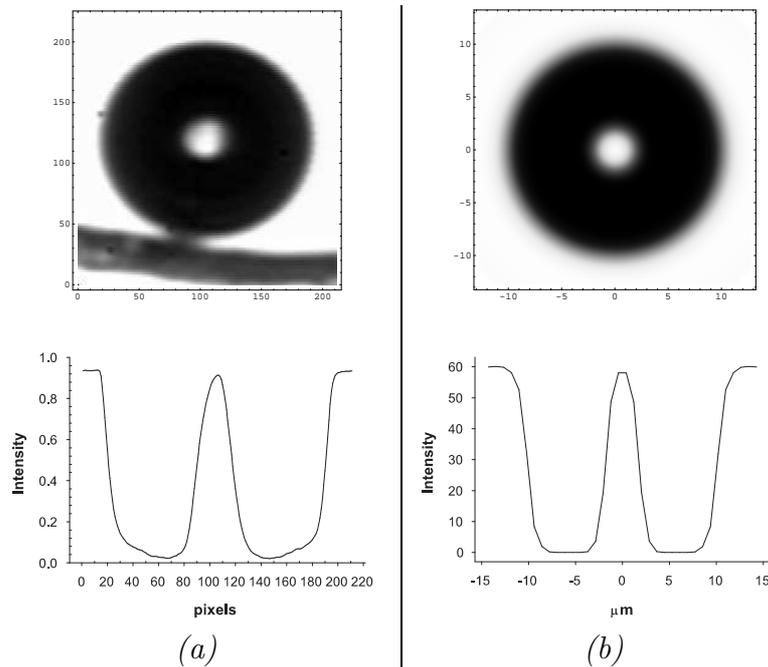


FIG. 5.21 – Validation de la méthode de lancer conforme dans le cas de la bulle. (a) Bulle expérimentale. (b) Bulle théorique. Les intensités sont exprimées en unités arbitraires.

5.5 Angle d'inclinaison de la fibre.

La fibre, quoique immobile, peut être collée à la paroi du verre de plusieurs façons. Elle n'est donc pas forcément vue de face. Afin de déterminer les effets potentiels de son inclinaison, un profil a été calculé pour différents angles de 0 à 90 degrés par lancer inverse, utilisé ici pour sa rapidité. Les résultats sont montrés sur la figure 5.22. Au fur et à mesure de la rotation, le pourcentage occupé par la tache blanche diminue conformément à ce qui est attendu, et la tache elle-même se décale pour, finalement, revenir au centre lorsque la symétrie de la fibre est retrouvée à angle droit. Idéalement, pour une géométrie donnée (*ie.* un rapport a/b), ces résultats devraient permettre d'associer un angle d'inclinaison à chaque couple (pourcentage, décalage). Ainsi, en répétant ce travail pour toutes les géométries, il serait possible de trouver une bijection entre les couples $(a/b, \text{angle})$ et $(\text{pourcentage}, \text{décalage})$. Ceci permettrait, en principe, de déterminer la géométrie et l'angle d'inclinaison de la fibre en mesurant, sur la photo, le pourcentage et le décalage du centre de la tache blanche par rapport à celui de la poche. Le calcul des tables numériques requises ne pose aucun problème, mais la trop faible résolution des photos interdit l'exploitation quantitative de cette idée, qui n'a donc pas été investiguée plus avant.

5.6 Reconstruction de poches de gaz.

5.6.1 Principe.

L'optique numérique fournit un profil d'intensité pour chaque géométrie possible de la poche de gaz. Les différents pourcentages correspondant à chaque géométrie sont calculés en faisant varier la profondeur de la poche, *ie.* en faisant varier b pour une valeur de a fixée. Une relation apparaît ainsi entre le rapport a/b et le pourcentage qui lui correspond (figure 5.23(a)). Les couples $(a/b, \text{pourcentage})$ obtenus sont ensuite fittés par un polynôme ce qui permet d'exprimer le pourcentage en fonction de la géométrie :

$$\text{pourcentage} \approx 1945.9 + 54.9 \left(\frac{a}{b}\right) - 3758 \left(\frac{a}{b}\right)^{\frac{1}{2}} + 16817.3 \left(\frac{a}{b}\right)^{\frac{1}{3}} - 15044.9 \left(\frac{a}{b}\right)^{\frac{1}{4}} \quad (5.2)$$

Le degré du polynôme dans l'équation 5.2 a été choisi pour reproduire les données numériques à 0.5%. L'équation 5.2 (figure 5.23(b)) est un pont entre l'expérience et la théorie puisqu'elle fournit la valeur du rapport a/b pour un pourcentage mesuré.

En mesurant le pourcentage de place occupée par la tache blanche pour chaque tranche de l'image originale, il devient possible, grâce à l'équation (5.2), d'en déduire l'épaisseur de la poche de gaz pour chacune de ses tranches, et ainsi, de la reconstituer complètement. Le schéma suivant résume l'ensemble de la procédure :

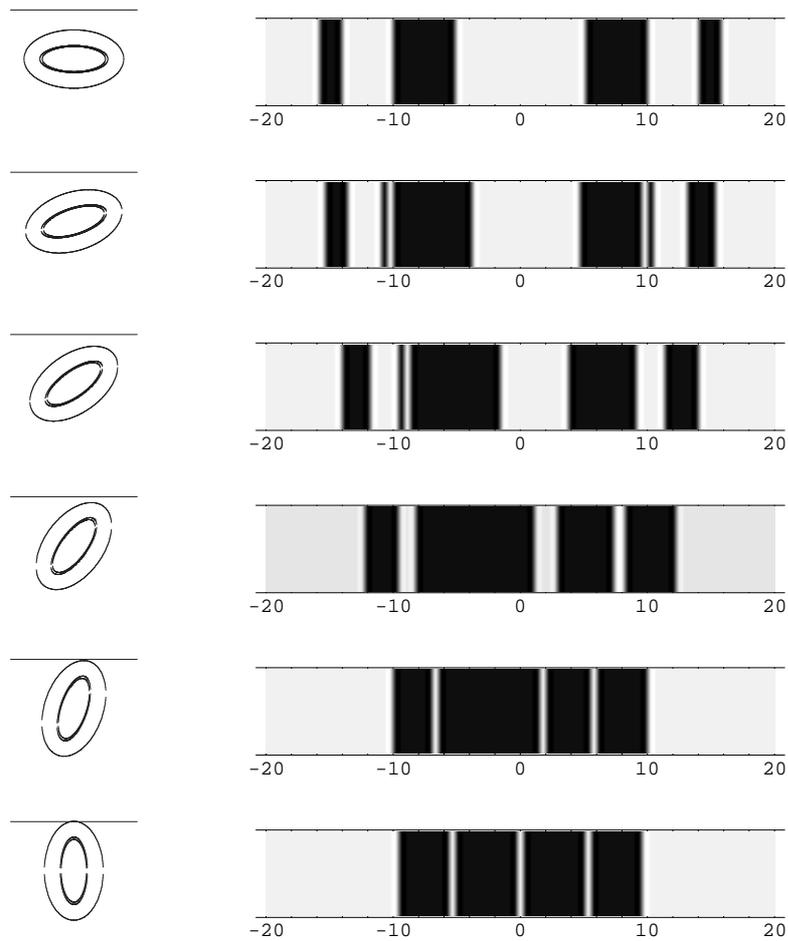


FIG. 5.22 – Variation de l'image reconstituée avec l'angle d'inclinaison de la fibre. Il apparaît que la tache centrale se déplace en même temps qu'elle rétrécit. Idéalement, le couple (déplacement, largeur) devrait permettre de déterminer l'épaisseur et l'angle d'observation de la poche, mais les résultats expérimentaux ne se sont pas révélés suffisamment précis pour autoriser l'exploitation de cette idée.

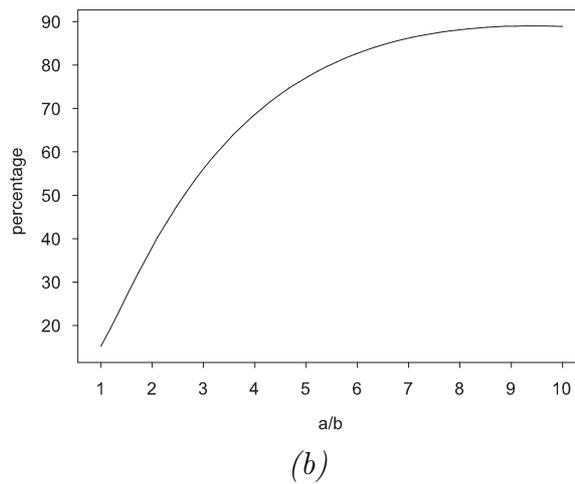
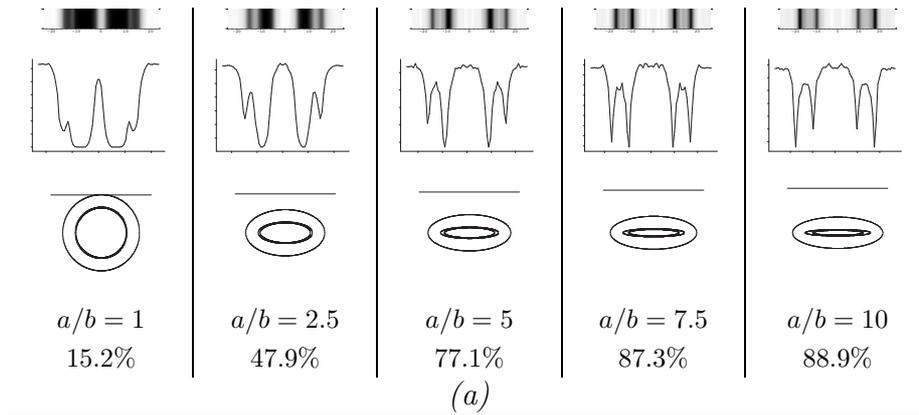
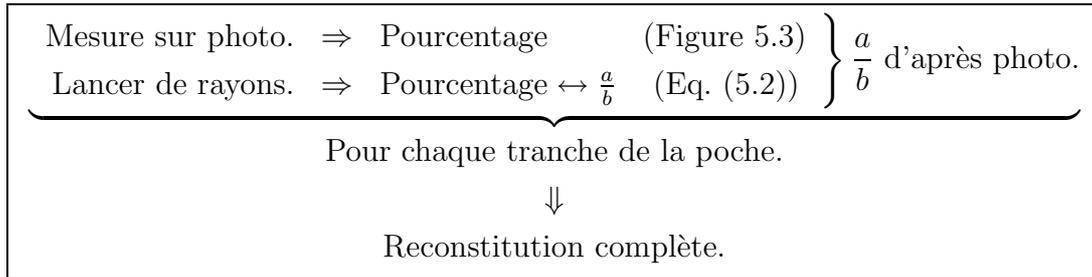


FIG. 5.23 – Variation du profil avec la géométrie. (a) Pour cinq géométries différentes. (b) Courbe complète. En (a), on a fait figurer de haut en bas dans chaque cas : l'image numérique reconstituée, le profil numérique calculé, une vue du dessus de la géométrie utilisée, le rapport a/b correspondant, et le pourcentage obtenu grâce au profil. La courbe (b) est constituée d'un grand nombre de couples $(a/b, \%)$.



5.6.2 Résultats.

Les figures 5.24 et 5.25 présentent les reconstitutions complètes de la poche de gaz qui a illustré ce chapitre (figure 5.24) et de deux autres exemples (figure 5.25) [51]. Sur la figure 5.25, les traitements intermédiaires de la photo originale sont omis.

Pour une poche de gaz donnée, il est possible de moyenniser les rapports a/b de toutes ses tranches pour obtenir un rapport $(a/b)_{moy}$ moyen qui représente l'aplatissement général de la poche. Le tableau 5.5 donne les rapports moyens trouvés pour quelques sites. Ces rapports vont de 1.5 à 2.7, montrant clairement que les poches de gaz ne sont pas cylindriques. Les aplatissements donnés par conservation du volume de gaz ($\pi ab\Delta z = 4\pi r_b^3/3$) sont en assez bon accord (à un cas près) avec les résultats optiques.

Site n°	Aplatissement a/b	
	Optique	Conservation du volume
1	1.7	1.5
2	1.5	0.7
3	1.6	1.8
4	2.3	1.8
5	1.7	1.5
6	1.7	1.6
7	1.6	1.5
8	2.7	2.2
9	2.3	2.3
10	1.8	1.5
11	2.5	2.7
12	2.6	1.6

TAB. 5.5 – *Rapports a/b moyens obtenus pour 12 sites. Chaque rapport est la moyenne des valeurs obtenues pour les tranches du site et donne une idée de l'aplatissement général de la poche de gaz. La colonne de droite présente les aplatissements obtenus par conservation du volume. Hormis pour les sites 2 et 12, la correspondance est assez bonne, compte tenu des approximations faites. Il apparaît ainsi clairement que les fibres ne sont pas cylindriques.*

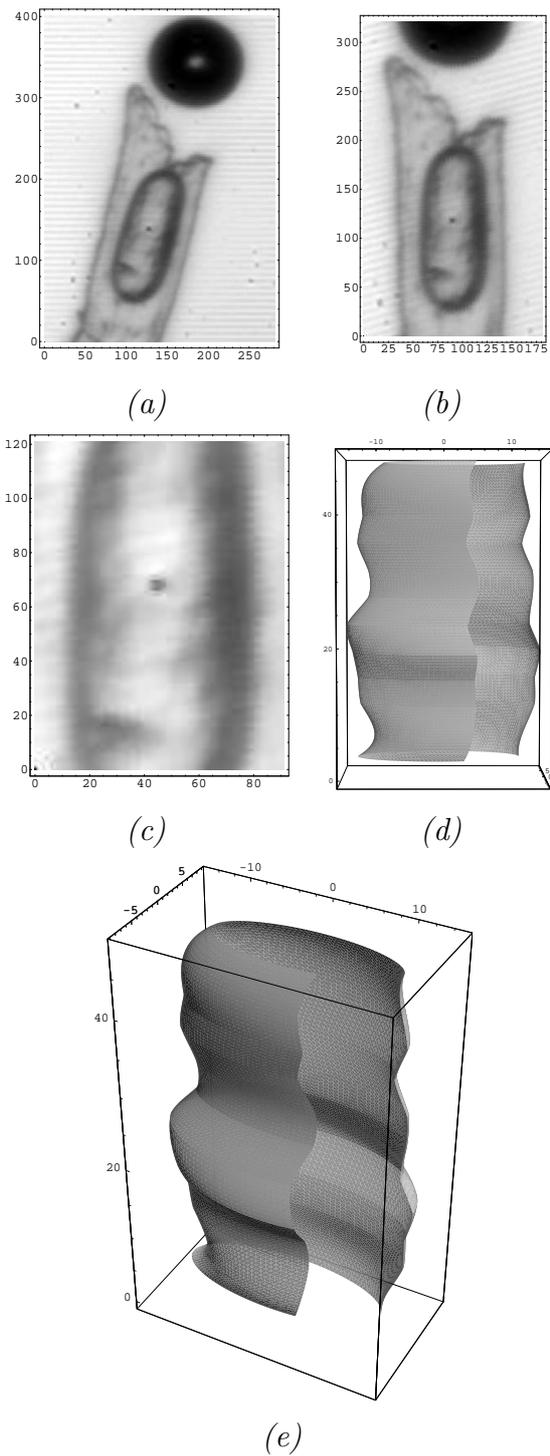


FIG. 5.24 – Exemple complet de reconstitution 3D. (a) Photo originale. (b) Rotation de la photo pour l'amener en position horizontale. (c) Détail de la poche de gaz. (d) Reconstitution 3D vue de face. (e) Reconstitution 3D vue de 3/4. La comparaison entre (c) et (d) révèle comment les défauts optiques influencent le résultat. La photo a été divisée en 12 zones de 10 lignes.

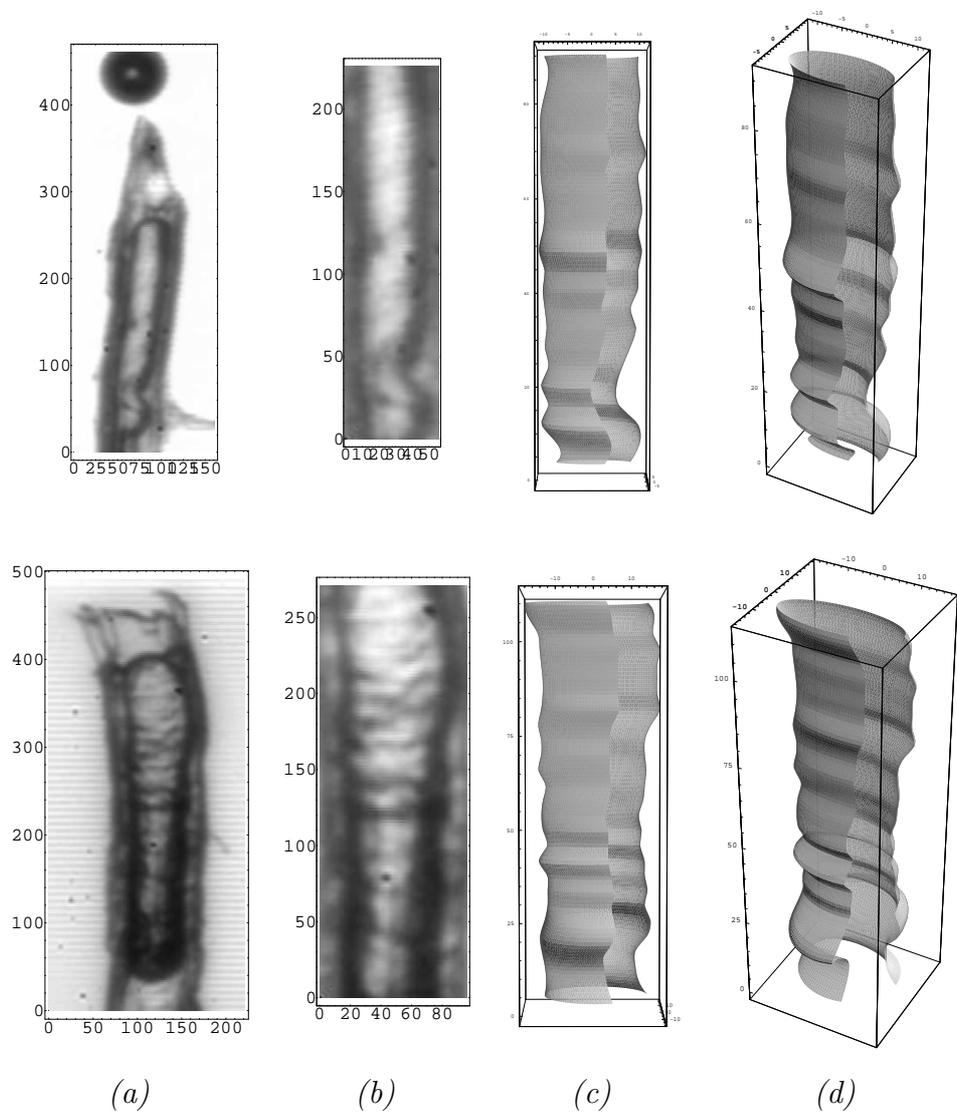


FIG. 5.25 – Deux exemples de reconstitution 3D. (a) Photos originales. (b) Détails des poches de gaz. (c) Reconstitutions 3D vue de face —comparer avec (b)—. (d) Reconstitutions 3D vue de 3/4. Le site du haut a été divisé en 22 zones de 10 lignes, celui du bas en 27 zones de 10 lignes.

5.6.3 Vérification à l'aide de fibres en rotation.

Il a été possible de filmer quelques fibres en rotation (figure 5.26), ce qui permet de les observer sous plusieurs angles. Ces opportunités sont rares car les fibres libres se déplacent rapidement dans toutes les directions, rendant le suivi et la mise au point très difficiles. Néanmoins, les quelques exemples enregistrés montrent des rapports largeur/épaisseur compris entre 2 et 3, en bon accord avec les résultats de cette étude.

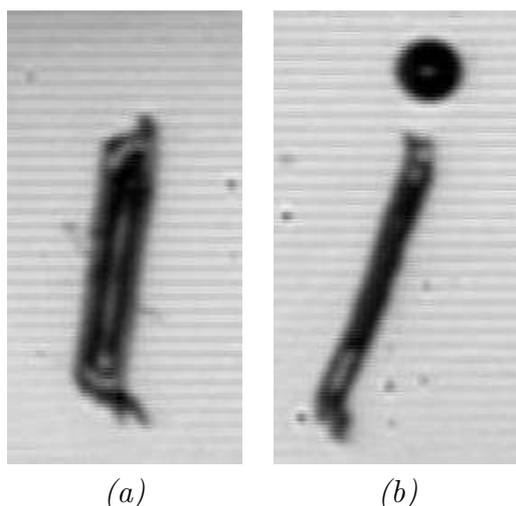


FIG. 5.26 – Exemple de fibre en rotation.

5.7 Résumé.

Après l'exposition de l'idée générale de la méthode (section 5.2), le protocole d'obtention de données expérimentales est détaillé (section 5.3), ce qui comprend l'acquisition des profils d'intensité (sections 5.3.1 et 5.3.2) et la discussion des éventuels problèmes qui y sont liés (sections 5.3.3 et 5.3.4).

La construction de profils numériques est ensuite abordée (section 5.4), incluant la représentation numérique du système (section 5.4.1), la présentation des méthodes possibles et leurs caractéristiques (sections 5.4.1 à 5.4.4) et leur validation (section 5.4.5).

L'influence de l'angle sous lequel se présente la fibre est ensuite examinée dans la section 5.5.

Enfin, les fibres sont reconstruites dans l'espace (section 5.6) par une méthode expliquée en section 5.6.1. Les résultats sont présentés (section 5.6.2) puis validés (section 5.6.3).

5.8 Conclusion.

Trois méthodes optiques ont été utilisées pour révéler la forme spatiale interne des fibres d'après des photographies. Les atouts et inconvénients de chaque méthode ont été discutés. La bulle, de géométrie connue, a été utilisée pour valider ces méthodes avant leur application sur des objets de forme inconnue. La reconstitution numérique des fibres en trois dimensions donne ainsi accès à leurs irrégularités à échelle moyenne (les irrégularités fines sont masquées par la faible résolution des photos et les incertitudes optiques). L'aplatissement moyen a pu être calculé pour chaque fibre et il a été trouvé que le rapport des axes des sections elliptiques modélisant les fibres dans ce travail est compris entre 1.5 et 2.7, en bon accord avec un calcul approximatif de conservation du volume de gaz.

Chapitre 6

Description de la libération de la bulle.

Sommaire

6.1	Introduction.	113
6.2	Description.	114
6.2.1	Une séquence complète.	114
6.2.2	Vidage de la poche.	115
6.2.3	Rupture.	115
6.2.4	Quelques données.	118
6.3	Quelques tentatives d'explications.	118
6.3.1	Rayons des bulles.	118
6.3.2	Temps de libération.	123
6.3.3	Temps de rupture.	126
6.4	Résumé.	131
6.5	Conclusion.	131

6.1 Introduction.

La libération des bulles est une étape très courte mais essentielle dans leur cycle de production. Le chapitre 3 a montré qu'elle se déroule en deux étapes principales : le vidage de la poche dans la bulle (qui correspond à l'éjection de cette dernière hors de la fibre), puis sa rupture, correspondant au détachement de la bulle. Ce chapitre est dédié à la description détaillée de ces phénomènes.

6.2 Description.

6.2.1 Une séquence complète.

La figure 6.1 représente une séquence typique de libération et permet d'en identifier les étapes. Lorsque la poche de gaz, qui grossit continuellement par absorption de CO_2 , atteint l'extrémité de la fibre (figure 6.1a), elle commence à émerger, jusqu'à former une calotte semi sphérique de rayon égal à celui de la fibre (figure 6.1b). Les surpressions aux deux extrémités de la poche sont identiques puisque les courbures le sont.

Dès que la hauteur de la calotte devient supérieure au rayon de la fibre, les forces de tension de surface la poussent à adopter une forme sphérique. Son rayon augmente alors (figure 6.1c), ce qui a pour effet de diminuer la surpression dans la calotte et donc de favoriser son grossissement. Le phénomène, auparavant résistant, s'auto amplifie et devient moteur. Sous l'effet de la différence entre la pression à l'arrière de la poche (constante) et celle à l'avant (qui diminue), la poche de gaz se vide dans la calotte. Ce vidage dure entre 1 et 4 millisecondes en général.

Après quoi l'interface se rompt pour libérer la bulle (figure 6.1d). Cette dernière possède en général un rayon légèrement supérieur à celui de la fibre. La rupture est un phénomène très rapide, que la fréquence des images (1000 à 1500 par seconde) ne permet pas de résoudre. On peut donc seulement affirmer qu'il prend moins d'une milliseconde.

Une fois la bulle libérée, la partie restant dans la poche reprend sa forme initiale. Son extrémité après la rupture se situe toujours à une distance environ égale au diamètre de la bulle (figure 6.1e).

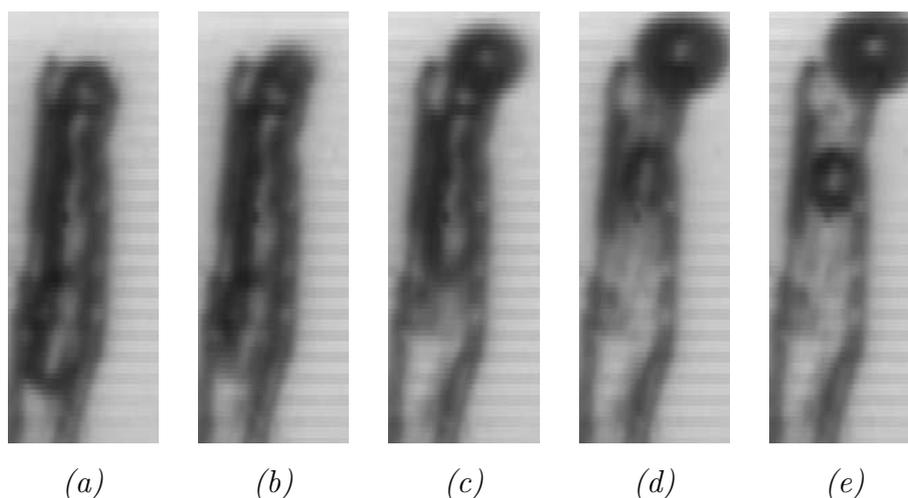


FIG. 6.1 – Une séquence typique complète ($1500 \text{ images.s}^{-1}$). (a) et (b) La poche grossit et commence à émerger. (c) Elle se vide dans la bulle. (d) La bulle est libérée par rupture de l'interface liquide-gaz. (e) La poche restée à l'intérieur retrouve son état initial, à une distance d'environ un diamètre de bulle du bord de la fibre.

6.2.2 Vidage de la poche.

Dans toute la suite, on considèrera que l'*avant* de la poche est la partie qui donne sur l'ouverture de la fibre (en haut sur la figure 6.1) et que l'*arrière* est celle qui donne sur l'intérieur de la fibre (en bas sur la figure 6.1).

Le vidage de la poche s'effectue en général par l'arrière (figures 6.1 et 6.2). Ce phénomène dure de 2 à 4 millisecondes suivant les sites, sans qu'il soit possible d'être plus précis car on atteint les limites de résolution temporelle de la caméra. On retiendra donc un ordre de grandeur d'environ $\Delta t \approx 3ms$. La perte de longueur Δz de la poche vaut environ $30\mu m$, ce qui indique une vitesse de l'interface de l'ordre du centimètre par seconde $v \approx 1cm.s^{-1}$.

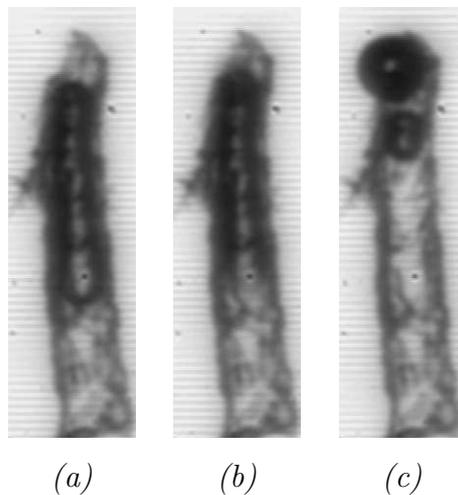


FIG. 6.2 – Vidage de la poche par l'arrière. Il s'écoule 2ms entre chaque image.

Il arrive toutefois, rarement, que le vidage soit beaucoup plus lent (figure 6.3). La séquence de la figure 6.3 dure environ 15ms et est suffisamment longue pour permettre une évaluation de la vitesse instantanée de l'interface. On peut ainsi constater que cette vitesse est à peu près constante (figure 6.3g).

On constate également l'existence d'un autre mécanisme de vidage que celui décrit précédemment. Il arrive en effet fréquemment que la poche de gaz ne bouge pratiquement pas et se vide par l'avant (figure 6.4). Dans ce cas, le vidage est en général plus rapide (entre 1 et 2ms).

6.2.3 Rupture.

La séquence 6.5 est une des rares qui laissent entrevoir la rupture de la poche et de la bulle. On y distingue l'apparition d'un étranglement, dont la courbure est de l'ordre de grandeur de celle de la bulle (figure 6.5b).

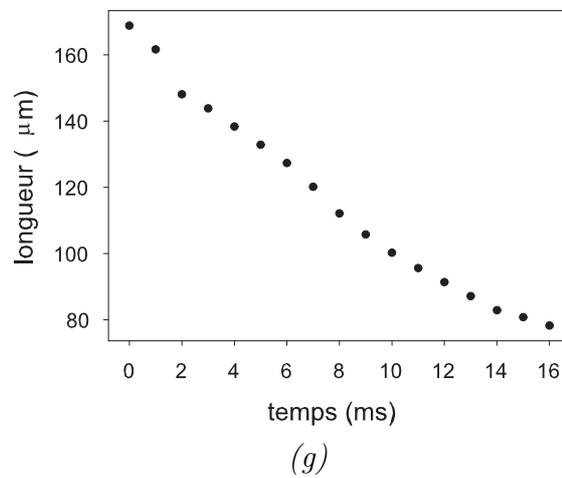
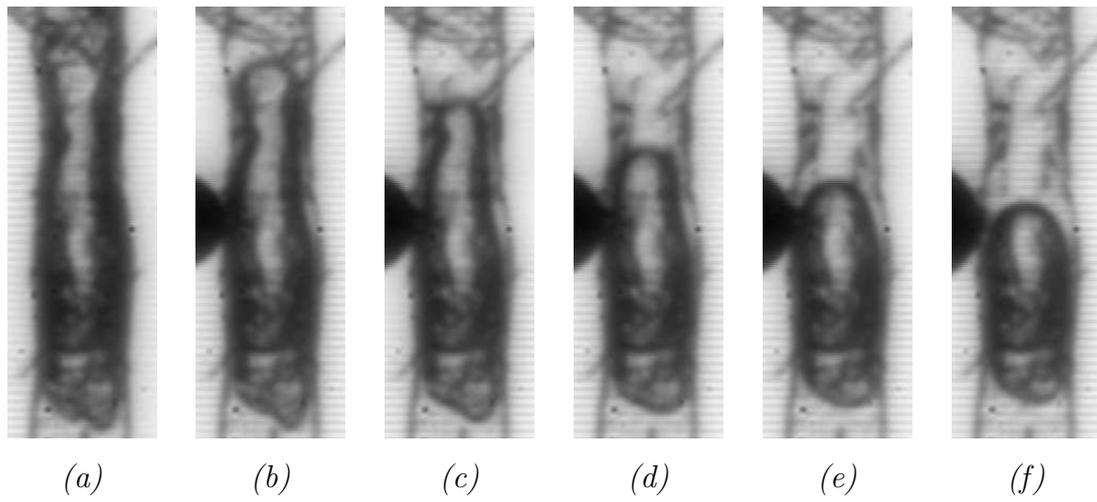


FIG. 6.3 – Vidage inhabituellement lent. Il s'écoule 3ms entre chaque image. En (g), la longueur de la poche en fonction du temps est une droite, signifiant que la vitesse est constante.

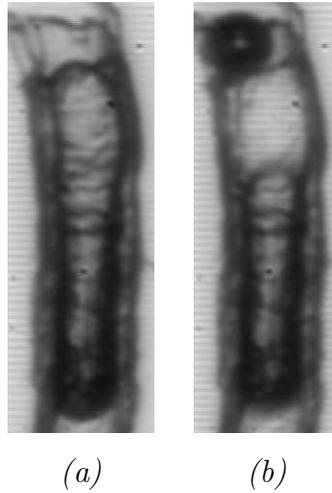


FIG. 6.4 – Vidage de la poche par l'avant. Il s'écoule 2ms entre les deux images. Le phénomène est plus rapide que le vidage arrière présenté dans la figure 6.2. On peut aussi remarquer que la tache blanche de la poche y est beaucoup plus large (proportionnellement), signe que la poche est plus plate (chapitre 5).

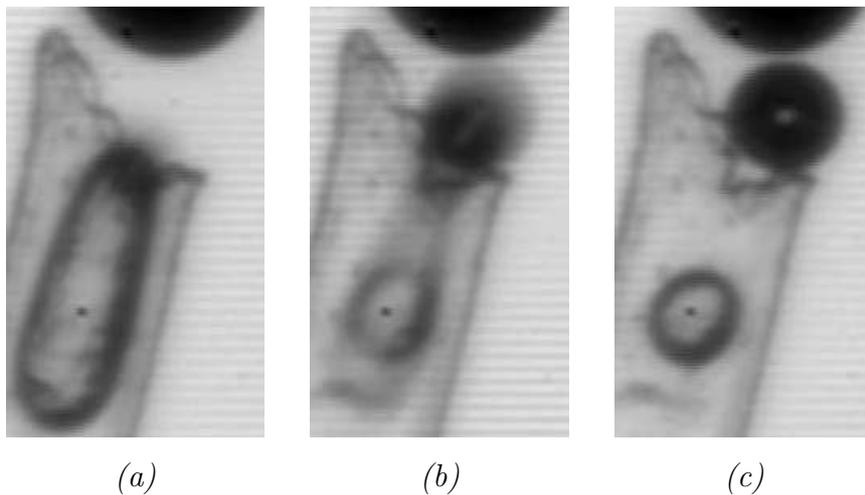


FIG. 6.5 – Exemple de détachement de bulle à $1000 \text{ images.s}^{-1}$. En (b) Un étranglement se forme à l'intérieur de la fibre. Cette étape est très rapide (moins d'une milliseconde), et est en générale invisible, à la résolution temporelle de la caméra (\approx une milliseconde).

Notons qu'il peut arriver que le détachement n'ait pas lieu. Ceci se produit si le temps de mise en place des conditions de rupture est supérieur au temps que met la poche pour se vider complètement. Le phénomène s'observe très rarement, puisque par définition, un tel site ne produit qu'une bulle unique. La figure 6.6 présente toutefois une telle curiosité, qu'on n'a observée qu'une seule fois, et dont le déroulement particulier autorise la périodicité du phénomène.

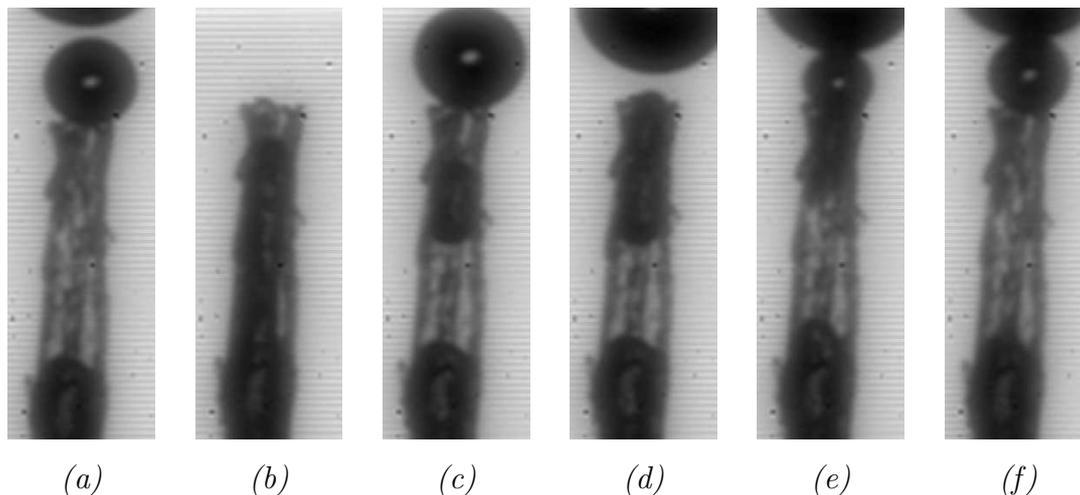


FIG. 6.6 – *Une curiosité. Cette fibre (on n'en a observé qu'une seule présentant ce comportement) autorise la sortie complète de la poche de gaz sans détachement. Les photos de cette séquence ne sont pas espacées régulièrement dans le temps. (a) Etat initial. (b) La poche grossit complètement. (c) Une bulle est libérée de façon standard, mais une deuxième rupture isole une poche dans la fibre. (d) La poche isolée grossit. (e) et (f) La poche isolée sort complètement de la fibre, sans rupture de l'interface. L'état initial (a) est alors retrouvé.*

6.2.4 Quelques données.

Le tableau 6.1 résume les données pertinentes pour quelques sites. Il est remarquable que les sites les plus plats (les sites 4, 8, 9, 11, et 12, pour lesquels $a/b > 2.3$) se vident tous par l'avant, tandis que les plus épais ($a/b < 1.8$) se vident par l'arrière.

6.3 Quelques tentatives d'explications.

6.3.1 Rayons des bulles.

Pour déterminer le rayon d'une bulle lors de sa libération, on supposera que le détachement a lieu lorsqu'il est énergétiquement favorable, c'est-à-dire quand la somme des surfaces de la bulle détachée et de la calotte restante (figure 6.7a) est inférieure à la surface de la calotte émergente (figure 6.7b), à volume constant.

Site n°	Aplatissement moyen a/b	Rayon de fibre (1/2 grand axe) $r_f = a$ (μm)	Rayon de bulle r_b (μm)	Type de vidage Avant/Arrière
1	1.7	6.3	11.6	Arrière
2	1.5	6.2	11	Arrière
3	1.6	6.4	10.6	Arrière
4	2.3	8.9	9	Avant
5	1.7	6.6	9.7	Arrière
6	1.7	6.8	11	Arrière
7	1.6	8.5	14	Arrière
8	2.7	14	14.8	Avant
9	2.3	6.3	8.5	Avant
10	1.8	17	23.3	Arrière
11	2.5	14	14	Avant
12	2.6	8.5	11	Avant

TAB. 6.1 – Caractéristiques de libérations de quelques sites. On peut y remarquer la corrélation entre l'épaisseur de la poche et le type de vidage, qui représente sa mobilité dans la fibre.

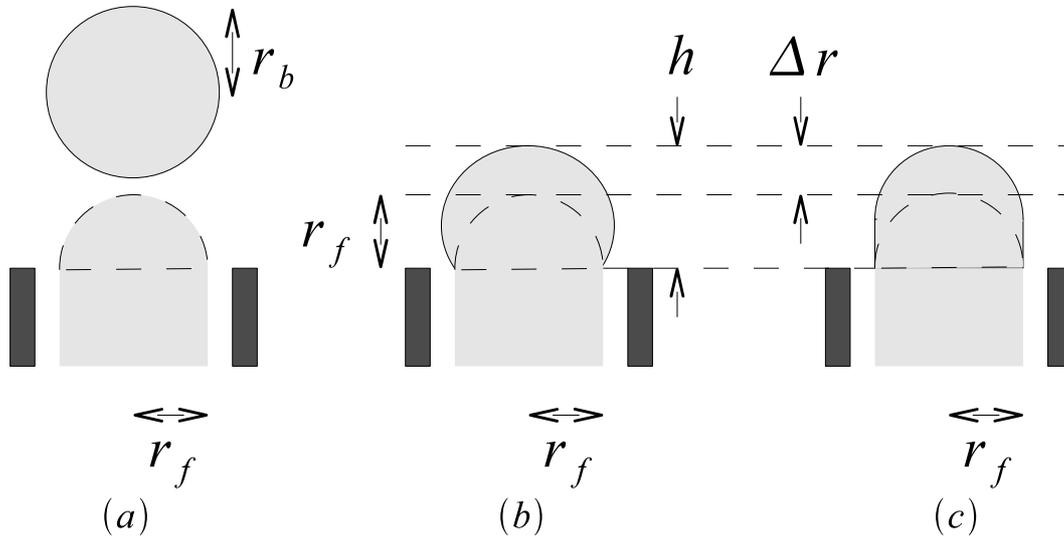


FIG. 6.7 – Notations pour l'évaluation du rayon de la bulle. La bulle est supposée se détacher quand sa surface (a) devient inférieure à la surface de la calotte émergente (b), à volume constant. En (c), la linéarisation du volume de la calotte au premier ordre en $h = r_f + \Delta r$ équivaut à approximer celle-ci par une portion de cylindre.

La conservation du volume relie le rayon de la bulle r_b et la hauteur h de la calotte :

$$\frac{2}{3}\pi r_f^3 + \frac{4}{3}\pi r_b^3 = \frac{\pi}{6}h^3 + \frac{\pi}{2}hr_f^2 \quad (6.1)$$

avec les notations de la figure 6.7. La condition de détachement s'écrit :

$$2\pi r_f^2 + 4\pi r_b^2 < \pi (h^2 + r_f^2) \quad (6.2)$$

soit :

$$h^2 > r_f^2 + 4r_b^2 \quad (6.3)$$

Les équations (6.1) et (6.3) suffisent en principe à déterminer r_b mais elles forment un système du troisième degré en h qui n'a pas de solution simple. Pour obtenir une estimation simple, on peut supposer que le rayon de la bulle r_b est du même ordre de grandeur que celui de la fibre r_f . On peut alors écrire $h = r_f + \Delta r$ et ne garder que les termes du premier ordre en Δr . Dans ce cas, l'équation (6.1) devient :

$$\frac{4}{3}\pi r_b^3 = \pi r_f^2 \Delta r \quad (6.4)$$

ce qui fournit Δr et donne la signification géométrique du premier ordre : la calotte émergente est assimilée à une portion de cylindre (figure 6.7c). Dans ce cas, l'inéquation (6.3) devient une condition simple de détachement de la bulle :

$$\frac{r_b}{r_f} > \frac{3}{2} \quad (6.5)$$

On a vu que les fibres étaient en général aplaties. Le calcul précédent se généralise aisément au cas d'une fibre elliptique. Le périmètre d'une ellipse de demi axes a et b est donné par la toute récente formule approchée [56] :

$$\begin{aligned} \Pi(a, b) &= 4(a^y + b^y)^{\frac{1}{y}} \\ y &= \frac{\log \frac{\pi}{2}}{\log 2} \end{aligned} \quad (6.6)$$

dite formule du YNOT, dont l'erreur maximale est de 0.4%. Un calcul similaire au précédent donne la condition de détachement suivante dans le cas d'une fibre elliptique :

$$\frac{r_b}{a} > \frac{3\pi}{4 \left(1 + \left(\frac{a}{b}\right)^y\right)^{\frac{1}{y}}} \quad (6.7)$$

qui redonne bien $r_b = 3a/2$ pour un cylindre ($a/b = 1$). Pour l'aplatissement moyen des fibres réelles ($a/b \approx 2$), l'équation (6.7) donne $r_b \approx a$. On retiendra que l'approxima-

tion prévoit $r_b \approx 3a/2$ pour les fibres épaisses, et $r_b \approx a$ pour les fibres aplaties. La figure 6.8 montre que les rapports mesurés sur des sites réels se placent correctement sur ces deux droites. Les cercles blancs représentent des sites dont le rapport a/b est inférieur à 1.8 et les cercles noirs des sites dont le rapport a/b est supérieur à 2.3.

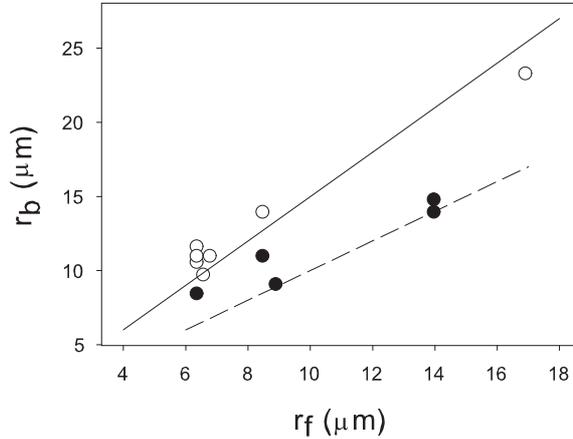


FIG. 6.8 – Comparaison des rapports r_b/r_f mesurés (cercles blancs : $a/b < 1.8$, cercles noirs : $a/b > 2.3$) et des ordres de grandeur $r_b/r_f = 1.5$ (droite continue) et $r_b = r_f$ (droite pointillée) évalués théoriquement. Comptes tenus des approximations et de la résolution dans le temps (on néglige le grossissement de la bulle pendant l'incertitude temporelle d'une milliseconde), la correspondance est satisfaisante. r_f est le rayon apparent mesuré : il correspond au demi grand axe a dans le cas des fibres aplaties.

Il n'est pas surprenant que les bulles issues de sites plats $a/b > 2.3$ soient proportionnellement plus petites que celles issues de sites épais $a/b < 1.8$: l'aplatissement de la fibre diminue le volume et élargit le demi axe a . Il est en revanche beaucoup plus intéressant de constater que tous les sites plats se vident par l'avant et que tous les sites épais se vident par l'arrière. Le tableau 6.1 est éloquent à cet égard, et on pourra comparer, à titre d'illustration, les largeurs des taches blanches (qui indiquent l'épaisseur de la poche) sur les séquences des figures 6.2 et 6.4.

La conservation du volume explique le lien entre rapport des rayons et épaisseur de fibre, mais pas celui entre le type de vidage (avant/arrière) et l'épaisseur, qui reste donc à expliquer. Si ce lien est systématique, il faut que quelque chose empêche la poche de glisser à l'intérieur de la fibre, qui soit indépendant de la géométrie interne de la fibre (on élimine les causes accidentelles comme une saillie interne qui accrocherait la poche). L'examen de la figure 6.9, qui schématise des coupes de fibres d'épaisseur variables donne un indice. La poche emprisonnée dans la fibre plate essaye de retrouver une section circulaire, du fait de l'inégalité des courbures de son interface. De plus, les courbures différentes dans la poche créent des dépressions variables dans le liquide environnant, entraînant le drainage du film coté plat en direction du film coté courbe. En conséquence, on s'attend

à ce que le film mouillant δ soit plus épais aux endroits où la courbure est plus prononcée. Localement, la densité de force de résistance visqueuse s'écrit approximativement $\mu v/\delta^2$. L'amincissement du film sur les faces augmente donc considérablement les frottements. Si le film est suffisamment mince, on peut s'attendre à ce que la viscosité interdise le déplacement de l'interface dans le temps de libération de la bulle.

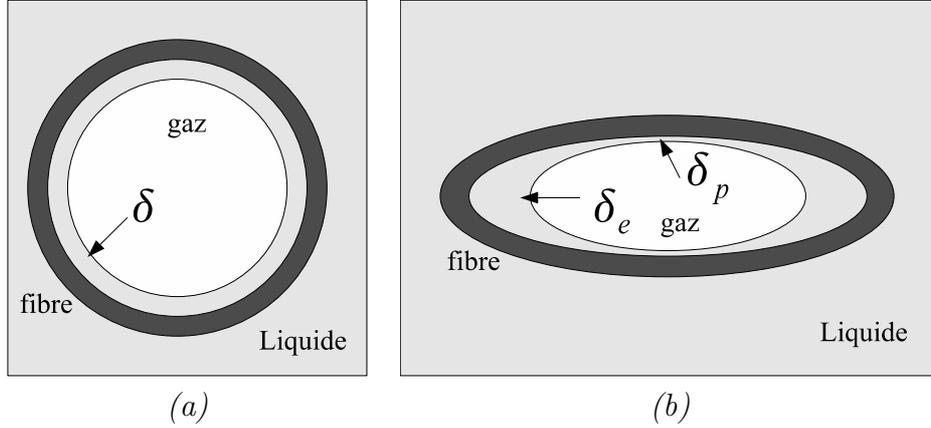


FIG. 6.9 – Comparaison des films mouillants dans des fibres épaisses (a) et plate (b). En (a), l'épaisseur du film est uniforme. En (b), la différence de courbure entre les faces et les cotés induit une différence de pression qui tend à drainer et donc amincir le film sur les faces (δ_p) au profit de celui situé sur les cotés (δ_e).

La formule de Bretherton $\delta \approx R_c Ca^{2/3}$ [9] indique que l'épaisseur est proportionnelle au rayon de courbure du ménisque tangent au film, ce qui permet d'assimiler le rapport des épaisseurs de film dans la fibre au rapport des rayons de courbure extrêmes de la poche : $\delta_e/\delta_p \approx r_p/r_e$, avec les notations de la figure 6.10. Pour une ellipse d'équation $x^2/a^2 + y^2/b^2 = 1$, la courbure, rigoureusement donnée par l'équation (A.10) de l'annexe A, se réduit ici à la dérivée seconde de chaque coordonnée exprimée en fonction de l'autre, en zéro. On obtient ainsi les deux rayons de courbures de l'ellipse sur les ménisques : $r_p = a^2/b$ et $r_e = b^2/a$ (figure 6.10).

Le rapport des épaisseurs des films est ainsi égal à celui des rayons de courbures des ménisques tangents :

$$\frac{\delta_e}{\delta_p} \approx \frac{r_p}{r_e} \approx \left(\frac{a}{b}\right)^3 \quad (6.8)$$

L'aplatissement de la fibre a donc une conséquence dramatique sur le film situé sur la face plate de la fibre. Pour un rapport $a/b = 2$, le film δ_p est près de 10 fois plus fin que le film δ_e . Les forces de frottement visqueuses par unité de volume, localement proportionnelles à l'inverse du carré de l'épaisseur du film, deviennent donc presque 100 fois supérieures à leur valeur habituelle. Dans ces conditions, l'immobilité de la poche de gaz dans les fibres très aplaties ($a/b > 2.3$) et sa mobilité pour les fibres plus épaisses ($a/b < 1.8$) n'est plus surprenante.

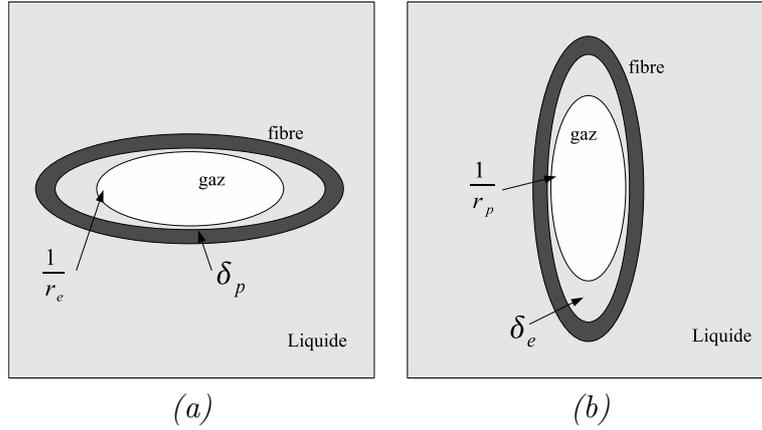


FIG. 6.10 – Coupes d'une fibre vue du dessus. Dans chaque cas, l'épaisseur du film δ est déterminée par la courbure $1/r$ du ménisque tangent au film. En effet, pour une pression P dans la poche de gaz, la dépression sur les cotés vaut σ/r_e et celle sur les faces seulement σ/r_p . On s'attend donc à ce que la différence de pression dans le liquide draine le liquide des faces vers les cotés, c'est-à-dire augmente δ_e au détriment de δ_p .

Il apparaît donc que les fibres aplaties cumulent deux effets qui limitent le rayon des bulles éjectées : elles ont un volume moindre et elles immobilisent l'interface de la poche, s'opposant ainsi à l'éjection du gaz.

6.3.2 Temps de libération.

Pour évaluer le temps de vidage de la poche dans la bulle avant sa rupture, on supposera que les frottements visqueux équilibrent les forces de pression pour fixer une vitesse constante. Il a en effet été possible de mesurer la vitesse de vidage dans un cas particulier où le vidage se fait lentement, ce qui a montré qu'elle est stationnaire (figure 6.3). Dans toute cette section, on raisonnera sur des fibres cylindriques puisqu'il a été montré que ce type de vidage (par l'arrière) n'apparaît que sur des fibres épaisses. Les notations utilisées dans cette section seront celles de la figure 6.11.

Pressions.

Le moteur de l'éjection, c'est la différence de pressions qui règne entre l'arrière de la poche, où la surpression vaut $2\sigma/r_f$, et la calotte à l'avant, où la surpression est (en ordre de grandeur) celle de la bulle à naître $2\sigma/r_b$, appliquée sur la surface de l'orifice de la fibre. L'ordre de grandeur des forces de pression est donc :

$$F_P \approx 2\sigma\pi r_f^2 \left(\frac{1}{r_f} - \frac{1}{r_b} \right) \quad (6.9)$$

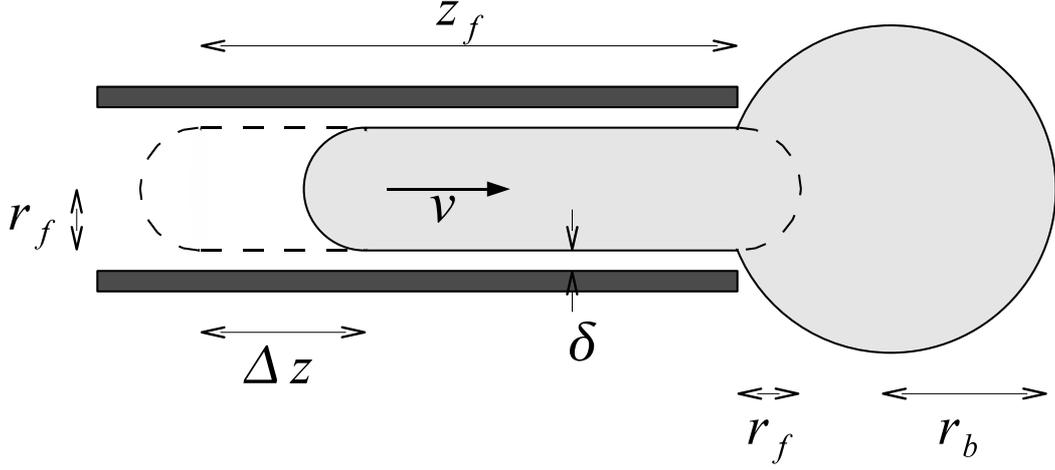


FIG. 6.11 – Notations pour l'évaluation du temps de libération de la bulle. La différence de pressions capillaires est le moteur du vidage de la poche dans la calotte tandis que les frottements visqueux dans le film liquide δ le ralentissent.

Viscosité.

La force visqueuse par unité de surface s'écrit localement $\mu \partial v / \partial y$. Son ordre de grandeur va donc être $\mu \langle v \rangle / \delta$, où $\langle v \rangle$ est la vitesse moyenne de l'écoulement dans le film mouillant δ . Il faut multiplier cette force par la surface de la poche $2\pi r_f z_f$ pour obtenir la force totale qui équilibre la pression.

Pour obtenir un ordre de grandeur de la vitesse moyenne, en supposant connue la vitesse de l'interface et en annulant la vitesse du liquide contre la fibre, on peut écrire localement l'équation de Navier-Stokes dimensionnellement :

$$\frac{\Delta P}{z_f} = \mu \frac{v}{\delta^2} \quad (6.10)$$

Cela montre, compte tenu du fait que $\delta \ll z_f$, que localement le gradient de pression est négligeable devant le frottement par unité de volume. On peut donc supposer que, dans le film mouillant, la vitesse du liquide varie linéairement avec l'altitude : $\partial^2 v / \partial y^2 \approx 0$ (écoulement de Couette, voir figure 6.12).

Dans ce cas, avec les conditions aux limites décrites plus haut, la vitesse moyenne devient :

$$\langle v \rangle \approx \frac{v}{2} \quad (6.11)$$

Ce qui permet d'écrire un ordre de grandeur de la force visqueuse totale s'exerçant sur la poche en mouvement :

$$F_v \approx \mu \frac{v}{\delta} \pi r_f z_f \quad (6.12)$$

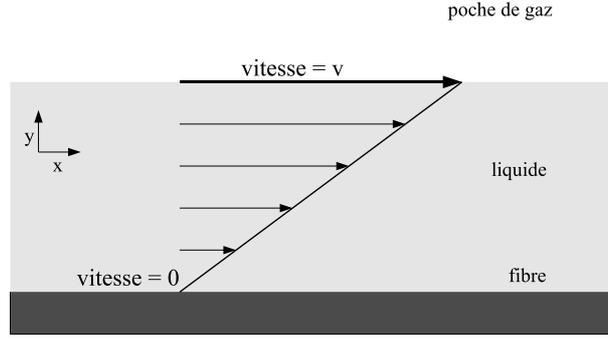


FIG. 6.12 – *Ecoulement de couette. Lorsque le gradient de pression est nul, le laplacien de la vitesse s'annule en régime constant ($\partial^2 v / \partial y^2 \approx 0$) et la vitesse devient une fonction linéaire de l'altitude y . La vitesse moyenne est alors simplement $v/2$.*

Vitesse et temps.

On supposera la vitesse suffisamment faible pour autoriser l'évaluation de l'épaisseur du film mouillant δ par la loi de Bretherton [9] :

$$\delta \approx r_f \left(\frac{\mu v}{\sigma} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (6.13)$$

En égalant les équations (6.9) et (6.12), et en utilisant l'équation (6.13) pour éliminer δ , on trouve un ordre de grandeur de la vitesse de l'interface :

$$v \approx \frac{8\sigma}{\mu} \left(\frac{r_f (r_b - r_f)}{r_b z_f} \right)^3 \quad (6.14)$$

Avec la condition de fibre cylindrique $r_b \approx 3r_f/2$, l'expression se simplifie encore :

$$v \approx \frac{8\sigma}{27\mu} \left(\frac{r_f}{z_f} \right)^3 \quad (6.15)$$

Pour une fibre standard, $r_f \approx 10\mu m$ et $z_f \approx 100\mu m$, et connaissant $\sigma = 0.047 N.m^{-1}$ et $\mu = 1.6 \times 10^{-3} kg.m^{-1}.s^{-1}$, on trouve une vitesse de l'ordre du centimètre par seconde : $v \approx 10^{-2} m.s^{-1}$.

L'ordre de grandeur du temps de vidage est $\Delta t \approx \Delta z / v$, où Δz est la longueur perdue par la poche de gaz. On trouve par conservation du volume $\Delta z = 4r_b^3 / 3r_f^2$, soit $\Delta z = 9r_f / 2 \approx 45\mu m$ pour une fibre cylindrique ($r_b = 3r_f / 2$) de taille standard ($r_f \approx 10\mu m$).

Finalement, le temps de vidage obtenu vaut donc $\Delta t \approx 5ms$, ce qui est en accord avec les observations, qui donnent des temps de 2 à 4ms.

6.3.3 Temps de rupture.

L'étude précise de la rupture est assez difficile car le matériel utilisé ne la résout pas dans le temps. On sait qu'elle dure moins d'une milliseconde, qu'elle occasionne l'apparition d'un étranglement, dont la courbure est de l'ordre de celle de la bulle (figure 6.5*b*), et qu'elle laisse l'extrémité de la poche à environ un diamètre de bulle à l'intérieur de la fibre.

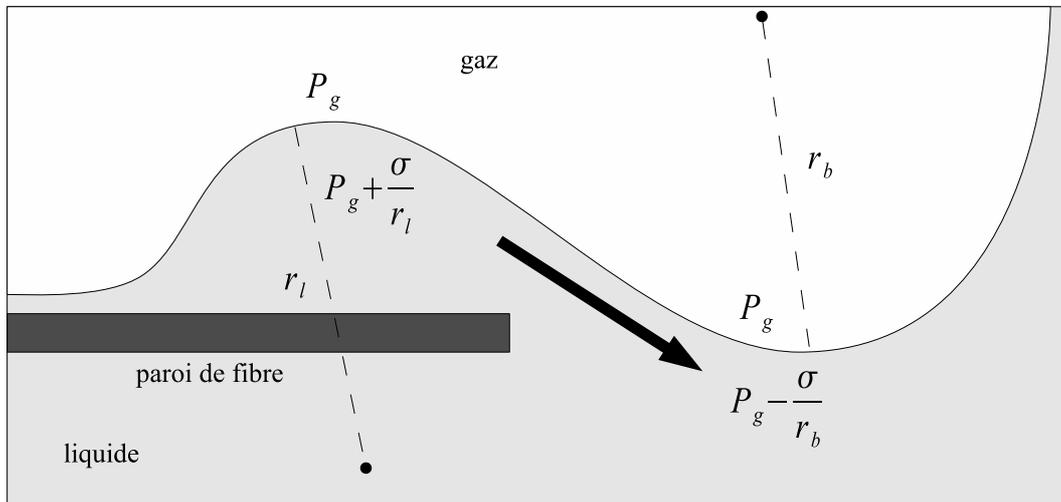
La naissance de la bulle, qui prend une forme sphérique, occasionne l'apparition d'une perturbation de l'interface à l'intérieur de la fibre. Dans le cas d'une perturbation très faible, on peut négliger la courbure de la poche de gaz autour de son axe et on se retrouve dans le cas d'une surface en tôle ondulée (figure 6.13*a*). La courbure de la bulle crée une dépression dans le liquide autour d'elle, tandis que celle de la perturbation crée une surpression. En conséquence, le liquide s'écoule hors de la fibre et amortit la perturbation.

En revanche, lorsque la perturbation devient plus importante, la courbure de l'étranglement crée une dépression plus importante que celle créée par la bulle, et le liquide pénètre dans la fibre (figure 6.13*b*). Ceci a pour effet de diminuer le rayon de l'étranglement qui à son tour favorise l'aspiration du liquide. Le phénomène s'auto amplifie jusqu'à la rupture de l'interface.

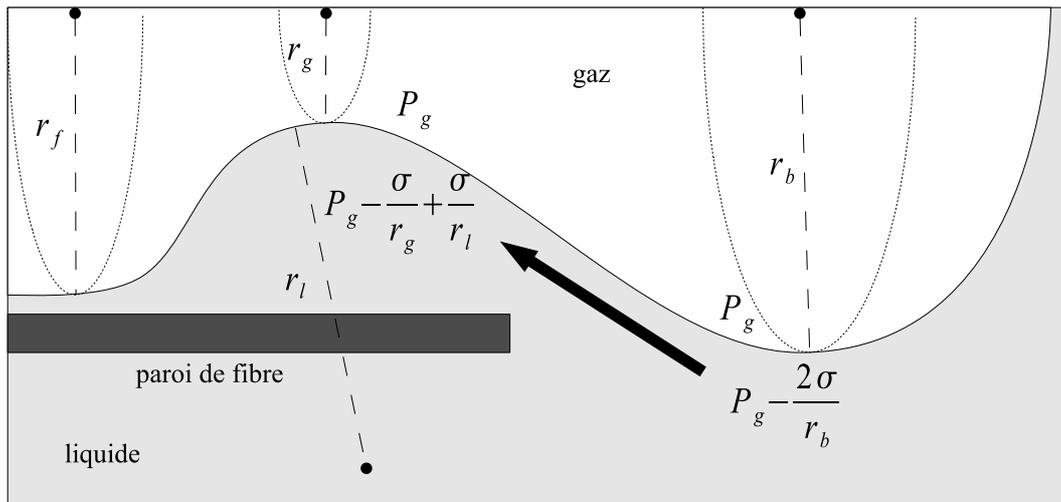
En l'absence de données précises, deux mécanismes peuvent être invoqués pour l'expliquer plus en détail. Elle peut être soit une forme d'instabilité de Rayleigh, auquel cas il faudra la traiter comme un écoulement visqueux en approximation de lubrification (les frottements visqueux ralentissent suffisamment la capillarité pour pouvoir négliger l'inertie), ou un phénomène d'onde capillaire (la viscosité est négligée, ce qui accélère le phénomène qui devient une lutte entre capillarité et inertie).

Les instabilités de Rayleigh proviennent du fait qu'à volume constant, la surface d'un cylindre ondulé peut être inférieure à celle d'un cylindre lisse, pour une certaine longueur de perturbation qui dépend de l'épaisseur du cylindre. Ce phénomène se manifeste lorsque la gravitation n'est pas là pour tout aplanir, c'est-à-dire quand l'épaisseur de liquide est inférieure à la longueur capillaire. C'est pourquoi on les observe (sur terre) essentiellement sur des films minces. De ce fait, les forces capillaires sont très amorties par les frottements visqueux importants et ces instabilités, quoique exponentielles, peuvent avoir des temps de mise en place assez longs (plusieurs secondes).

Lorsque l'épaisseur du liquide est plus importante, donc quand la surface est stabilisée par la gravité et empêche les instabilités de se produire, les phénomènes capillaires ont un effet stabilisant (figure 6.13*a*) et peuvent être très rapides car, dans ce cas, les frottements visqueux peuvent être négligés. L'inertie reprend ses droits et l'on parle alors d'ondes capillaires. Le souffle d'une risée sur la surface d'un étang occasionne ce genre de phénomène.



(a)



(b)

FIG. 6.13 – Principe des instabilités cylindriques. (a) Le phénomène reste plan, perpendiculairement à la figure (tôle ondulée). Dans ce cas, la capillarité, via la courbure longitudinale $1/r_l$, affaiblit la perturbation : le phénomène est auto amorti et l'interface reste stable. (b) Lorsque le rayon de la perturbation r_l n'est plus négligeable devant celui du support r_f , la courbure du cylindre $1/r_g$ entretient la perturbation et s'auto amplifie : le phénomène devient donc instable.

La naissance de la bulle correspond à la transition d'une surface minimale (cylindre dans la fibre) à une autre (bulle à l'extérieur). Ainsi, on déstabilise l'interface cylindrique (capillarité contre viscosité) mais on stabilise la bulle (capillarité contre inertie). Sur la figure 6.13*b*, on voit qu'à gauche de l'instabilité, il existe un film mince et cylindrique, évoquant un phénomène d'amplification de type Rayleigh, mais à droite, vers l'ouverture, le film s'épaissit et les frottements deviennent sans doute moins importants, évoquant plutôt une variante d'onde capillaire.

La naissance de la bulle est donc vraisemblablement un phénomène bâtard dans lequel les frottements visqueux vont jouer un rôle variable. On va essayer d'évaluer les temps caractéristiques des deux phénomènes.

Instabilités de Rayleigh.

Les notations utilisées par la suite seront celles de la figure 6.14.

Les instabilités de type Rayleigh-Plateau apparaissent lorsqu'un liquide est forcé de prendre une forme cylindrique autour (ou à l'intérieur dans notre cas) d'un cylindre. C'est la courbure cylindrique $1/r_g$ (perpendiculaire au plan de la figure 6.14) qui joue le rôle d'agent déstabilisant tenu par la gravité dans les instabilités de Rayleigh-Taylor, tandis que la courbure longitudinale $1/r_l$ (dans le plan de la figure 6.14) tente de stabiliser l'interface. C'est donc un phénomène où la capillarité joue contre elle-même (ce pourquoi l'instant de rupture n'est déterminé que par la capillarité, *via* la minimisation de l'énergie de surface), ralentie par les frottements visqueux. Dans ce cas, l'épaisseur du liquide détermine les longueurs d'ondes des perturbations amplifiées. Notre cas est particulier car l'instabilité ne s'installe pas naturellement : elle est forcée par l'éjection de la bulle. On peut donc supposer que sa demi longueur d'onde sera du même ordre de grandeur que le diamètre de bulle, soit $\lambda \approx 4r_b$ (figure 6.14), ce qui semble en accord avec la figure 6.5*b* et avec le fait qu'après la rupture, l'interface se situe à environ un diamètre de bulle à l'intérieur de la fibre.

Vitesse. L'équation de Navier-Stokes écrite en loi d'échelle permet d'obtenir une estimation de la vitesse du liquide entrant dans la fibre (on suppose, en accord avec $\lambda \approx 4r_b$, que la distance entre les pressions extrêmes est de l'ordre de $2r_b$:

$$v \approx \frac{\delta^2 \Delta P}{\mu 2r_b} \quad (6.16)$$

Un calcul plus rigoureux montre que cette expression doit être précédée d'un coefficient $1/3$ qui sera utilisé par la suite [9].

Le flux Q entrant par unité de largeur est le produit de la vitesse v par l'ouverture δ :

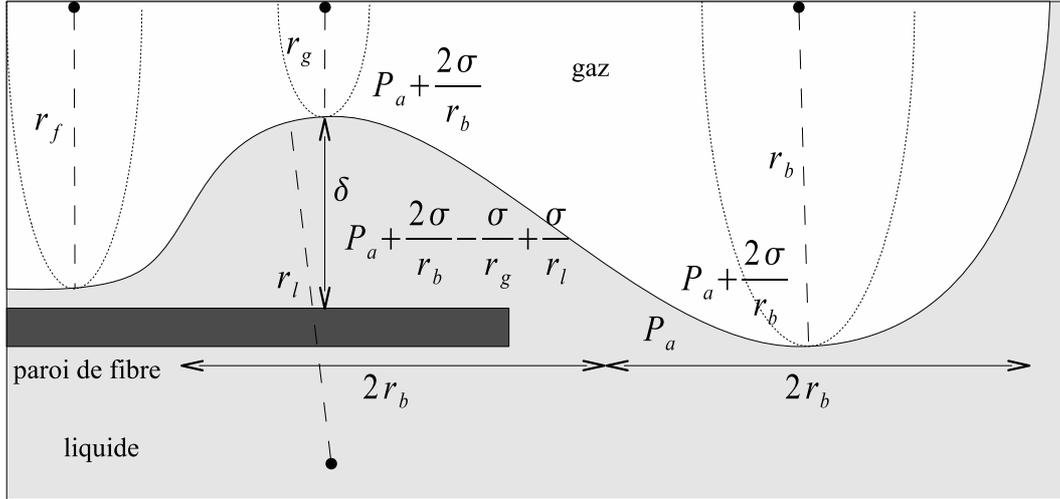


FIG. 6.14 – Notations pour l'évaluation du temps de rupture de l'interface.

$$Q \approx \frac{\delta^3 \Delta P}{3\mu 2r_b} \quad (6.17)$$

Le moteur du phénomène est la différence des pressions aux points de courbures maximales (figure 6.14), qui sont données par la loi de Laplace $P = \sigma k$. Il faut donc évaluer les ordres de grandeur des courbures en ces deux points.

La pression du liquide à l'extérieur de la fibre est la pression atmosphérique P_a . La courbure de la bulle induit une surpression dans la poche de gaz de $2\sigma/r_b$. Le rayon r_g du gaz induit une dépression $-\sigma/r_g$ tandis que la courbure apparente dans le plan de la figure 6.14 est donnée par la dérivée seconde du profil de l'interface (equation (A.10) de l'annexe A avec $f' = 0$) et vaut donc environ $\delta/(2r_b)^2$. La courbure totale de l'instabilité vaut donc $\delta/(2r_b)^2 - 1/r_g$.

Par ailleurs, on doit avoir par définition $r_f = r_g + \delta$ et on prendra donc comme ordres de grandeurs $r_g \approx \delta \approx r_f/2$.

Les considérations qui précèdent permettent d'évaluer la différence de pression motrice :

$$\Delta P \approx \sigma \left(\frac{2}{r_f} - \frac{r_f}{8r_b^2} - \frac{2}{r_b} \right) \quad (6.18)$$

Le flux Q étant le produit de l'ouverture δ par la vitesse v du liquide, une variation de l'ouverture $\partial\delta/\partial t$ va occasionner une variation du flux $\Delta Q/\Delta t = v\partial\delta/\partial t$, ce qui se réécrit : $\partial Q/\partial x = \partial\delta/\partial t$. La connaissance de la variation du flux permet donc d'accéder à la vitesse verticale de l'interface. En loi d'échelle, ceci s'écrit :

$$\frac{\partial\delta}{\partial t} \approx \frac{Q}{2r_b} \quad (6.19)$$

Les équations (6.17), (6.18), et (6.19) donnent la vitesse verticale de l'interface : $\partial\delta/\partial t \approx 10^{-1}m.s^{-1}$, soit environ 10 centimètres par seconde.

Le temps qu'il faut à l'interface pour parcourir le rayon $r_f = 10\mu m$ vaut donc environ $\Delta t \approx 0.1ms$. Ce résultat semble cohérent avec la figure 6.5*b*. En effet, le flou sur la photo est limité, signifiant que le phénomène ne se produit pas entièrement durant le temps d'acquisition de la photo et qu'il n'est donc pas énormément plus rapide que ce temps. Un dixième de milliseconde semble donc raisonnable.

Onde capillaire.

On peut estimer dimensionnellement le temps requis par un volume de gaz pour prendre la forme sphérique de la bulle. En supposant que seule la tension de surface intervient, étant données ses dimensions $[M]/[T^2]$, il est possible de former, à l'aide de la masse de liquide déplacé $m_b = \alpha_m \rho V_b$ ($\alpha_m = 1/2$ est le coefficient de masse ajoutée, ρ la densité du liquide, et V_b le volume de la bulle) et de la tension de surface σ , le temps suivant :

$$t = \sqrt{\frac{m_b}{\sigma}} \approx \sqrt{\frac{4\pi\alpha_m\rho r_b^3}{3\sigma}} \quad (6.20)$$

Comme il l'a été suggéré plus haut, une autre façon intéressante de considérer le problème est de voir la mise en équilibre de la bulle comme l'évolution sur l'interface d'une onde capillaire dont la longueur d'onde est le diamètre de la bulle. Dans ce cadre, Landau et Lifchitz [8] donnent la relation de dispersion suivante : $\omega^2 = \sigma k^3/\rho$, où ω est la fréquence de l'onde et k son nombre d'onde. En associant le temps de mise à l'équilibre à la période de l'onde ($\omega = 1/t$), et le diamètre de la bulle à sa longueur d'onde ($k = 1/2r_b$), une relation entre t et r_b est trouvée, très proche de l'équation (6.20), à un facteur numérique près (environ 2).

L'application numérique donne $t \approx 0.02ms$. Ce temps semble trop rapide pour le flou observé sur la photo 6.5*b*. Pour un tel temps, le phénomène apparaîtrait entièrement durant le temps d'acquisition et le flou devrait être plus prononcé.

Il semble donc que les frottements visqueux interviennent suffisamment pour ralentir le phénomène d'onde capillaire, mais restent trop faibles pour freiner efficacement le développement de l'instabilité. On ne peut donc rien conclure, en l'absence de calcul précis et de mesure fiable, quant au temps exact de rupture, mais on peut affirmer qu'il est compris entre un centième et un dixième de milliseconde, et vraisemblablement plus proche du dixième, compte tenu du faible effet de flou de la figure 6.5*b*, ce qui tendrait à montrer que les frottements restent tout de même assez importants.

6.4 Résumé.

Une description du phénomène est donnée (section 6.2) dans laquelle deux modes de vidage (avant/arrière) sont mis en évidence. La rupture y apparaît trop rapide pour être résolue précisément dans le temps. Puis quelques ordres de grandeurs sont extraits pour le rayon des bulles éjectées ($r_b \approx 1.5r_f$, section 6.3.1), le temps de libération par vidage arrière ($\Delta t \approx 5ms$, section 6.3.2), et le temps de rupture ($\Delta t \approx 0.1ms$, section 6.3.3).

6.5 Conclusion.

Les rayons de bulle se répartissent sur 2 régimes, suivant l'aplatissement de la fibre. Sous le seuil de frottement critique (fibres épaisses), l'interface se déplace et l'on trouve $r_b \approx 1.5r_f$, et au dessus (fibres plates), l'interface reste immobile, ce qui entraîne $r_b \approx r_f$. On a donc intérêt à accroître les frottements pour obtenir une bulle plus fine à l'éjection, soit en aplatisant les fibres (irréalisable) soit en diminuant artificiellement l'épaisseur du film, peut être par voie chimique.

La rupture de l'interface menant à la libération de la bulle est trop rapide pour être observée dans ses détails. On montre que la viscosité y joue un rôle variable, à mi chemin entre deux mécanismes classiques (instabilités de Rayleigh et ondes capillaires). La rupture, si précise et régulière, qui semblait quelque peu miraculeuse lors de sa présentation au chapitre 3, se révèle finalement assez inévitable : la bulle, en sortant de la fibre, crée elle même la perturbation instable qui la libèrera.

La porosité de la fibre n'est pas prise en compte dans ce travail mais ferait un sujet d'étude intéressant. En effet, la paroi de la fibre laissant passer l'eau, la dynamique du film mouillant doit en être modifiée.

Il faut rappeler qu'on n'a décrit ici que les phénomènes les plus simples. Il n'est pas rare de rencontrer des fibres dans lesquelles plusieurs poches interagissent (la figure 6.6 en est un exemple). On rencontre également parfois des fibres plus complexes : celle de la figure 6.15 contient trois poches interagissantes et réparties sur deux lumen.

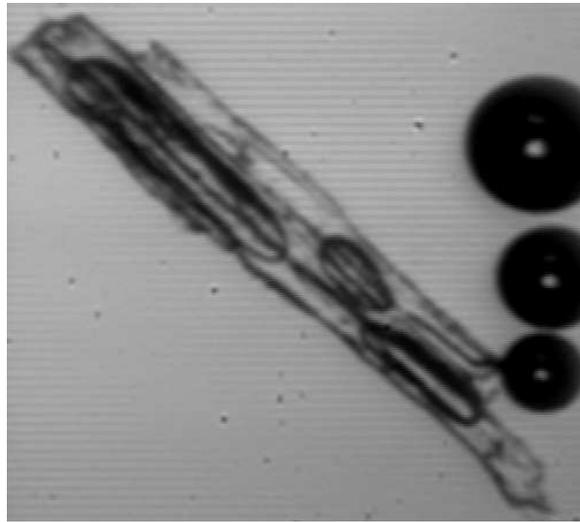


FIG. 6.15 – *Exemple de fibre contenant plusieurs poches de gaz interagissantes. Ces interactions peuvent être complexes et donner lieu à des émissions de bulles très irrégulières.*

Chapitre 7

Etat de surface des bulles au début de leur ascension.

Sommaire

7.1	Introduction.	134
7.2	Analyse automatique des images.	135
7.2.1	Principes.	135
7.2.2	Résultats.	141
7.3	Quelques précautions.	143
7.3.1	Nombres de Reynolds.	143
7.3.2	Stationnarité de la vitesse.	143
7.4	Application aux données expérimentales	144
7.5	Corrections à la vitesse.	146
7.5.1	Correction due à la paroi de verre.	146
7.5.2	Correction due aux autres bulles	148
7.5.3	Correction due à la fibre.	153
7.5.4	Résultats.	154
7.6	Discussion théorique.	155
7.6.1	Bulle fluide.	156
7.6.2	Bulle rigide.	157
7.7	Discussion des résultats.	159
7.8	Etude de sites suivis (paroi inclinée).	162
7.8.1	Correction due à la paroi inclinée.	163
7.8.2	Un comportement inattendu.	167
7.8.3	Résultats.	170
7.9	Résumé.	170
7.10	Conclusion.	173

7.1 Introduction.

Dans toute la suite, on appellera μ la viscosité dynamique du liquide ($\mu = 1.6 \times 10^{-3} \text{kg.m}^{-1}.\text{s}^{-1}$) et η sa viscosité cinématique, qui est le coefficient de diffusion de la vitesse du fluide ($\eta = \mu/\rho = 1.6 \times 10^{-6} \text{m}^2.\text{s}^{-1}$, où $\rho = 998 \text{kg.m}^{-3}$ est la densité du fluide).

Les forces de frottements visqueux s'exerçant respectivement sur une sphère rigide (RS) et fluide (FS) s'écrivent [57, 58, 59, 8] :

$$\begin{aligned} F_{RS} &= 6\pi\mu RU \\ F_{FS} &= 4\pi\mu RU \end{aligned} \quad (7.1)$$

où U la vitesse de la sphère et R son rayon. Les formules (7.1) ne sont valables que pour des nombres de Reynolds ($Re = 2RU/\eta$) inférieurs à l'unité, ce qu'il faudra vérifier.

Lors de l'ascension, ces forces équilibrent la poussée d'Archimède $4\pi R^3 \rho g/3$, ce qui donne l'expression des vitesses de sphères rigides et fluides :

$$\begin{aligned} U_{RS} &= \frac{2g}{9\eta} R^2 \\ U_{FS} &= \frac{1g}{3\eta} R^2 \end{aligned} \quad (7.2)$$

Donc en mesurant R et U et en comparant leur relation avec les expressions (7.2), on peut en déduire si la bulle est hydrodynamiquement rigide ou fluide.

Pour mesurer la vitesse et le rayon des bulles sur la totalité du train de bulles, Liger-Belair *et al.* [3] opéraient sur des photos fixées par stroboscopie. Cette technique permet de travailler à grande échelle, mais requiert une fréquence minimale de bullage. La technique d'acquisition utilisée ici est différente, puisqu'on travaille sur des films obtenus grâce à la caméra et son objectif de microscope. Cette technique réduit l'échelle spatiale et ne permet de travailler que sur les deux premiers millimètres, mais, en contrepartie, elle autorise le suivi de sites de basse fréquence, voire de bulle unique, ce qui permettra de suivre l'évolution d'un site dans le temps jusqu'à son extinction.

L'acquisition des données se faisant sur un support différent, il a fallu développer une méthode originale pour extraire le rayon et la vitesse d'une bulle suivie sur un film. Cette procédure d'acquisition automatisée est exposée dans la section suivante.

7.2 Analyse automatique des images.

7.2.1 Principes.

Chaque image est un tableau de pixels ayant chacun une intensité comprise entre 0 (noir) et 1 (blanc). Donc, du point de vue de l'ordinateur, l'image est une matrice de valeurs comprises entre 0 et 1 dont les indices sont les positions des pixels. Les raisonnements et les résultats sont tous faits et obtenus en pixels, puis convertis en unités usuelles (μm) en sachant que 520 pixels représentent 2200 μm .

La bulle apparaît en noir sur fond blanc, les points d'intensité maximum (minimum) étant situés à l'extérieur (l'intérieur) de sa surface apparente. Il est donc permis d'admettre que les points ayant une intensité moyenne entre ces deux valeurs extrêmes seront situés sur la frontière. On détermine donc les intensités minimum I_{min} et maximum I_{max} puis on ne garde de l'image initiale que les points dont l'intensité vaut $I_{bord} = 0.5(I_{min} + I_{max}) \pm \Delta I$ où $\Delta I = \epsilon(I_{max} - I_{min})$ est une largeur permettant de prendre les points légèrement autour de la moyenne. Le coefficient ϵ qui détermine le pourcentage de la largeur gardée a été fixé à 20% par des essais.

Si la bulle est isolée, comme sur la figure 7.1, l'analyse est très simple.

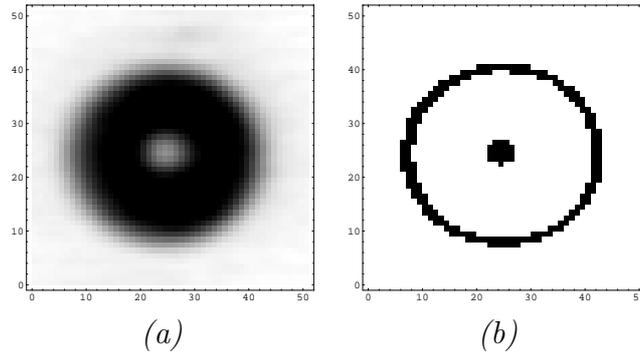


FIG. 7.1 – Sélection des pixels bordant la bulle par l'intensité dans le cas d'une bulle isolée. (a) Photo. (b) Les pixels de frontière sont ceux dont l'intensité est proche de la moyenne des intensités extrêmes de la photo.

Les points d'intensité I_{bord} une fois extraits, la position (x_c, y_c) du centre du cercle est calculée en moyennant les positions (x_i, y_i) des N points noirs. Le rayon r_b est ensuite lui-même donné par la distance moyenne de ces points par rapport au centre :

$$\begin{aligned} (x_c, y_c) &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i, y_i) \\ r_b &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \sqrt{(x_i - x_c)^2 + (y_i - y_c)^2} \end{aligned} \quad (7.3)$$

On peut raffiner la procédure en se débarrassant de la tache blanche centrale. Sachant (cf. chapitre 5) qu'elle occupe 16.5% du rayon, il suffit de blanchir les points situés à moins de 20% (pour une approche large) du rayon calculé et de recommencer. Cette procédure élémentaire donne de très bons résultats pour des bulles bien isolées mais échoue si la bulle n'est pas seule sur l'image. En présence de la fibre ou d'autres bulles, comme sur la figure 7.2, des points n'appartenant pas à la bulle sont sélectionnés et perturbent le calcul. Il est également très difficile de trouver un critère objectif (programmable) pour isoler la bulle car celle-ci peut être au contact avec d'autres objets. Il faut donc trouver un algorithme plus robuste.

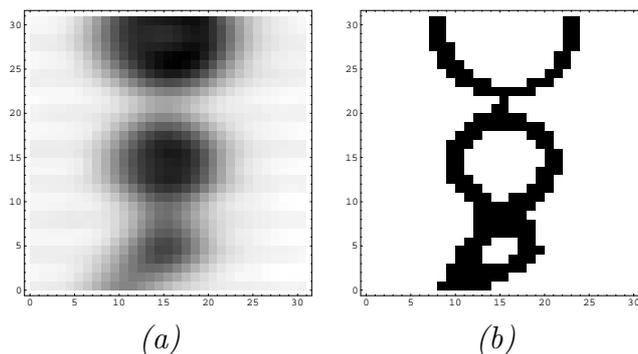


FIG. 7.2 – Sélection des pixels bordant la bulle par l'intensité dans le cas d'une bulle entourée d'un environnement. (a) Photo. (b) L'intensité moyenne ne sélectionne plus uniquement les pixels de frontière de la bulle étudiée comme c'était le cas pour une bulle isolée (figure 7.1). La procédure doit être raffinée.

On constate sur la figure 7.2b que l'intérieur de la bulle est un cercle blanc délimité par une frontière noire. En suivant cette frontière, on trouve une estimation du rayon de la bulle. Un point mobile a donc été programmé pour partir de l'intérieur de la bulle et pour avancer tout droit jusqu'à rencontrer le mur noir de la frontière intérieure. Il longe ensuite cette frontière jusqu'à revenir à son point de départ, compté depuis la première rencontre. Ceci est illustré sur la figure 7.3.

Les équations (7.3) sont ensuite appliquées au contour trouvé pour évaluer le centre et le rayon de la bulle. Le rayon ainsi obtenu sous-estime celui de la bulle car l'intensité des points noirs est à $\pm\Delta I$ de I_{bord} . Il faut donc déterminer l'épaisseur du bord noir afin d'effectuer une correction. Pour cela, plusieurs lignes sont envoyées en étoile (figure 7.4) depuis le centre et, pour chacune d'elles, le nombre de pixels noirs qu'elle rencontre est compté.

La valeur moyenne des épaisseurs vues par chaque ligne est alors calculée. Afin d'éliminer les aberrations données par les lignes qui rencontrent la fibre ou l'autre bulle, les valeurs situées à plus d'une déviation standard de la valeur moyenne sont supprimées, puis une nouvelle valeur moyenne des valeurs restantes est recalculée. Ceci donne une bonne estimation de l'épaisseur de la frontière, dont la moitié est ajoutée au rayon

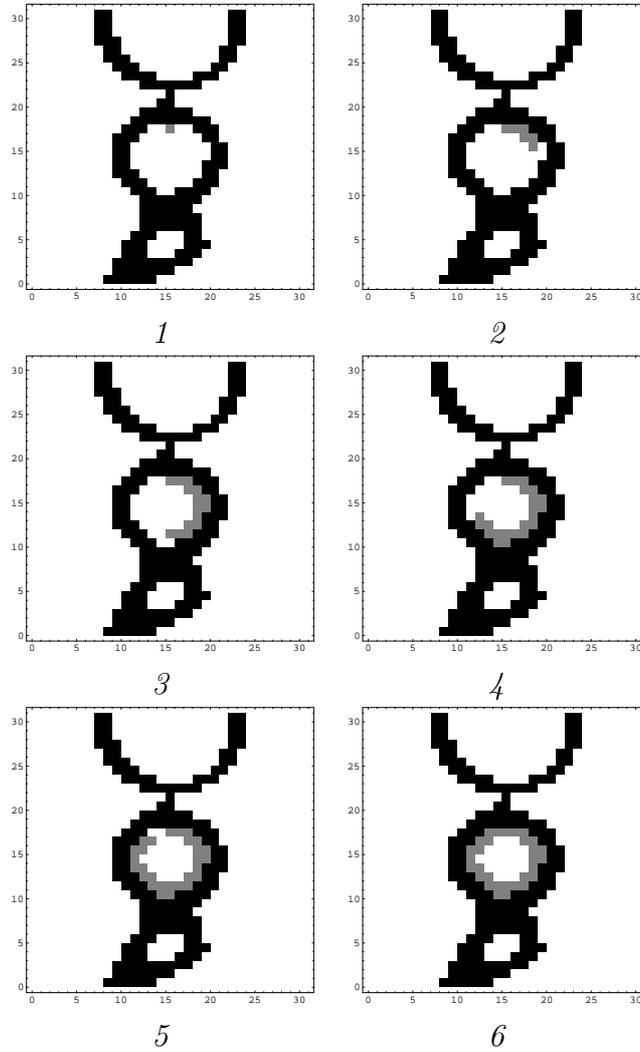


FIG. 7.3 – Détermination du rayon intérieur de la bulle par envoi d'un point renifleur. Le renifleur part tout droit, suit la première frontière blanc/noir qu'il rencontre, et s'arrête lorsqu'il est revenu à son point de première rencontre. Partant de l'intérieur de la bulle, il fournit ainsi la liste de tous les pixels frontaliers intérieurs.

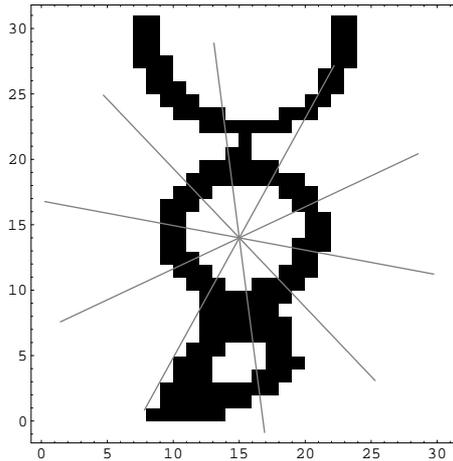


FIG. 7.4 – Détermination de l'épaisseur de la frontière par envoi de lignes radiales depuis la première estimation du centre de la bulle. Le nombre de pixels noirs que rencontre chaque ligne est ensuite moyenné pour obtenir l'épaisseur moyenne de la frontière. En général, une dizaine de lignes donne un résultat très satisfaisant.

précédemment trouvé. Il est ainsi possible de connaître le centre et le rayon de la bulle située au centre de l'image. Ce cercle est représenté sur la figure 7.5, superposé à l'image initiale.

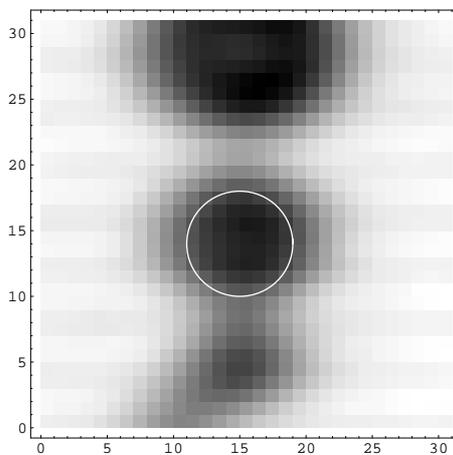


FIG. 7.5 – Résultat trouvé par la procédure automatique dans le cas compliqué d'une bulle entourée d'un environnement.

Cet algorithme fonctionne correctement mais il peut être trompé par la présence de la tache blanche centrale sur les grosses bulles. La figure 7.6 montre que si le point renifleur rencontre la tache blanche avant la vraie frontière, il se trompe et entoure la tache.

La position de la tache par rapport au point de départ étant inconnue, il est impossible de déterminer *a priori* la bonne direction à prendre pour ne pas la rencontrer. La solution retenue est finalement la plus mécanique : le renifleur est envoyé dans les quatre directions (nord, sud, est, ouest) et la plus grande valeur trouvée pour le rayon est

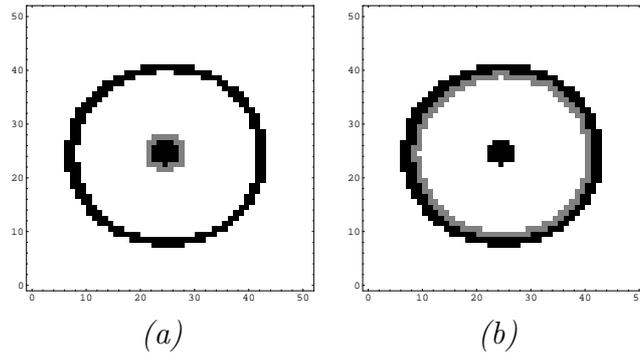


FIG. 7.6 – *Présence de la tache centrale. (a) Le renifleur rencontre la tache centrale et se trompe. (b) Traitement correct.*

retenue, ce qui élimine les petites valeurs fournies par la tache. Un autre problème peut être rencontré si le point de départ est dans la tache blanche. On commence donc par déterminer le point blanc entouré de blanc le plus proche du point test, qui servira de point de départ au renifleur.

Cette procédure est relativement robuste et ne nécessite qu'une chose : que le point de départ soit à l'intérieur de la bulle. Ce point lui est passé manuellement pour la première image puis chaque image utilise le résultat de la précédente comme nouveau point de départ. La procédure se résume ainsi :

1. Détermination du point de départ.
 - (a) Détermination du point blanc entouré de blanc le plus proche du point test initial (pour partir depuis l'extérieur de la tache blanche centrale).
2. Détermination du centre et première estimation du rayon.
 - (a) Envoi du point renifleur dans les quatre directions pour déterminer les centres et rayons des frontières rencontrées.
 - (b) Seule la frontière de rayon maximum est retenue (pour éliminer la tache blanche). Elle donne le centre de la bulle et une sous estimation de son rayon.
3. Détermination de l'épaisseur de la frontière.
 - (a) Envoi de lignes en étoile depuis le centre (une dizaine suffit). Chaque ligne rencontre un nombre de points noirs qui donne l'épaisseur qu'elle voit.
 - (b) Calcul de l'épaisseur moyenne de toutes les lignes ainsi que de sa déviation standard.
 - (c) Elimination des épaisseurs à plus d'une déviation standard de l'épaisseur moyenne.
 - (d) Nouveau calcul de l'épaisseur moyenne avec les valeurs restantes.
4. Détermination finale du rayon.

(a) Ajout de la moitié de l'épaisseur ainsi calculée au rayon trouvé par le renifleur.

La figure 7.7 résume graphiquement l'analyse de deux cas représentatifs.

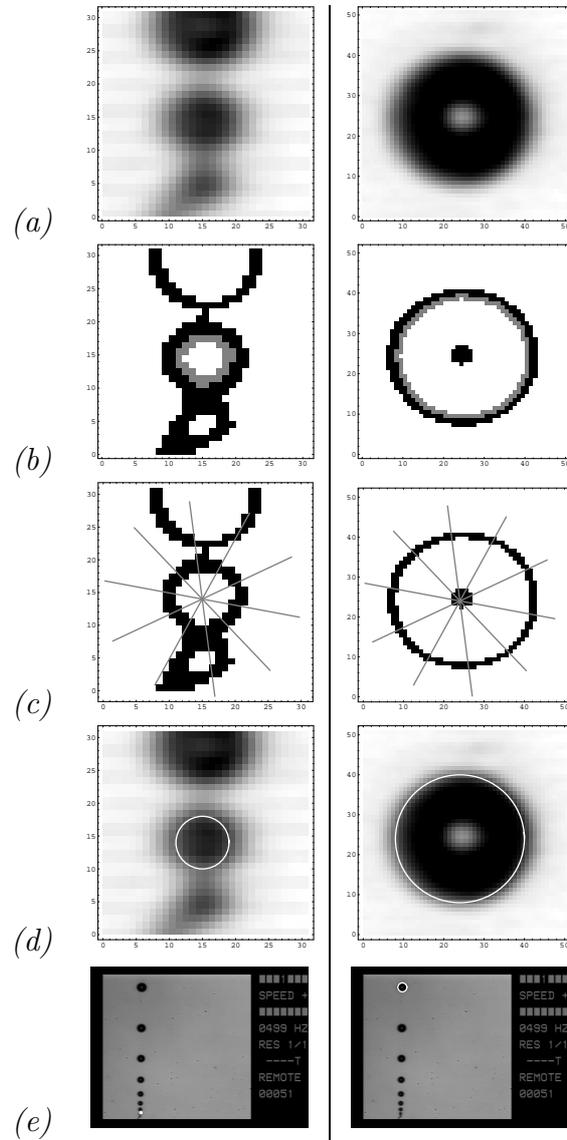


FIG. 7.7 – Résumé des étapes dans deux cas représentatifs. (a) Photos originales. (b) Utilisation du renifleur pour déterminer les bords intérieurs. (c) Utilisation de lignes en étoile pour déterminer l'épaisseur moyenne de la frontière. (d) Résultat. (e) Vue globale du positionnement et du diamètre de la bulle suivie.

L'algorithme doit être capable de traiter des images présentant des difficultés très différentes, comme la présence d'une tache blanche centrale (figure 7.1) ou la présence de la fibre et/ou d'autres bulles, parfois au contact de la bulle ciblée (figure 7.2) dans un même film (les bulles de la figure 7.7 sont toutes extraites d'un unique train de bulle). Cet algorithme est un mélange de 3 algorithmes très différents qui ont chacun été testé puis abandonné pour leur mauvaise adaptation à tous les cas possibles. On y retrouve donc l'empreinte d'un algorithme de type "statistique", qui a laissé en héritage le calcul

de l'intensité médiane qui servait initialement à calculer les valeurs moyennes des points noirs, celle d'un algorithme de type "renifleur", et celle d'un algorithme de type "étoile", qui servait initialement à repérer les pentes maximales de l'intensité dans toutes les directions, un peu comme dans l'analyse expérimentale des images au chapitre 5.

On a donc une procédure capable de fournir précisément le centre et le rayon de la bulle en en connaissant un point à l'intérieur et un rayon grossier (nécessaire pour délimiter, dans l'image totale, la zone grossière dans laquelle l'algorithme travaille). Ces valeurs sont déterminées manuellement dans la première image, puis les résultats d'une image sont utilisés comme valeurs de départ pour l'image suivante. La position du centre trouvé est incrémentée de la différence de position entre les deux images précédentes. De la sorte, la bulle est grossièrement suivie, ce qui permet de toujours s'y trouver à l'intérieur pour l'image suivante. Naturellement, des procédures vérifiant l'intégrité des données extraites par le programme ont été écrites. Il suffit de superposer le cercle obtenu à l'image originale pour vérifier visuellement et instantanément si le traitement est correct (figures 7.5 et 7.7). Il est également possible de reconstituer une petite animation avec les images des cercles trouvés pour un film. Dans tous les cas, la correspondance est très acceptable et précise.

Suivant les ordinateurs sur lesquels elle tourne, la procédure traite près de 100 images en environ 45 minutes, soit environ 5 secondes par image (l'essentiel de ce temps étant pris par le chargement de l'image en mémoire vive et non par le traitement lui-même) contre une à deux minutes pour un humain. Chaque film contient entre 100 et 200 images. Environ 80 films ont été traités, ce qui justifie la mise au point et l'utilisation d'un programme.

On obtient donc, en laissant tourner la procédure, les valeurs successives précises de la position et du rayon d'une bulle sélectionnée, pour toutes les images d'un film donné. Dans la mesure où les dérivées de ces fonctions seront nécessaires, les courbes discrètes obtenues sont approximées par des polynômes du 4^e degré, ce qui s'avère toujours très correct. Enfin, les unités expérimentales ($\text{pixels.images}^{-1}$) sont traduites en unités standards ($\mu\text{m}.s^{-1}$), ce qui se fait sachant que 520 pixels représentent 2200 μm et connaissant la fréquence d'enregistrement des images (1000 images. s^{-1} la plupart du temps).

7.2.2 Résultats.

La figure 7.8 représente les rayons mesurés par la procédure automatique pour quelques sites. Les données ont une forme d'escalier, qui est un effet de pixellisation de l'image grossière. Le pixel est la limite de résolution de la mesure et chaque palier représente un grandissement d'un pixel. Les rayons des bulles augmentent d'environ 20 à 25 pixels, et varient donc de 10 à 100 microns sur les deux premiers millimètres de l'ascension. Les courbes sont des droites, ce qui confirme les mesures faites manuellement au chapitre 4,

ainsi que les données déjà obtenues par G. Liger-Belair *et al.* [45].

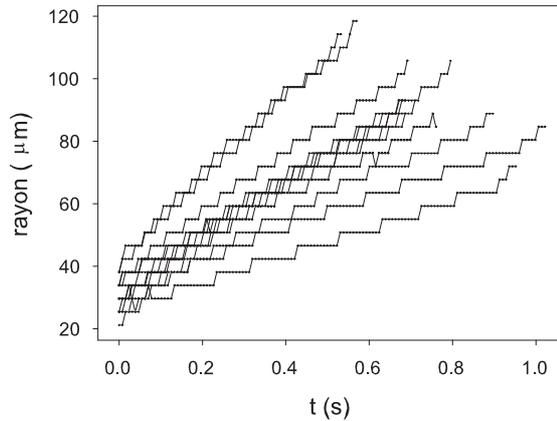


FIG. 7.8 – *Evolutions de quelques rayons de bulles durant les deux premiers millimètres de l’ascension, telles qu’elles sont fournies par la procédure d’analyse automatique. L’allure d’escalier des données est due à la pixellisation : chaque palier représente un grossissement d’un pixel. A cette échelle de grossissement, les rayons grandissent d’environ 20 à 25 pixels. Les courbes apparaissent cependant nettement comme des droites. L’incertitude sur les rayons est de $4 \mu\text{m}$.*

Les positions mesurées par la procédure sont montrées pour les même sites sur la figure 7.9a. La dérivation de ces courbes donnent les vitesses des bulles aux premiers instants de leur vie (figure 7.9b), qui révèlent que les bulles accélèrent progressivement, leurs vitesses variant de 1 à $10\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ environ.

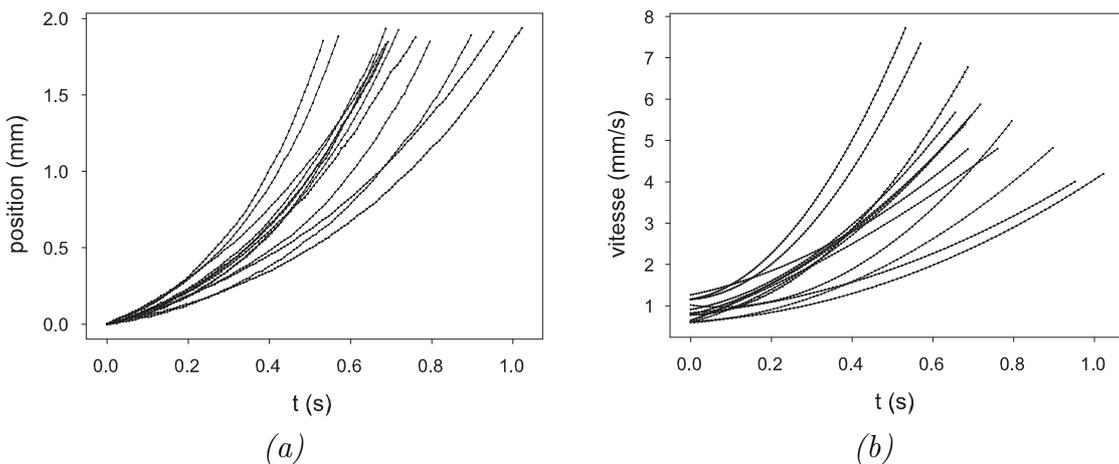


FIG. 7.9 – *Positions et vitesses des bulles en fonction du temps. (a) Positions mesurées par la procédure informatique. (b) Vitesses obtenues par dérivation des courbes (a). L’incertitude sur les positions est de $4 \mu\text{m}$ et celle sur les vitesses de $10 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.*

7.3 Quelques précautions.

7.3.1 Nombres de Reynolds.

Les données des figures 7.8 et 7.9 permettent de tracer les nombres de Reynolds des bulles (figure 7.10), qui s'avèrent suffisamment petits pour autoriser l'utilisation des expressions (7.1) et donc (7.2).

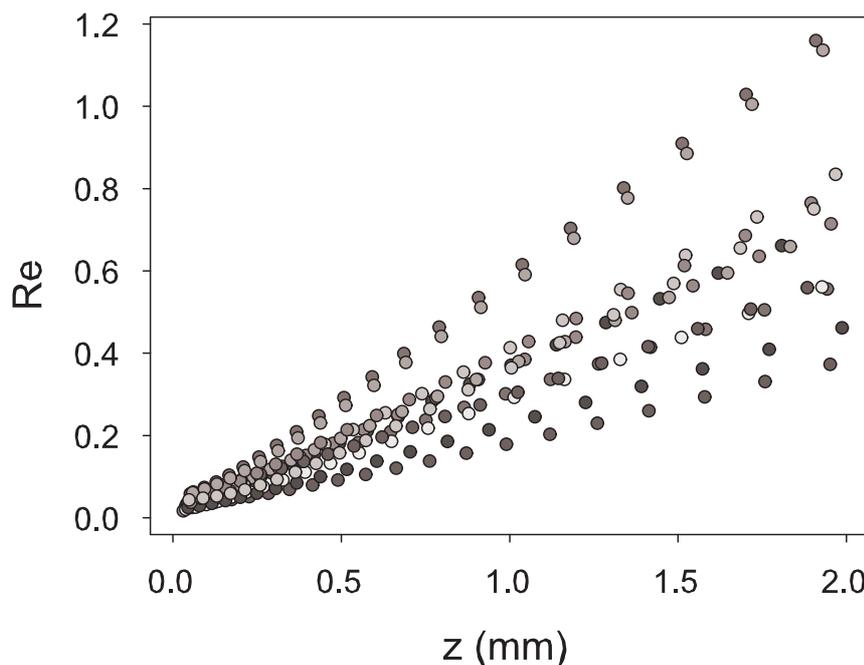


FIG. 7.10 – Nombres de Reynolds des bulles au cours de leur ascension pour quelques sites.

Par ailleurs, on vérifie bien sur la figure 7.10 que les nombres de Reynolds varient linéairement avec la hauteur z , comme prévu par la théorie (équation (B.8) de l'annexe B).

7.3.2 Stationnarité de la vitesse.

Les équations (7.2) sont valides dans le cas d'une bulle montant librement dans un liquide infini et ayant atteint un état de vitesse et de rayon constants, ce qui n'est pas le cas des bulles étudiées ici. Il faut donc vérifier si les bulles sont *localement* dans un état stationnaire, c'est-à-dire si elles ont le temps d'atteindre leur vitesse d'équilibre pour un rayon donné avant que celui-ci ne varie sensiblement.

On va, dans cette section, comparer le temps t_u requis par la bulle pour atteindre sa vitesse limite pour un rayon donné, avec son temps caractéristique de grossissement $\tau_R = (\partial \ln R / \partial t)^{-1}$.

Une estimation de t_u peut être trouvée en évaluant le temps nécessaire à une bulle de vitesse initiale nulle pour atteindre sa vitesse limite. C'est en fait une large surestimation, mais il apparaîtra qu'elle est déjà négligeable devant τ_R , ce qui suffira pour conclure. Le calcul détaillé du temps requis par une bulle pour atteindre 95% de sa vitesse stationnaire est donné dans l'annexe B et conduit à la valeur $t_u \approx 2\alpha_{am}R^2/\eta\chi \approx 10^{-3}s$, où $\alpha_{am} = 1/2$ est le coefficient de masse ajouté qui représente l'inertie du liquide déplacé par la bulle, et χ une constante valant 4 ou 6 suivant l'état de surface de la bulle.

Les résultats expérimentaux (figure 7.8), en accord avec d'autres travaux [45], montrent que le rayon de la bulle grossit linéairement avec le temps : $R = kt$, avec un taux de grossissement k compris entre 20 et 200 $\mu m.s^{-1}$. Pour un rayon typique de 50 μm , cela entraîne une valeur $\tau_R \approx 1s$. Par suite, $t_U/\tau_R \approx 10^{-3}$. Sachant que t_U est une large surestimation du temps réel mis par la bulle pour atteindre sa vitesse d'équilibre, il est permis d'en conclure sans aucun doute possible que la vitesse d'ascension de la bulle est constamment stationnaire en regard de sa vitesse de grossissement. Cela signifie que l'accélération des bulles est uniquement due à leur grossissement. Il ne s'agit pas d'une mise en équilibre mais de l'évolution d'un état d'équilibre instantanément atteint. La vitesse augmente *uniquement* parce que le rayon augmente.

7.4 Application aux données expérimentales

L'injection des données des figures 7.8 et 7.9b dans l'équation (7.2) fournit les courbes de la figure 7.11. Les vitesses sont très inférieures à leur limite théorique minimale, ce qui trahit la présence de perturbations dans le mouvement des jeunes bulles.

Un montage permettant d'observer les bulles de profil a été réalisé afin d'identifier les éléments perturbateurs : une lame (parfois une lamelle) de microscope est suspendue par un fil dans la flûte, perpendiculairement à sa paroi (figure 7.12).

Une photo prise à l'aide de ce montage révèle la proximité de trois éléments susceptibles de modifier l'ascension des bulles : la paroi, les autres bulles, et la fibre (figure 7.13).

La paroi et la fibre sont des objets fixes, qui annulent la vitesse du liquide à leur contact. On s'attend donc à ce qu'ils ralentissent les bulles, augmentant ainsi la résistance apparente du liquide à leur avancement. Ces deux éléments sont donc *a priori* responsables du ralentissement illégal apparent, observé sur la figure 7.11.

Lorsque les bulles sont en groupe, chacune évolue dans un liquide entraîné par les bulles qui l'encadrent. On attend donc un effet d'entraînement de groupe des bulles, augmentant la vitesse d'une bulle dans un train par rapport à la vitesse d'une bulle identique isolée.

Des corrections annulant les effets des trois éléments perturbateurs doivent donc être apportées à la vitesse des bulles, afin de rétablir artificiellement, pour chaque bulle,

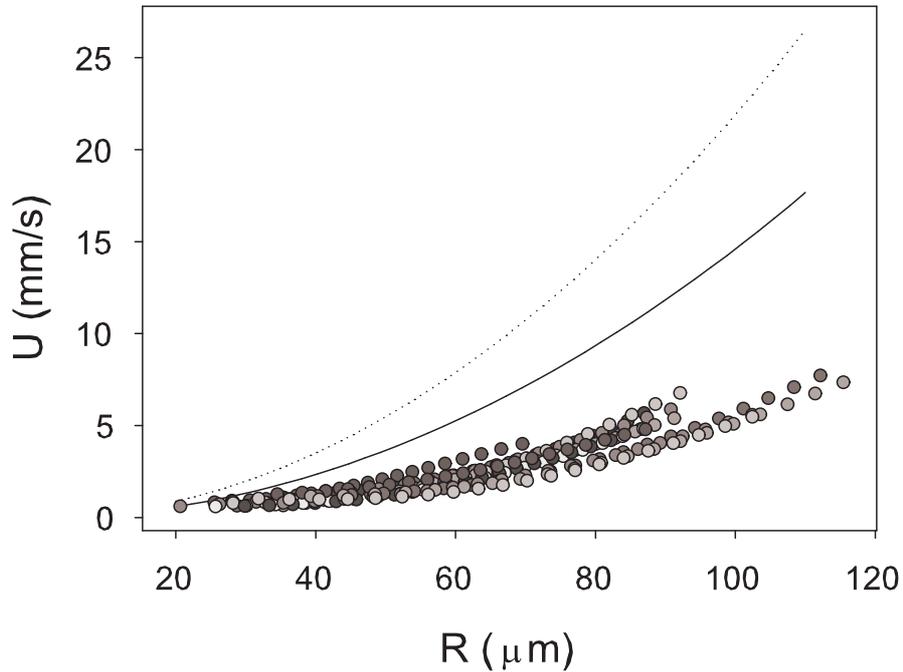


FIG. 7.11 – Vitesse en fonction du rayon sans aucune correction. Les points représentent les données et les deux courbes donnent les limites rigide (trait continu) et fluide (pointillés) des vitesses, d'après les équations (7.2). Les vitesses expérimentales sont toutes très inférieures à la limite minimum, ce qui indique la nécessité de corrections. L'incertitude sur les rayons est de $4 \mu\text{m}$ et celle sur les vitesses de $10 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.



FIG. 7.12 – Montage réalisé pour observer la nucléation de profil. Une lame de microscope (ou parfois une lamelle) est suspendue à un fil. Le fil est nécessaire pour désolidariser au maximum le trombone de la tige filetée, ce qui permet à la gravitation d'assurer la verticalité de la lame.

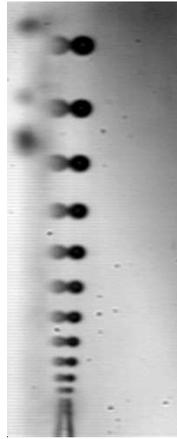


FIG. 7.13 – *Vue de profil des deux premiers millimètres de l’ascension. La proximité de la paroi, visible grâce aux reflets des bulles, ainsi que celle des autres bulles et de la fibre, peuvent perturber la vitesse de chaque bulle.*

la situation d’isolement autorisant la comparaison avec les équations (7.2). La section suivante examine plus précisément une à une ces corrections.

7.5 Corrections à la vitesse.

7.5.1 Correction due à la paroi de verre.

Du fait de la généralité et des multiples applications du problème, de nombreux auteurs se sont intéressés aux modifications de vitesse occasionnées par un mur vertical sur une particule sphérique. Takemura [60] et Magnaudet *et al.* [61] présentent un panorama théorique et expérimental récent des études existantes. Sano [62] a étudié théoriquement le cas d’une sphère évoluant à l’intérieur d’un cylindre, dont le cas limite (quand le rayon du cylindre devient grand devant celui de la bulle) est celui d’un mur vertical. Ses résultats ont été expérimentalement confirmés par Lecoq *et al.* [63]. Godin *et al.* [64] ont simulé numériquement ce problème et Ligneul *et al.* [65] ont abordé le cas d’un mur en mouvement via un cylindre en rotation. Des études sur la sédimentation et la diffusion de particules colloïdales, généralement représentées par de minuscules sphères très lentes, abordent aussi ce genre de problème (par exemple [66]). Il existe également des études théoriques [67] et numériques [5] de bulles très déformables. Takemura *et al.* [68] et Magnaudet *et al.* [61] prévoient de très légères déformations de bulles quasi sphériques, mais dont il n’a pas été tenu compte ici. Les bulles étudiées seront considérées comme parfaitement sphériques.

Seules les bulles décollant de fibres accrochées à la paroi de la flûte sont observées. Une bulle va ainsi, au début de son ascension, se trouver à proximité de la paroi de verre. Cette paroi va la ralentir en imposant une vitesse d’écoulement nulle du liquide à son

contact, qui se répercute sur la vitesse de la bulle *via* la viscosité du liquide. La bulle est également repoussée par le mur [61, 68, 69].

Le problème d'une sphère se déplaçant dans un fluide visqueux parallèlement à un mur ne semblant pas avoir de solution analytique générale, on utilise généralement des solutions sous la forme de développements de Taylor du rapport "rayon de la bulle/distance du centre de la bulle au mur" qui varie de 0 à 1 et qu'on a appelé $1/d^*$. Clift *et al.* [44] reportent la correction au premier ordre dans les cas d'un mur parallèle à l'écoulement :

$$\frac{U_\infty}{U} = \frac{1}{1 - \frac{9}{16} \frac{1}{d^*} + 0 \left(\frac{1}{d^*}\right)^3} \quad (7.4)$$

Il faut déterminer si cette approximation est suffisante dans notre cas. Il n'est pas possible de déterminer la distance de la bulle à la paroi de la flûte à partir des photos de face prises habituellement. Le dispositif réalisé pour observer les bulles de profil (figure 7.12) a donc été utilisé. Il ne permet toutefois pas d'obtenir des images de bonne qualité et donc exploitables quantitativement. Les bulles trop proches de la paroi de la flûte ne peuvent pas être filmées, car la paroi gêne leur ascension de profil de la même façon qu'elle le fait de face. On est donc contraint de filmer des sites relativement éloignés du bord de la flûte. Mais l'énorme grossissement utilisé impose une très faible profondeur de champ et exige une très faible distance entre l'objectif et le modèle. D'une part, l'optique réclame une faible distance, et de l'autre, la physique en exige une grande. Dans cette étude, l'éloignement du bord de la flûte a été privilégié, ce qui impose des mises au point parfois approximatives. Ceci donne néanmoins une bonne idée qualitative du comportement des jeunes bulles vis-à-vis de la paroi. Il apparaît sur la figure 7.14, qui présente quelques exemples de clichés obtenus, que les bulles restent quasiment collées à la paroi.

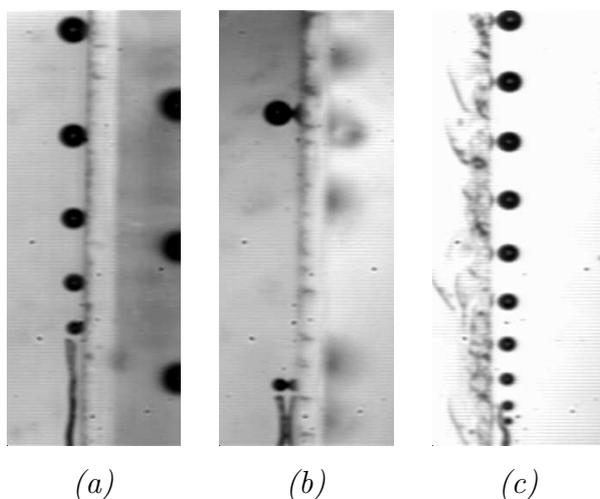


FIG. 7.14 – Profils de nucléation. En (b) et (c) il apparaît clairement que les bulles restent très proches de leur reflet.

Il faut déterminer si les bulles sont en contact avec la paroi ou si elles en sont simplement très proches. La différence est importante car, dans le premier cas, la paroi peut ralentir la bulle par adhérence, tandis que dans le second, le ralentissement n'est qu'hydrodynamique (viscosité du liquide). Il est difficile de se fier exactement à ce qui est vu sur les photos car la paroi de la lame/lamelle n'est pas visible directement. Il n'est également permis de se fier ni au reflet ni à l'épaisseur du profil de la lame/lamelle, à cause des possibles effets de perspective. En effet, si une séparation apparente du reflet est bien la preuve d'une séparation physique, l'inverse n'est pas vrai. Un indice est fourni si l'on suit une ascension plus longtemps. La figure 7.15 montre plusieurs sites photographiés à différentes hauteurs sur la lame. Il y apparaît que les bulles s'éloignent invariablement de la lame de façon très douce, conformément aux prévisions théoriques [61, 68, 69], ce qui témoigne en faveur d'une absence de contact à petite échelle.

Par ailleurs, afin d'observer les effets de l'inclinaison de la paroi sur le comportement de la bulle, cette inclinaison a été exagérée. Les résultats sont montrés sur la figure 7.16. Il y apparaît une action de la paroi même à distance : les bulles sont toutes systématiquement très nettement déportées du côté de la pente.

Encore une fois, il est hasardeux de quantifier par des mesures visuelles ce qui est vu sur les photos, du fait des effets possibles de perspective. Il est en tous cas certain, au vu de toutes ces observations, que la bulle ne s'éloigne pas significativement de la paroi dans les premiers instants de sa vie et très probable qu'elle n'y est pas collée mais simplement très proche. De ces données, il reste l'idée que le rapport $1/d^*$ est vraisemblablement très proche de 1. Dans ces conditions, l'équation (7.4) étant un développement en série, il est probable que le premier ordre ne suffise pas. Il existe, dans les travaux publiés [70, 61, 66], une formule à l'ordre 5 pour une bulle avançant parallèlement à un mur :

$$\frac{U_\infty}{U} = \frac{1}{1 - \frac{9}{16} \frac{1}{d^*} + \frac{1}{8} \left(\frac{1}{d^*}\right)^3 - \frac{45}{256} \left(\frac{1}{d^*}\right)^4 - \frac{1}{16} \left(\frac{1}{d^*}\right)^5} \quad (7.5)$$

Cette formule a été vérifiée expérimentalement [71]. Concrètement, dans les calculs, l'équation (7.5) a été utilisée, avec une séparation $d - R$ fixée à $1 \mu m$. Son application aux courbes de la figure 7.11 fournit celles de la figure 7.17.

7.5.2 Correction due aux autres bulles

La bulle étudiée est précédée et suivie d'autres bulles. Les auteurs s'étant intéressés à ce type de correction [72, 73] ont analysé des trains dans des liquides non sursaturés en gaz, et donc composés de bulles de rayon identique et constant montant donc à vitesse constante et régulièrement espacées. Les bulles dans le champagne ont un rayon croissant et sont donc accélérées. Par conséquent, la bulle qui suit la bulle étudiée est plus petite et plus proche que celle qui la précède. Il a donc fallu adapter les méthodes utilisées dans

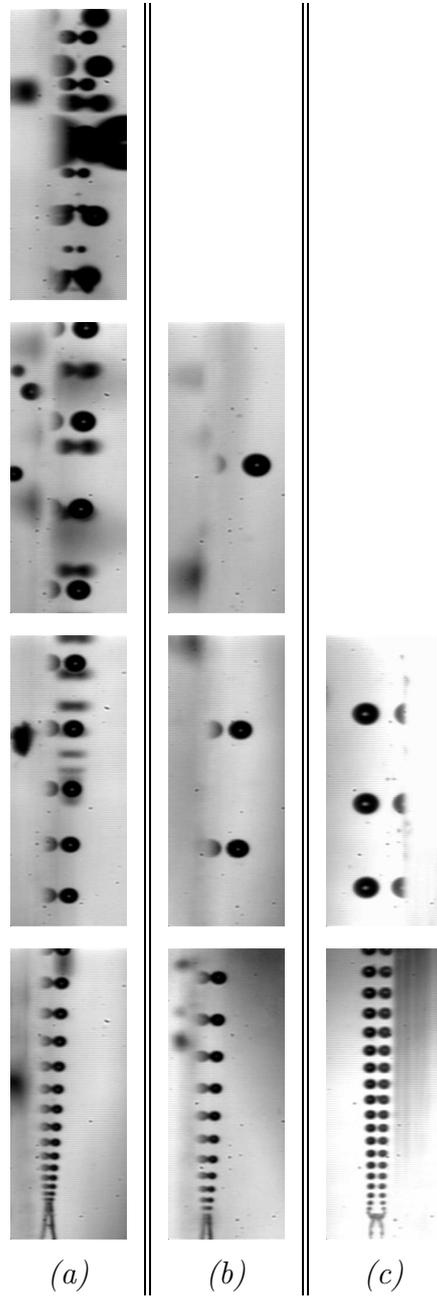


FIG. 7.15 – *Décollement progressif de trois sites. Pour chaque site, de bas en haut on s'élève dans la flûte.*

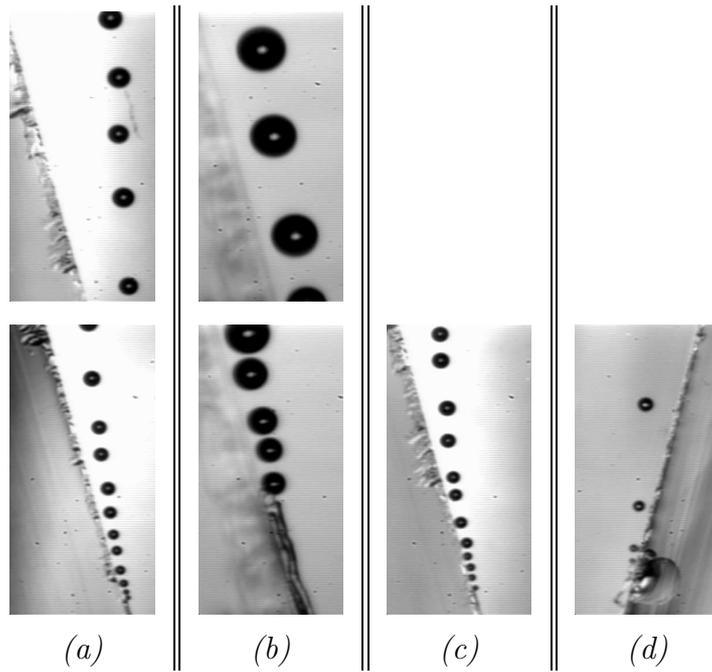


FIG. 7.16 – *Décollements forcés par une pente forte.*

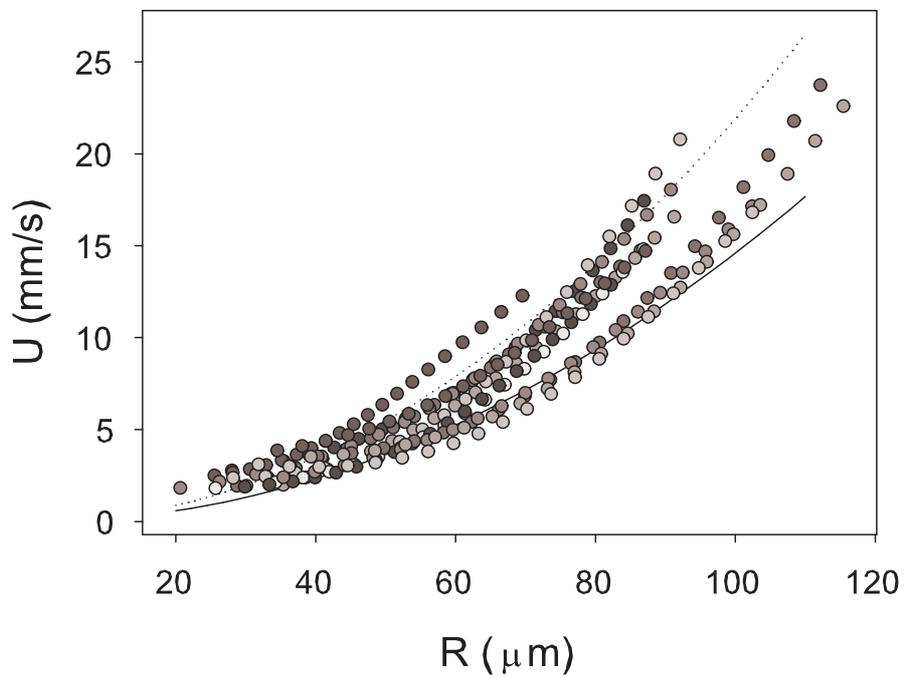


FIG. 7.17 – *Correction due à la paroi uniquement. La paroi ralentissant les bulles, son annulation artificielle augmente les vitesses par rapport à la figure 7.11.*

la littérature au cas présent.

On suivra ici la méthode proposée par Katz et Meneveau [72]. Chaque bulle évolue dans un fluide mis en mouvement par les bulles qui l'encadrent. En calculant l'écoulement autour des bulles précédant et suivant celle étudiée, il est possible d'en déduire les gradients de pression et les vitesses de liquide qui vont modifier sa vitesse. Katz et Meneveau font ce calcul dans le cas de bulles de rayons constants et identiques qui s'apparient lors de leur ascension. Le principe de leur calcul sera ici repris, mais adapté au cas d'un train de bulles accélérant, c'est-à-dire en tenant compte des différents rayons et vitesses des bulles encadrant celle étudiée.

Les notations de la figure 7.18 seront ici utilisées. La vitesse d'une bulle est modifiée par l'addition des vitesses du fluide entraîné par les bulles qui l'encadrent [72] :

$$U_t = U_i \left(1 - \frac{1}{\rho g} \frac{\partial P_1}{\partial z} - \frac{1}{\rho g} \frac{\partial P_2}{\partial z} \right) + u_1(\lambda_1) + u_2(\lambda_2) \quad (7.6)$$

où les termes u_i sont les contributions des bulles encadrantes à la vitesse du fluide au niveau de la bulle étudiée. Le terme entre parenthèses représente la correction au gradient de pression gravitationnel ρg apportée par les gradients de pression des courants dus aux bulles encadrantes : $\rho g \rightarrow \rho g - \partial P_1/\partial z - \partial P_2/\partial z$. L'équation (7.6) ajoute à la vitesse de la bulle celle du fluide dans lequel elle évolue.

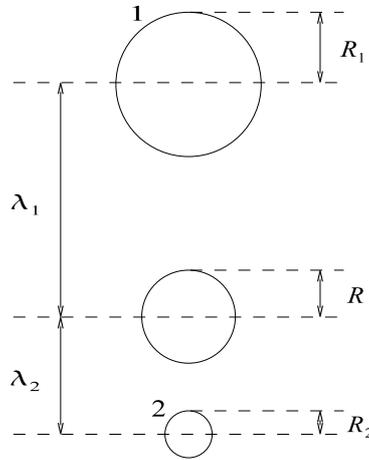


FIG. 7.18 – Notations utilisées pour les bulles 1 et 2.

La vitesse de la bulle isolée s'écrit donc :

$$U_i = \frac{U_t - u_1(\lambda_1) - u_2(\lambda_2)}{1 - \frac{1}{\rho g} \frac{\partial P_1}{\partial z} - \frac{1}{\rho g} \frac{\partial P_2}{\partial z}} \quad (7.7)$$

Les détails des calculs de chacun des termes de cette équation sont donnés dans l'annexe C et conduisent à la correction suivante :

$$U_i = \frac{U_t - \frac{8U_1}{Re_1} \left(1 - e^{-\frac{Re_1 R^2}{8R_1 \lambda_1}}\right) - \frac{2U_2}{Re_2} \frac{R_2^2}{\lambda_2^2} \left(1 - e^{-\frac{Re_2}{2} \frac{\lambda_2}{R_2}}\right)}{1 - \frac{4U_1^2}{gR_1 Re_1} \left(\frac{R_1}{\lambda_1}\right)^3 - \frac{4U_2^2}{gR_2 Re_2} \left(\frac{R_2}{\lambda_2}\right)^3} \quad (7.8)$$

Afin d'éprouver la formule (7.8), on l'a comparée aux résultats obtenus par Katz et Meneveau [72] sur l'appariement des bulles montant en lignes. Ces auteurs observent, entre autres, le rapprochement deux à deux de bulles d'un diamètre de $87 \mu m$, montant en colonne dans de l'eau stagnante. Ils tracent les vitesses des bulles en fonction de la distance qui les séparent. Les vitesses sont normalisées par la vitesse d'une bulle seule et les distances par le diamètre des bulles, c'est-à-dire par la distance minimale qui peut les séparer, puisque les bulles ont toutes le même diamètre. Katz et Meneveau regardent donc comment varie le rapport U_t/U_i en fonction du rapport $\lambda/2R$. Ces deux rapports sont toujours supérieurs à 1 et celui des vitesses atteint la valeur d'environ 1.6 quand les bulles sont très proches.

Mais, dans le cas de Katz et Meneveau, la vitesse de référence est connue et constante alors que c'est précisément notre inconnue et qu'elle est variable puisque les bulles étudiées ici grossissent. De plus, ces bulles n'ayant pas toutes le même rayon, on ne peut se contenter de normaliser par un rayon unique pour obtenir un rapport variant entre 1 et l'infini. Puisque, dans l'étude de Katz et Meneveau, λ représente la distance à la bulle la plus proche, il a été choisi de travailler avec la bulle inférieure, toujours beaucoup plus proche de celle étudiée, du fait de l'accélération. La distance entre la bulle étudiée et celle qui la suit a donc été normalisée par la somme de leurs rayons. Le rapport U_t/U_i a ainsi été tracé en fonction du rapport $\lambda_2/(R + R_2)$. U_t est la vitesse mesurée et U_i celle calculée par l'équation (7.8).

Puisque la bulle n'est suivie que sur les deux premiers millimètres de son ascension, le rapport $\lambda_2/(R + R_2)$ ne varie pas énormément. Par ailleurs, les sites étudiés présentant des fréquences assez différentes, ce rapport varie également d'un site à l'autre. Pour certains sites, il est compris entre 1 et 2, pour d'autres, entre 5 et 9, *etc.* Pour couvrir une gamme complète de rapports, les résultats de nombreux sites ont donc été superposés (figure 7.19).

Les corrections sont plus importantes dans notre cas que pour Katz et Meneveau. Une première raison est que ces auteurs normalisent avec une vitesse U_i constante, tandis qu'on normalise ici avec une vitesse U_i croissante, ce qui augmente le rapport U_t/U_i en début de parcours. Une deuxième raison est la présence de la bulle 3, qui suit la bulle 2 (figure 7.20). Cette bulle est beaucoup plus proche de la bulle 2 dans notre cas (accélération uniforme) que dans le leur (appariement deux à deux). La proximité de la bulle 3 dans notre cas contribue à augmenter la vitesse de la bulle 2 et donc de la bulle 1, et par conséquent, le rapport U_t/U_i . La différence avec les résultats de Katz et Meneveau n'invalide donc pas les nôtres, elle s'explique par les conditions très différentes

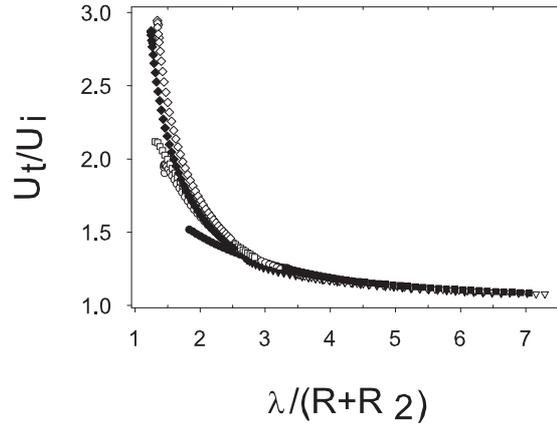


FIG. 7.19 – Correction due à la présence d'autres bulles d'après l'équation (7.8). Seules sont montrées les corrections comprises dans la gamme de rapport $\lambda_2/(R + R_2)$ intéressante ($1 \rightarrow 8$). Pour les sites situés au-delà, la correction tend vers l'unité.

sous lesquelles on travaille.

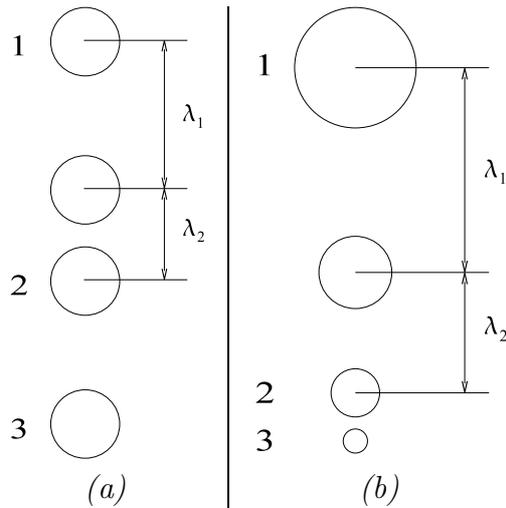


FIG. 7.20 – Comparaison entre le train de Katz et Meneveau et celui présentement étudié. (a) Train de bulles de Katz et Meneveau. Les bulles ont la même taille, une vitesse constante, et se regroupent par deux. (b) Train de bulles étudié ici. Les bulles grossissent et accélèrent.

7.5.3 Correction due à la fibre.

Rigoureusement, la fibre est un objet oblong situé sous le train de bulles. Sa forme précise est inconnue et variable. Une bonne approximation serait de la considérer comme un cylindre et de calculer la force exercée sur une bulle montante par un cylindre stationnaire situé sous elle, mais ce type de calcul est en général très compliqué. La figure

7.19 montre cependant que l'influence des bulles les unes sur les autres ne s'étend pas significativement au delà de quatre fois le diamètre d'une bulle. On peut donc supposer que l'influence mutuelle de la fibre et des jeunes bulles ne se fera pas sentir au delà d'une distance semblable, voire inférieure, compte tenu de la très faible vitesse des bulles à leur naissance. La faible perturbation due à la fibre s'estompe donc rapidement et sera ignorée ici.

7.5.4 Résultats.

En appliquant la correction de l'équation (7.8) aux courbes de la figure 7.17, on obtient la figure 7.21a.

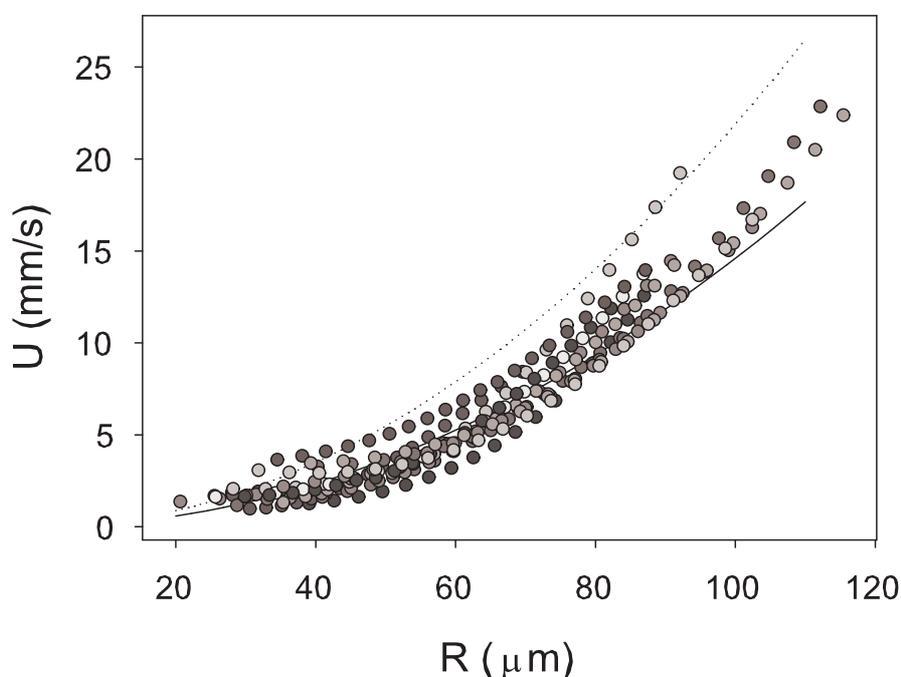


FIG. 7.21 – *Sites traités.* Ces résultats montrent une fluidification progressive de la bulle, c'est-à-dire une dilution de sa population de surface aux alentours de $R \approx 80\mu\text{m}$.

On constate, en moyenne, une transition entre les états rigide et fluide pour des rayons de l'ordre de $80\mu\text{m}$. La rigidification d'une bulle dans une solution contenant des surfactants est classiquement attribuée à l'adsorption des surfactants sur la bulle [46], lesquels, entraînés par l'écoulement à l'arrière de la bulle, y amoindrissent la tension de surface. Le gradient de tension de surface résultant crée un contre courant (effet Marangoni) qui s'oppose à l'écoulement et tend à amoindrir, voire annuler, la mobilité du liquide à l'interface, conférant ainsi à la bulle, lorsque le nouvel équilibre est établi, les propriétés d'une sphère rigide –vitesse superficielle nulle– (voir par exemple [74]).

Un tel ralentissement a été récemment observé dans une solution de BSA par C. Ybert et J-M Di Meglio [42]. Cependant, les travaux de M. Ahmed *et al.* [75] et A. Dussaud *et al.* [14, 76] ont montré que la présence d'éthanol diminue significativement l'adsorption des protéines. D'autre part, J. Senée *et al.* [77, 78] ont pu mettre en évidence le rôle important des sucres des glycoprotéines sur la dynamique interfaciale. Il apparaît donc que la solution de BSA est peu comparable à un vin.

La situation est encore plus complexe dans un liquide carbonaté comme le Champagne car la bulle grossit, ce qui dilue les tensioactifs à sa surface et tend donc à la fluidifier. Elle est donc soumise à deux effets antagonistes. Les résultats de la figure 7.21 montrent que la dilution l'emporte sur la contamination. La fluidification des bulles a déjà été décrite par Liger-Belair *et al.* [3]. Mais travaillant sur la hauteur complète de la flûte et sans correction, ces auteurs prévoient une fluidification pour des nombres de Reynolds d'environ 5.

La figure 7.21 indique que la fluidification commence pour des rayons d'environ $80\mu m$. La figure 7.8 révèle à son tour que les bulles atteignent cette taille entre 0.4 et 0.6s. Enfin, la figure 7.9 donne la vitesse des bulles lorsqu'elles se fluidifient (environ 2 à $3mm.s^{-1}$). Le rayon et la vitesse permettent d'estimer le nombre de Reynolds au moment de la fluidification. On trouve $Re \approx 0.3$, ce qui permet d'affiner le résultat précédemment trouvé par Liger-Belair *et al.* [3]. Les bulles se fluidifient donc plus tôt que prévu.

7.6 Discussion théorique.

Le caractère rigide ou fluide de la bulle est régi par la concentration moyenne des tensioactifs (masse M) à la surface $S = 4\pi R^2$ de la bulle : $\Gamma = M/S$. Sa variation avec l'altitude z s'écrit :

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial z} = \frac{1}{S} \frac{\partial M}{\partial z} - \frac{\Gamma}{S} \frac{\partial S}{\partial z} \quad (7.9)$$

Le premier terme représente l'adsorption des tensioactifs par diffusion et convection, pour une bulle de rayon R montant à une vitesse U . L'adsorption doit être favorisée lorsque la concentration en tensioactifs c et leur coefficient de diffusion D augmentent. En revanche, les effets convectifs ($\propto RU$) gênent l'adsorption car la bulle, du fait de la viscosité et de l'incompressibilité du liquide, écarte le liquide sur son passage, d'autant plus efficacement qu'elle va vite et qu'elle est grosse. On attend donc un terme d'adsorption de la forme $cD/RU \approx c/Pe$, où $Pe = 2UR/D$ est le nombre de Peclet (sans dimension) qui compare les effets convectifs et diffusifs. Plus précisément, on peut écrire $\Gamma \approx cl$, où $l = (Dt)^{1/2} \approx (DR/U)^{1/2}$ est la longueur de diffusion des protéines. En dérivant par la longueur, on obtient l'ordre de grandeur $\partial \Gamma_z \approx c(D/UR)^{1/2} \approx cPe^{-1/2}$. En fait, Levich [46] a montré que, pour des petits nombres de Reynolds, ce terme prend

la forme $0.46cPe^{-1/2}$ dans le cas d'une bulle fluide, et $0.63cPe^{-2/3}$ pour une bulle rigide.

Le second terme est précédé d'un signe moins et ralentit donc l'adsorption. Il représente la dilution des tensioactifs à la surface de la bulle du fait de son grossissement. Il est donc proportionnel à la concentration superficielle Γ et à la variation relative de la surface $\partial \log z / \partial z$. Il signifie que lorsque la surface augmente d'un certain pourcentage, la concentration de surface diminue du même pourcentage ($d \log \Gamma = -d \log S$).

Le premier terme représente donc l'adsorption à surface constante, et le deuxième la dilution à concentration superficielle constante.

Les calculs de chaque terme sont détaillés dans l'annexe B et donnent les expressions suivantes :

$$\left(\frac{\partial \Gamma}{\partial z}\right)_{FS} = 0.46c \left(\frac{2}{3} \frac{g}{\eta D} R_0^3 + \frac{6k}{D} z\right)^{-\frac{1}{2}} - \frac{\Gamma}{\frac{1}{6} \frac{g}{\eta k} R_0^3 + \frac{3}{2} z} \quad (7.10)$$

pour une bulle fluide, et :

$$\left(\frac{\partial \Gamma}{\partial z}\right)_{RS} = 0.63c \left(\frac{4}{9} \frac{g}{\eta D} R_0^3 + \frac{6k}{D} z\right)^{-\frac{2}{3}} - \frac{\Gamma}{\frac{1}{9} \frac{g}{\eta k} R_0^3 + \frac{3}{2} z} \quad (7.11)$$

pour une bulle rigide, où c est la concentration en tensioactifs dans le liquide ($c \approx 5mg.l^{-1}$ *c.f.* tableau 3.1 du chapitre 3). D est le coefficient de diffusion des tensioactifs dans le liquide. Pour des protéines d'un rayon d'environ $r_p \approx 2nm$, la formule de Stokes-Einstein permet de calculer un coefficient de diffusion $D = kT/6\pi\mu r_p \approx 6.8 \times 10^{-11} m^2.s^{-1}$. $g = 9.81m.s^{-2}$ est l'accélération gravitationnelle, $\eta = 1.6 \times 10^{-6} m^2.s^{-1}$ la viscosité cinématique du liquide, et $k \approx 100\mu m.s^{-1}$ le taux de grossissement de la bulle. $R_0 \approx 15\mu m$ est le rayon de libération de la bulle.

Dans les équations (7.10) et (7.11), le terme positif du membre de droite représente l'adsorption de tensioactifs par diffusion-convection, et le terme négatif la dilution par augmentation de surface. Pour les grands z , le terme d'adsorption devient prépondérant et l'on attend une variation de $\Gamma(z)$ en $z^{1/2}$ pour une bulle fluide, et en $z^{1/3}$ pour une bulle rigide. Aux petites valeurs de z , le comportement dépend toutefois de la valeur initiale de Γ et sera discuté au cas par cas.

On rappelle que les équations (7.10) et (7.11) sont établies pour des nombres de Reynolds $Re < 1$, soit, dans notre cas, uniquement pour les deux premiers millimètres de l'ascension ($z < 2mm$).

7.6.1 Bulle fluide.

Dans le cas d'une bulle fluide, la résolution numérique de l'équation (7.10) fournit les courbes de la figure 7.22. La courbe de référence est obtenue pour les valeurs typiques $k = 100\mu m.s^{-1}$ et $R_0 = 15\mu m$. La rigidification de la bulle y apparaît extrêmement lente,

d'une part car la concentration en protéines est faible, d'autre part parce que la dilution est importante en début de parcours. Les autres courbes montrent l'influence de valeurs différentes pour k et R_0 . La valeur initiale du rayon de la bulle R_0 n'y a aucune influence. En revanche, le taux de grossissement de la bulle joue un rôle plus important. Lorsque sa valeur augmente, la dilution devient plus rapide et ralentit d'autant l'augmentation de la concentration.

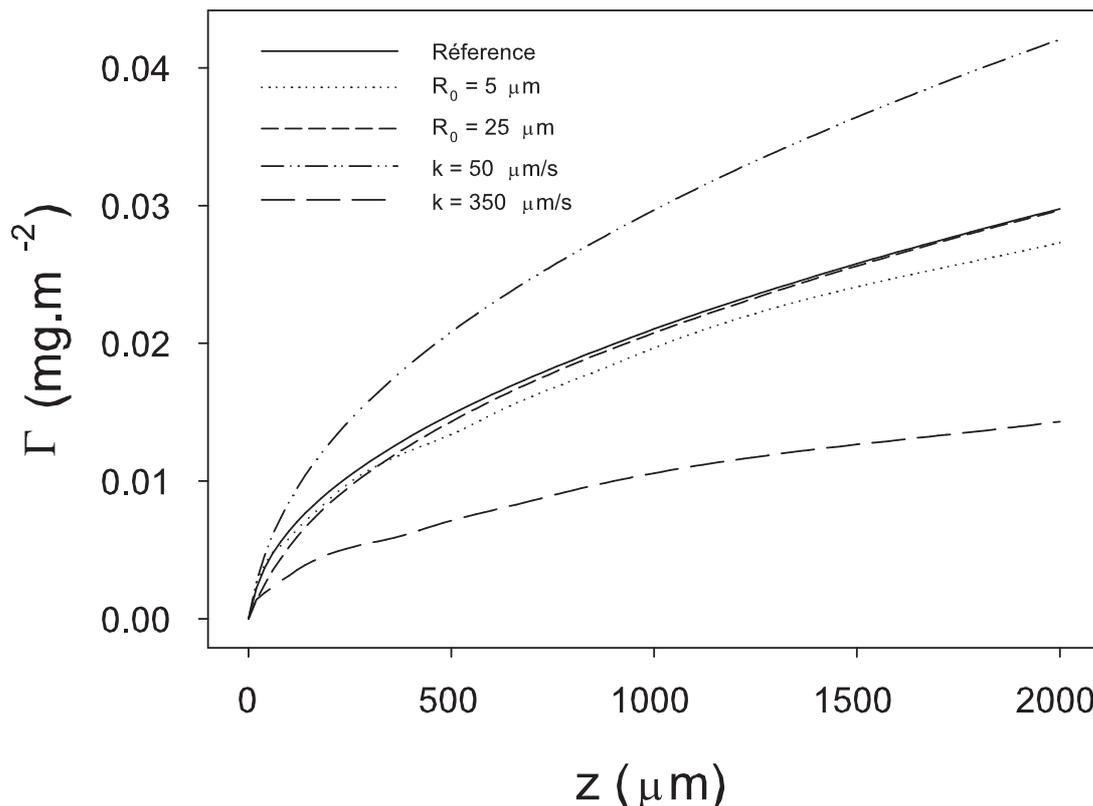


FIG. 7.22 – Concentration de surface sur les deux premiers millimètres pour une bulle fluide. La courbe de référence est tracée pour des valeurs $k = 100\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $R_0 = 15\mu\text{m}$. Le rayon initial n'a pas d'influence. L'augmentation du taux de grossissement accélère la dilution et ralentit donc l'augmentation de Γ .

7.6.2 Bulle rigide.

Pour les très petits z , on peut poser $z = 0$ dans l'équation (7.11), ce qui donne un comportement $\Gamma \propto \exp(-kz/R_0^3)$ qui prévoit donc une fluidification très rapide, d'autant plus que k est grand et R_0 faible, avec une prépondérance de l'influence de R_0 car il est élevé au cube.

La figure 7.23 donne les courbes obtenues par résolution numérique de l'équation

(7.11) sur les deux premiers millimètres de l'ascension. La valeur initiale de la concentration de surface a été fixée à $1\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}$, qui est l'ordre de grandeur de la concentration d'équilibre. La courbe de référence est calculée pour les valeurs standard $k = 100\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $R_0 = 15\mu\text{m}$. A cette échelle, le terme de dilution l'emporte et l'on observe une fluidification de l'interface, essentiellement pendant le premier millimètre. Comme attendu, la variation de R_0 est plus influente que celle de k . Ceci explique probablement la disparité des courbes de vitesses obtenues pour des sites différents (figure 7.21), pour lesquels le rayon initial varie d'un site à l'autre.

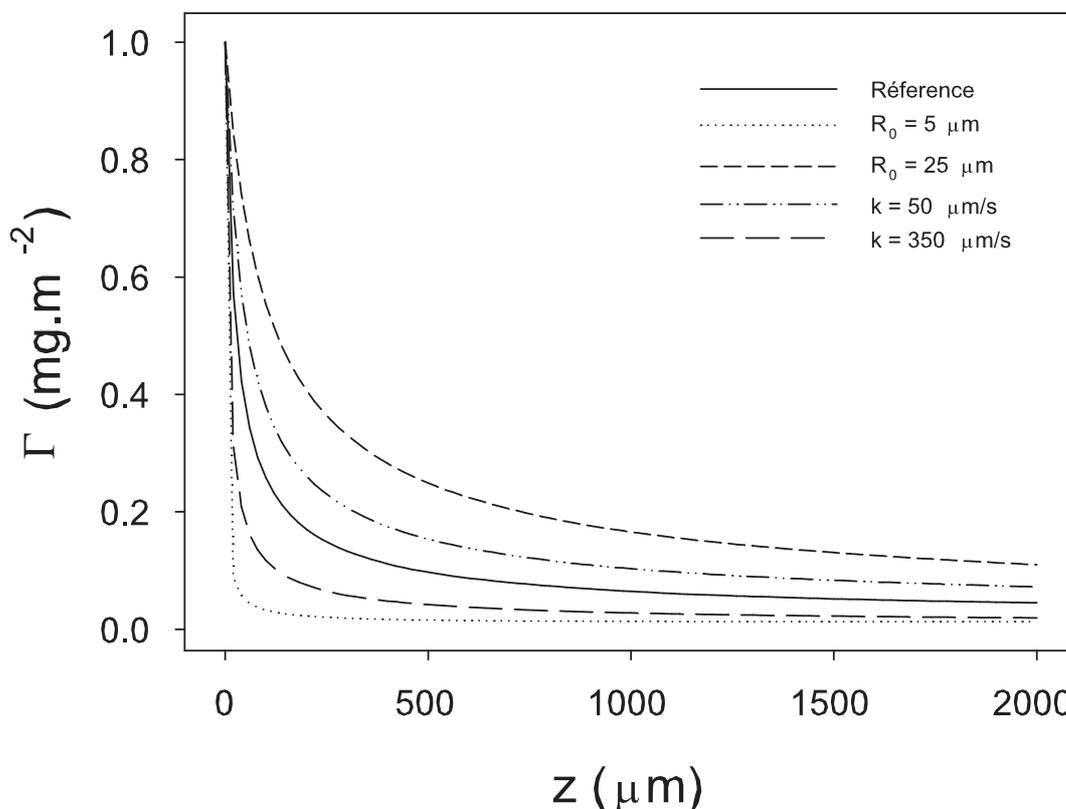


FIG. 7.23 – Concentration de surface sur les deux premiers millimètres pour une bulle rigide ($\Gamma(0) = 1\text{mg}\cdot\text{l}^{-1}$). Le comportement de Γ est cette fois dominé par la dilution et prédit donc une fluidification de la bulle. La courbe de référence est tracée pour des valeurs $k = 100\mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $R_0 = 15\mu\text{m}$. Le rayon initial R_0 est plus influent que le taux de grossissement k . Ceci est du au terme de dilution, qui représente l'accroissement relatif de la surface (équation (B.12) de l'annexe B), et qui est donc d'autant plus vif que le rayon initial est petit.

A titre indicatif, la figure 7.24 montre les courbes obtenues à partir de l'équation (7.11) pour une course de 10cm . Les nombres de Reynolds n'étant faibles que sur les deux premiers millimètres, ces courbes n'ont qu'une valeur qualitative. Elles montrent l'affaiblissement de l'influence de la variation de R_0 et l'augmentation de celle de la

variation de k . C'est une conséquence du fait que l'équation (7.11) est principalement fonction de la somme $R_0^3 + kz$ (aux constantes près), ce qui signifie que R_0 régira le comportement de Γ aux petits z , tandis que k deviendra plus important aux grands z .

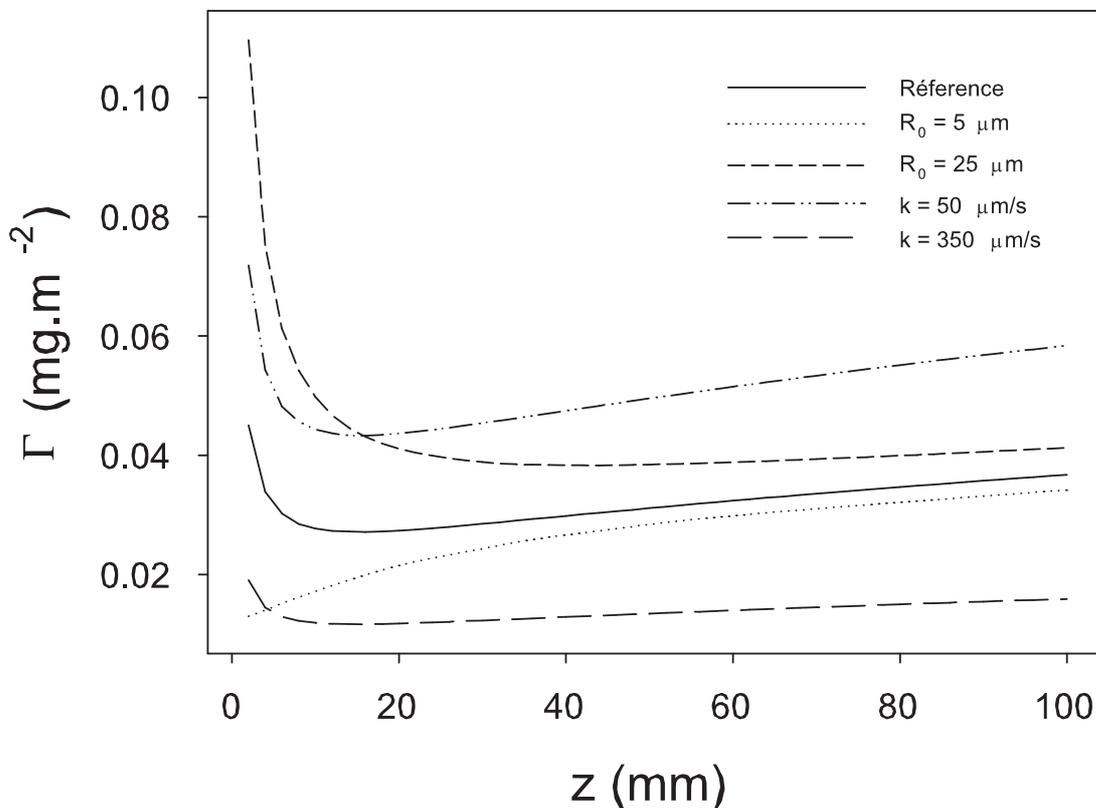


FIG. 7.24 – Concentration de surface sur dix centimètres pour une bulle rigide ($\Gamma(0) = 1\text{mg.l}^{-1}$). Les courbes n'ont ici qu'une valeur qualitative car elles sont tracées dans un domaine ($Re > 1$) où l'équation (7.11) n'est plus valable. Elles sont toutefois intéressantes car elles montrent comment les influences asymptotiques de R_0 et k s'inversent : celle de R_0 s'amenuise (pour s'annuler) et celle de k prend de l'importance.

7.7 Discussion des résultats.

L'expérience semble indiquer que les bulles, au début de leur ascension, sont rigides, puis se fluidifient durant le premier millimètre (figure 7.21). Cette rigidité est cohérente avec la modélisation d'une bulle rigide (figure 7.23), qui prévoit également une fluidification dans le premier millimètre de l'ascension, pourvu que la concentration superficielle au départ soit celle d'équilibre, soit environ $\Gamma \approx 1\text{mg.m}^{-2}$.

Toutefois, si l'on suppose que les protéines diffusent dans le liquide, la distance qu'elles parcourent pendant la libération de la bulle, soit $\Delta t \approx 0.1\text{s}$, vaut environ $l \approx (D\Delta t)^{1/2}$, où

D est le coefficient de diffusion des protéines dans le liquide. Pour des protéines d'environ $r_p = 2nm$ de rayon, la formule de Stokes-Einstein permet de calculer $D = kT/6\pi\mu r_p \approx 6.8 \times 10^{-11}m^2.s^{-1}$. Dans ces conditions, on peut trouver un ordre de grandeur de la concentration de surface de la bulle lors de sa création : $\Gamma \approx c(D\Delta t)^{1/2} \approx 0.01mg.m^{-2}$, où $c = 5mg.l^{-1}$ est la concentration en protéines dans le liquide (tableau 3.1 du chapitre 3). Cette concentration, qui est déjà celle d'une bulle fluide, est probablement de surestimée car M. Ahmed *et al.* [75] ainsi que A. Dussaud *et al.* [14, 76] ont montré que l'éthanol gêne considérablement l'adsorption des protéines.

Par ailleurs, on se souvient que la distance entre les microfibrilles qui constituent la paroi de cellulose est de l'ordre de $4nm$. Les protéines ayant un diamètre du même ordre sont donc vraisemblablement filtrées par la paroi de cellulose.

Enfin, J. Senée [77], en comparant l'adsorption de composés organiques à la surface d'une bulle millimétrique créée naturellement (lentement) et celle d'une bulle créée artificiellement (rapidement) au bout d'un capillaire, a pu montrer que l'adsorption lors de la dilatation rapide de la bulle artificielle est négligeable.

Il résulte de ce qui précède que les protéines ne peuvent être responsables de la rigidité apparente des jeunes bulles.

On peut évaluer la concentration nécessaire pour obtenir une concentration de surface suffisante pour que la bulle soit créée rigide ($\Gamma \approx 0.5mg.m^{-2}$). En appliquant $\Gamma \approx c(D\Delta t)^{1/2} = 0.5$, on trouve $c = \Gamma(D\Delta t)^{-1/2} \approx 200mg.l^{-1}$. C'est l'ordre de grandeur des concentrations des autres macromolécules (polyphénols et polysaccharides, tableau 3.1 du chapitre 3) contenues dans le champagne. Mais ces macromolécules sont de mauvais surfactants et il est peu probable qu'elles s'adsorbent à la surface de la bulle pour la rigidifier. On a tout de même regardé l'influence théorique de la concentration sur l'évolution d'une bulle rigide (figure 7.25), qui indique que de telles concentrations interdisent à la bulle de se fluidifier complètement. Hors il est établi que les bulles sont essentiellement fluides sur la hauteur d'une flûte [2, 3]. L'hypothèse de macromolécules tensioactives fantômes semble donc irrecevable.

Il est possible que la concentration en protéines soit *localement* favorisée par la présence de la fibre, mais cette voie n'a pas été explorée.

J. Senée *et al.* [79], en comparant la stabilité de films dans des vins et dans des solutions modèles de glycoprotéines alcoolisées, ont mis en évidence l'existence et le rôle d'agrégats de protéines ainsi que de microgels des sucres des glycoprotéines, dans les films liquides. Ces agrégats sont favorisés par le confinement imposé par le film, et participent à la stabilisation des mousses. Toutefois les solutions modèles de glycoprotéines levuriennes utilisées rendent imparfaitement compte des propriétés des vins dans certains cas. Les auteurs concluent donc à la présence probable de composés tensioactifs plus petits que les protéines.

Dans un autre travail plus récent [80], ces mêmes auteurs étudient les propriétés

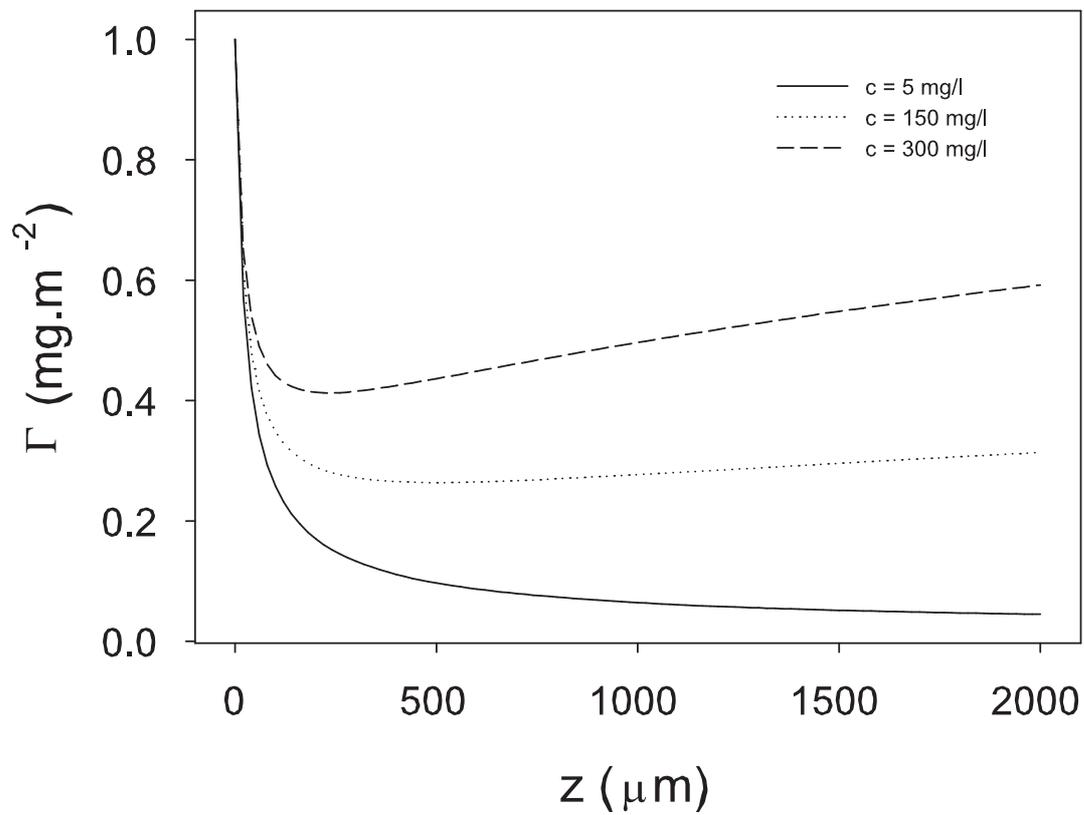


FIG. 7.25 – Influence théorique de la concentration sur les deux premiers millimètres. La concentration nécessaire pour rigidifier la bulle, d'environ 200mg.l^{-1} , interdit la fluidification.

électrophorétiques des particules colloïdales contenues dans le Champagne (levures, bentonites, diatomées) et concluent à la possible adsorption de composés de masse intermédiaire (200-10000 Da) à la surface de ces particules. Ils soupçonnent ces composés d'être des peptides, mais ne peuvent l'affirmer, faute d'une étude spécifique.

Naturellement, la surface des bulles, qui est une interface simple, ne peut être comparée à un film liquide, qui est un confinement de faible épaisseur entre deux interfaces. C'est ce confinement qui, en augmentant la concentration des protéines, rend possible leur agrégation, par ailleurs favorisée par l'éthanol. Cette agrégation est évidemment improbable à la surface de la bulle dans les conditions du Champagne. Les travaux de J. Senée *et al.* mettent toutefois en évidence l'existence de surfactants de masse intermédiaire (peptides?), qui pourraient donc, dans notre cas, passer le filtre de la paroi de cellulose et venir contaminer la poche de gaz durant la formation de la bulle. Ces petits composés semblent donc être de bons candidats pour la rigidification de la bulle dès sa naissance.

La présente étude confirme les résultats obtenus à plus grande échelle. Elle prédit une fluidification des bulles lorsque leur rayon atteint environ $80\mu m$. Les équations (7.2) permettent de trouver une relation simple entre le rayon et le nombre de Reynolds. Il apparaît que la fluidification rencontrée ici est plus précoce ($Re \approx 0.5$) que ce qui était précédemment trouvé ($Re \approx 5$ [3]). L'existence d'un état rigide en tout début de parcours, inexplicable par la seule action des protéines, semble indiquer la présence de surfactants de masse intermédiaire, en accord avec les travaux menés sur les films liquides dans les mousses de Champagne.

7.8 Etude de sites suivis (paroi inclinée).

Les fibres sont en général mal accrochées à la paroi de la flûte et elles tombent lentement le long de cette paroi. Cette chute est suffisamment lente pour filmer un instant de la vie du site sans problème, ce qui a été fait pour tous les sites étudiés ci-dessus, mais elle interdit de suivre un site pendant toute sa vie avec les mêmes conditions. Cette chute s'arrête quand la fibre atteint la courbure de la flûte et que les forces de frottement deviennent assez importantes pour la bloquer. Les sites immobiles se trouvent donc sur la courbure du verre, où la paroi s'incline. Cette immobilité permet de les suivre depuis le versement jusqu'à leur extinction.

La présence de la paroi et des autres bulles perturbent la vitesse des jeunes bulles et modifient leur état hydrodynamique apparent. La paroi de verre les ralentit, produisant une rigidification artificielle excessive, tandis que les bulles encadrantes les accélèrent, entraînant une fluidification apparente mais fictive. Les sites situés sur la pente de la paroi de verre, lorsqu'ils émettent à basse fréquence, produisent des bulles à la fois isolées et rapidement éloignées de la paroi, ce qui fournit des données pour lesquelles l'incertitude des corrections intervient beaucoup moins.

Les sites sur paroi inclinée offrent donc le double avantage de pouvoir être suivis tout au long de leur vie, et de fournir, à basse fréquence, des données directement sur des bulles isolées et loin du verre. En contrepartie, ils sont situés loin du bord de flûte, ce qui les rend difficiles à filmer nettement. Par ailleurs, étant situés sur la partie courbe du fond de la flûte et observés à travers elle, ces sites subissent sans doute des aberrations optiques avant d'arriver à l'objectif de la caméra. Il ne sera pas tenu compte de ces perturbations.

La figure 7.26 donne les courbes obtenues dans le cas d'un site suivi jusqu'à son extinction. Les données sont plus uniformes que celles de la figure 7.11 car, les courbes provenant d'un site unique, elles sont soumises à des conditions toutes identiques (seule la concentration du CO_2 change), ce qui n'était pas le cas des courbes de la figure 7.11 qui proviennent de fibres différentes. D'autre part, les vitesses, en l'absence de toute correction, sont plus élevées que pour les sites situés sur paroi verticale (figure 7.11). Ceci est dû au fait que les bulles, qui montent verticalement, s'éloignent plus significativement de la paroi inclinée, dont l'effet ralentisseur se fait d'autant moins sentir. Les courbes restent cependant situées légèrement sous la limite rigide, indiquant la nécessité de corrections.

La correction due aux autres bulles sera, comme précédemment, la formule (7.8), mais la correction due à la paroi de verre mérite une discussion plus précise.

7.8.1 Correction due à la paroi inclinée.

Etant donné le grossissement utilisé, la courbure de la paroi a été négligée. Il est, en revanche, impossible d'ignorer son inclinaison. Il faut évaluer cette pente, puis estimer la correction à apporter en fonction de l'angle d'inclinaison.

Pour déterminer la pente de la paroi en fonction de la hauteur, un moulage de l'intérieur de la flûte est effectué. Une photo en contre-jour de ce moulage est ensuite prise, en plaçant derrière une lampe très puissante. Cette photo est numérisée puis traitée par une procédure informatique permettant de déterminer son contour. La procédure est une modification des procédures de traitement d'images mises au point pour les bulles. Elle remplace les niveaux de gris par du noir et blanc pur (0 ou 1) en fixant un seuil d'intensité, puis un renifleur (une adaptation de celui utilisé pour les bulles) est envoyé pour suivre le contour de l'objet noir. La figure 7.27 donne un exemple de traitement.

Une fois le contour obtenu, on récupère la position de ses points, auxquels on fait correspondre un polynôme pour en obtenir une fonction analytique, facilement manipulable. Pour éviter les problèmes liés aux fonctions multivaluées, la courbe obtenue est séparée en deux parties (valeurs positives et négatives), traitées séparément. Ainsi, chaque photo conduit à deux profils. Etant donné la forme du contour, qui évoque une racine, des puissances inférieures à 1 ($1/2$, $1/3$... $1/8$) ont été utilisées. La dérivée du polynôme

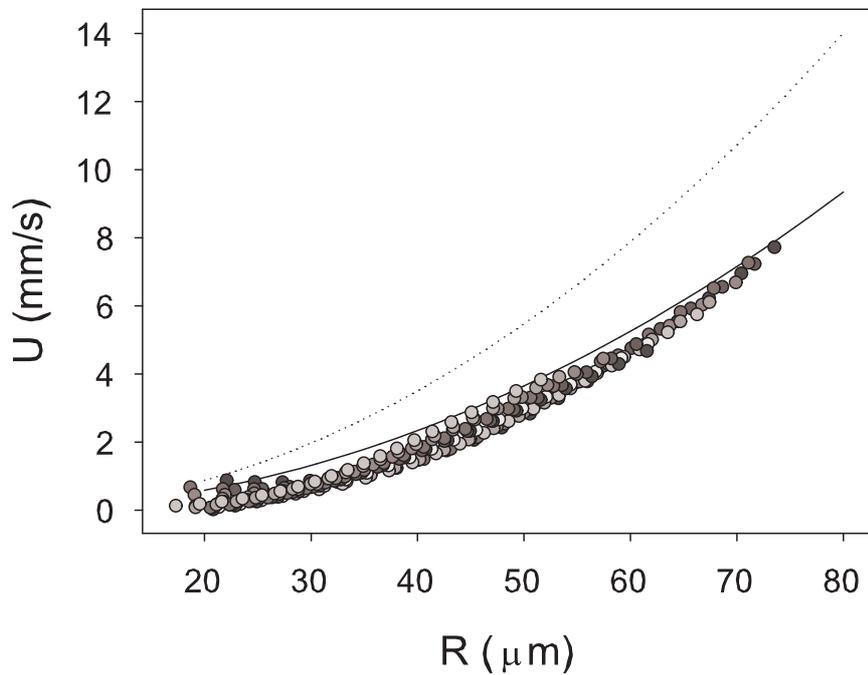


FIG. 7.26 – Vitesse en fonction du rayon, sans correction, sur paroi inclinée. Les vitesses sont plus élevées que pour les sites sur paroi verticale car les bulles s'éloignent de la paroi qui est la source de ralentissement. Les données sont également plus uniformes que sur la figure 7.11 car elles concernent un site unique. L'incertitude sur les rayons est de $4 \mu\text{m}$ et celle sur les vitesses de $10 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$.

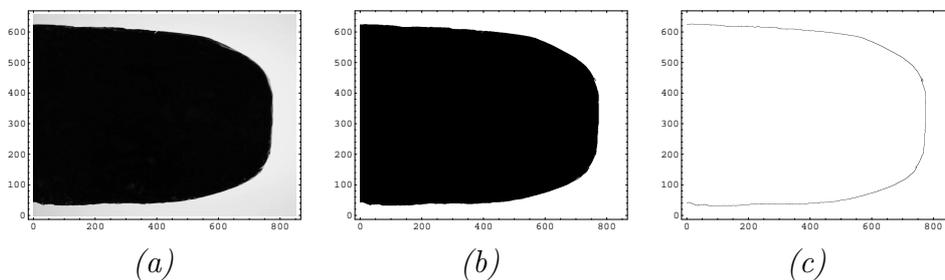


FIG. 7.27 – Exploitation du moulage de la flûte. (a) Photo originale du moulage. (b) Passage en noir et blanc par l'utilisation d'une intensité seuil. (c) Détermination du contour par utilisation d'une procédure renifleuse.

donne directement la tangente de l'angle (figure 7.28).

En observant le moulage, il apparaît que la flûte n'est pas exactement symétrique par rotation, en sorte que le profil dépend légèrement de l'angle sous lequel il est observé. Une série de photos a donc été effectuée sous des angles différents, en faisant tourner le moulage autour de son axe. Un ensemble de courbes est ainsi obtenu, courbes qui sont ensuite moyennées pour n'en faire qu'une seule (figure 7.28). Les barres d'erreur sur la courbe moyenne (à droite) représentent la déviation standard locale.

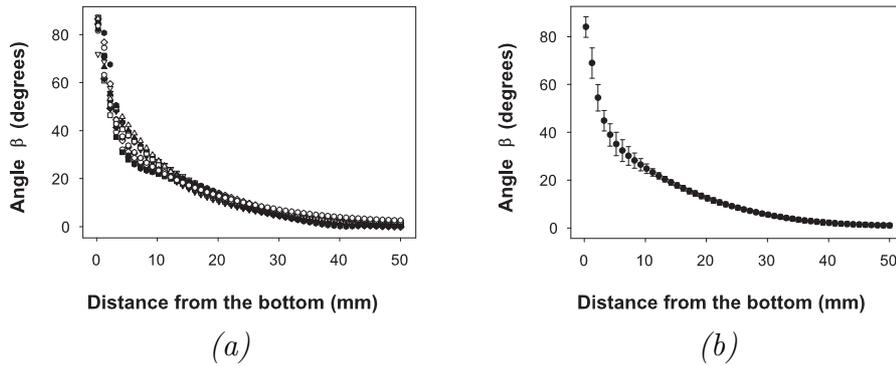


FIG. 7.28 – *Traitement des profils de flûte. (a) Ensemble des courbes angle vs. distance. (b) Moyenne de ces courbes.*

Il est donc possible d'estimer l'angle d'inclinaison de la paroi en fonction de la hauteur mesurable du site. Il n'existe pas, à notre connaissance, d'étude théorique dans la littérature portant sur le décollement de bulles depuis des plans inclinés. Tsao et Koch [81] se sont intéressés à l'approche de bulles rebondissant sur un mur incliné au dessus d'elles, et Wang [5] à la déformation de bulles près d'un mur incliné. Dans les deux cas, les nombres de Reynolds sont plus élevés que ceux mesurés ici et les bulles sont très déformables, contrairement aux bulles de Champagne.

En l'absence d'une formule théorique adéquate, une approximation par interpolation linéaire entre deux cas extrêmes a été tentée. L'idée, connaissant la correction à apporter pour un mur vertical (équation (7.5)) et pour un mur horizontal (équation (7.12)) est de faire une interpolation linéaire entre les coefficients de ces deux formules pour passer continûment de l'une à l'autre quand l'angle d'inclinaison β varie de 0 à $\pi/2$ (avec les notations de la figure 7.29).

Takemura [60] propose, pour l'évolution d'une bulle perpendiculairement à une paroi horizontale et pour des Reynolds compris entre 0.1 et 5, la formule suivante :

$$\frac{U_\infty}{U} = \frac{1}{1 - \frac{9}{8} \frac{1}{d^*} + \frac{1}{2} \left(\frac{1}{d^*}\right)^3 - \frac{135}{256} \left(\frac{1}{d^*}\right)^4 + \frac{39}{256} \left(\frac{1}{d^*}\right)^5} \quad (7.12)$$

En notant K_\perp le coefficient perpendiculaire, K_\parallel le coefficient parallèle et $K(\beta)$ le

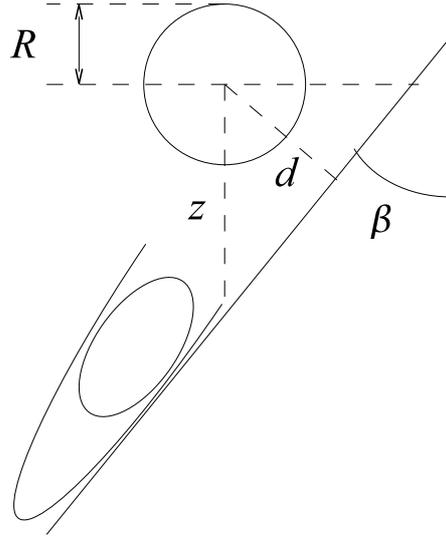


FIG. 7.29 – Notations pour une bulle près d'une paroi inclinée.

coefficient incliné, il vient :

$$K(\beta) = K_{\parallel} + \frac{2(K_{\perp} - K_{\parallel})}{\pi} \beta \quad (7.13)$$

En appliquant cette formule à chacun des coefficients des équations (7.5) et (7.12), une formule donnant une approximation de la correction à apporter dans le cas d'une paroi inclinée est obtenue :

$$\frac{U_{\infty}}{U} = \frac{1}{1 - \left(\frac{9}{16} + \frac{9\beta}{8\pi}\right) \frac{1}{d^*} + \left(\frac{1}{8} + \frac{3\beta}{4\pi}\right) \left(\frac{1}{d^*}\right)^3 - \left(\frac{45}{256} + \frac{45\beta}{64\pi}\right) \left(\frac{1}{d^*}\right)^4 - \left(\frac{1}{16} + \frac{55\beta}{128\pi}\right) \left(\frac{1}{d^*}\right)^5} \quad (7.14)$$

Cette formule n'a pas été vérifiée expérimentalement et n'a donc pas de valeur théorique, mais elle offre une alternative simple et rapide aux calculs réels, qui sont extrêmement complexes. D'autre part, les photos présentées sur les figures révèlent que les bulles ne s'éloignent pas rectilignement de la paroi inclinée, mais suivent une trajectoire incurvée. Cette trajectoire exacte restant inconnue théoriquement, la valeur de la correction calculée en supposant une trajectoire rectiligne ne peut apporter plus qu'un ordre de grandeur. Cependant, il a été vu que les effets de la paroi s'estompent rapidement avec la distance, en sorte que cet ordre de grandeur devient rapidement faible.

Les corrections (équations (7.8) et (7.14)) sont en principe suffisantes, mais l'observation des données brut (figures 7.11 et 7.26) révèle une anomalie qu'il va falloir expliquer avant de les appliquer.

7.8.2 Un comportement inattendu.

Les sites situés sur la paroi verticale (c'est-à-dire les sites non suivis) sont plus rapides lorsqu'ils sont plus actifs (figure 7.30a). Ce n'est pas surprenant puisque la présence d'autres bulles accélère chaque bulle. En revanche, les sites situés sur la partie inclinée de la paroi (les sites suivis) présentent, contre toute attente, le comportement inverse : le site est toujours plus lent (à rayon de bulles égal) quand il est actif (figure 7.30b).

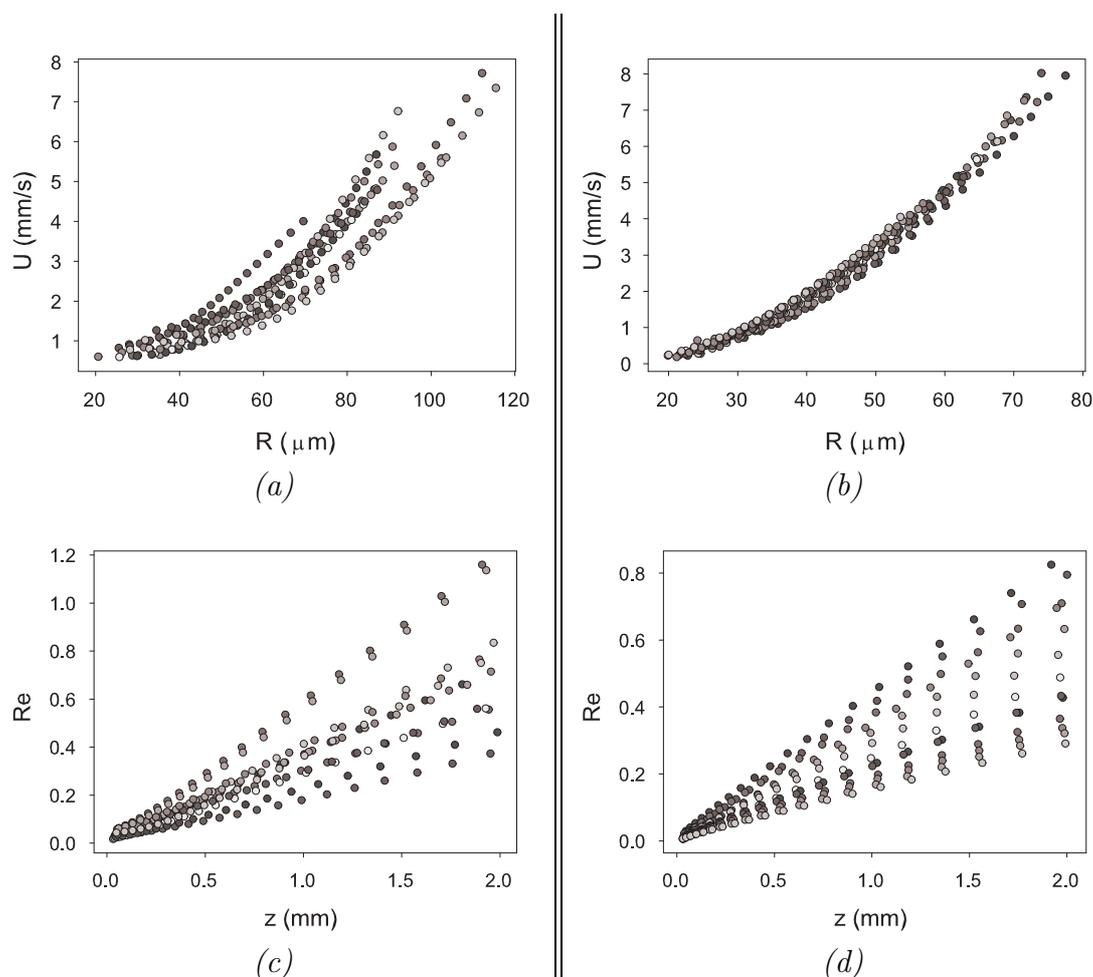
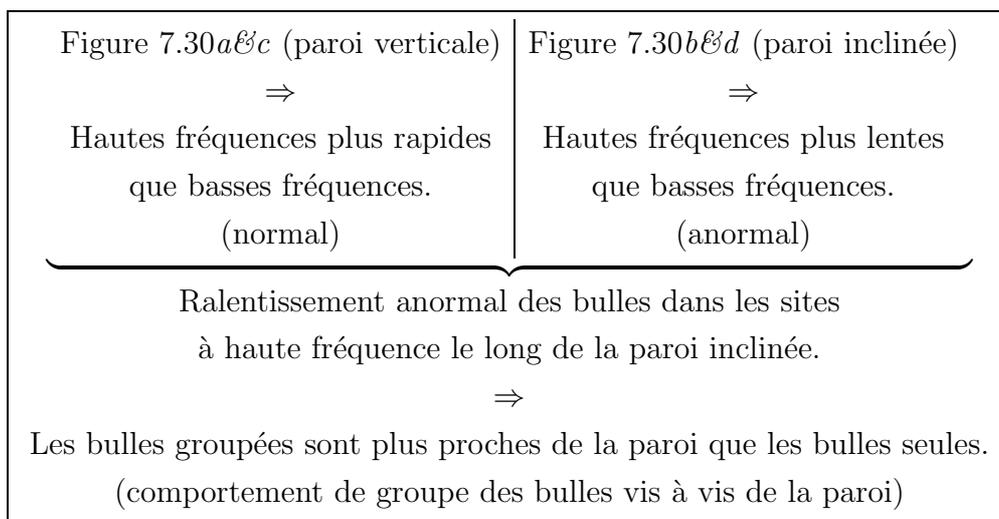


FIG. 7.30 – Comparaison des données brut d'un ensemble de sites différents sur paroi verticale (à gauche) et d'un site unique suivi sur paroi inclinée (à droite). Sur les quatre figures, plus les points sont sombres, plus les fréquences des sites sont élevées. On constate que sur paroi verticale (a), les bulles des sites à haute fréquence sont moins ralenties que sur paroi inclinée (b). La différence de comportement est plus nette lorsqu'on trace les nombres de Reynolds (comparer le sens des dégradés de gris entre (c) et (d)).

La figure 7.30 montre qu'en l'absence de toute correction (données brut), les bulles des sites actifs sont plus ralenties que prévu (relativement à celles des sites peu actifs) lorsqu'elles sont situées à proximité d'une paroi inclinée. Ce comportement est systématique et a été observé sur tous les sites inclinés étudiés, quoiqu'un seul soit présenté ici.

Cette différence de comportements ne peut être due, toutes les autres conditions

étant égales par ailleurs, qu'à l'inclinaison de la paroi. Les bulles des sites actifs étant plus ralenties que celles des sites calmes, elles sont donc nécessairement plus proches de la paroi. Autrement dit, un train de bulle est plus attiré par la paroi inclinée qu'une bulle unique. On montre donc ici l'existence d'un comportement de groupe des bulles vis à vis de la paroi, qui ne se réduit pas à une somme de comportements individuels. Ce comportement de groupe ne se manifeste pas pour les sites situés sur paroi verticale car, dans ce cas, les bulles ne peuvent pas s'éloigner sensiblement de la paroi, même à basse fréquence. Le schéma suivant résume le raisonnement qui précède :



Ceci a pu être vérifié en observant de profil quelques sites sur plan incliné sur une longue échelle de temps. On constate toujours que les bulles en groupes (lorsque la fréquence est élevée) sont plus affectées par la paroi qu'une bulle seule (quand la fréquence est basse). La figure 7.31 en donne un exemple en montrant un site incliné vu de profil en début et en fin de vie ainsi qu'un graphe montrant l'évolution de l'inclinaison du train de bulles en fonction du temps pour ce site.

Dans ces conditions, l'application de l'angle d'inclinaison de la paroi déterminé plus haut n'est plus suffisante. Il faut également tenir compte de l'inclinaison de la trajectoire des bulles, qui dépend de la fréquence du site. La trajectoire exacte des bulles est inconnue. Elle n'est certainement pas rectiligne mais sera considérée comme telle en première approximation, ce qui permet d'avoir un angle de correction fixe pour une fréquence donnée. En supposant qu'une bulle unique monte en ligne droite et qu'un train de bulle très dense suit la paroi, il devient possible de faire varier l'angle de correction entre l'angle d'inclinaison de la paroi, qui joue le rôle de valeur maximum, et une valeur minimum petite. L'ordre de grandeur de l'inclinaison de la paroi (déterminé grâce à la figure 7.28) est de $\beta_{max} \approx 20^\circ$ et la valeur minimum a été fixée à $\beta_{min} \approx 3^\circ$ (figure 7.32).

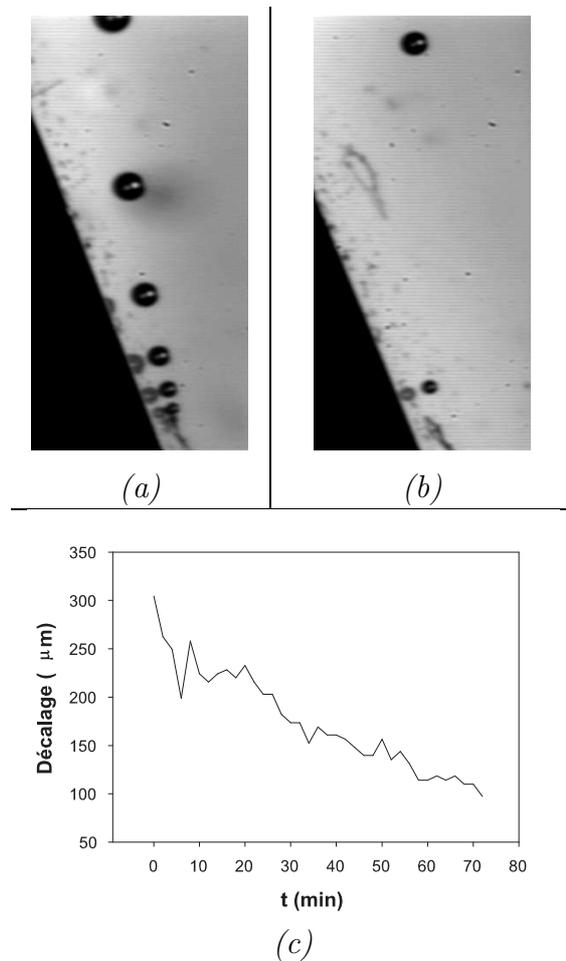


FIG. 7.31 – Suivi d'un site incliné de profil. Le site est plus actif en (a) qu'en (b) et les bulles y sont plus déviées vers la paroi. (c) Variation du décalage horizontal subi par les bulles durant la traversée de l'écran en fonction du temps. Ce décalage est calculé comme la différence d'abscisses entre le point de départ de la bulle –i.e. la position de la fibre– et sa position lorsqu'elle quitte l'écran.

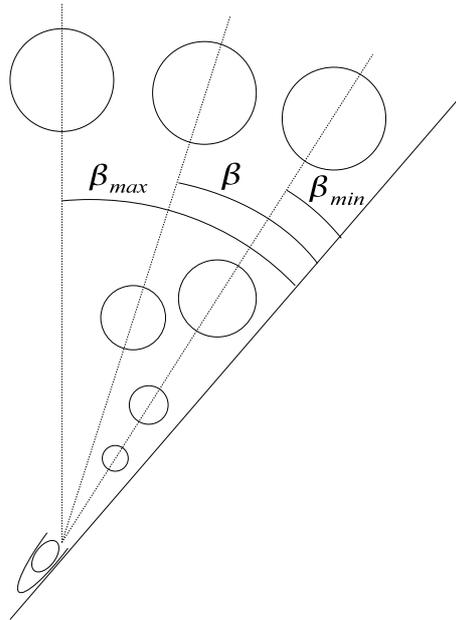


FIG. 7.32 – Variation de l'angle de correction avec la fréquence.

7.8.3 Résultats.

En faisant varier linéairement l'angle de correction avec la période, et en appliquant uniquement la correction de la paroi de verre, on obtient les courbes de la figure 7.33 pour un site unique sur paroi inclinée.

Enfin, en appliquant la correction due aux autres bulles aux courbes de la figure 7.33, on obtient celles de la figure 7.34. Les figures 7.33 et 7.34 fournissent des résultats très semblables à ceux obtenus pour des sites sur paroi verticale (figures 7.17 et 7.21 respectivement). Les courbes sont plus uniformes car les données proviennent d'un même site.

On constate, en regardant les courbes correspondant à des émissions de basse fréquences (cercles clairs sur les figures 7.26, 7.33, et 7.34), que celles ci sont très peu modifiées par les corrections, ce qui n'est pas surprenant. En revanche, elles confirment le comportement rigide des bulles au tout début de leur vie. Cette rigidité est paradoxale, mais elle semble persister expérimentalement. Un seul site, le plus représentatif, a été illustré dans cette section, mais les résultats sont très répétables.

7.9 Résumé.

Après une courte introduction rappelant la méthode utilisée, une procédure d'analyse automatisée est développée (section 7.2), afin d'obtenir la vitesse et le rayon d'une bulle en fonction du temps. L'application aux données expérimentales (section 7.4) révélant la nécessité de corrections, celles ci sont examinées puis appliquées à des sites différents sur

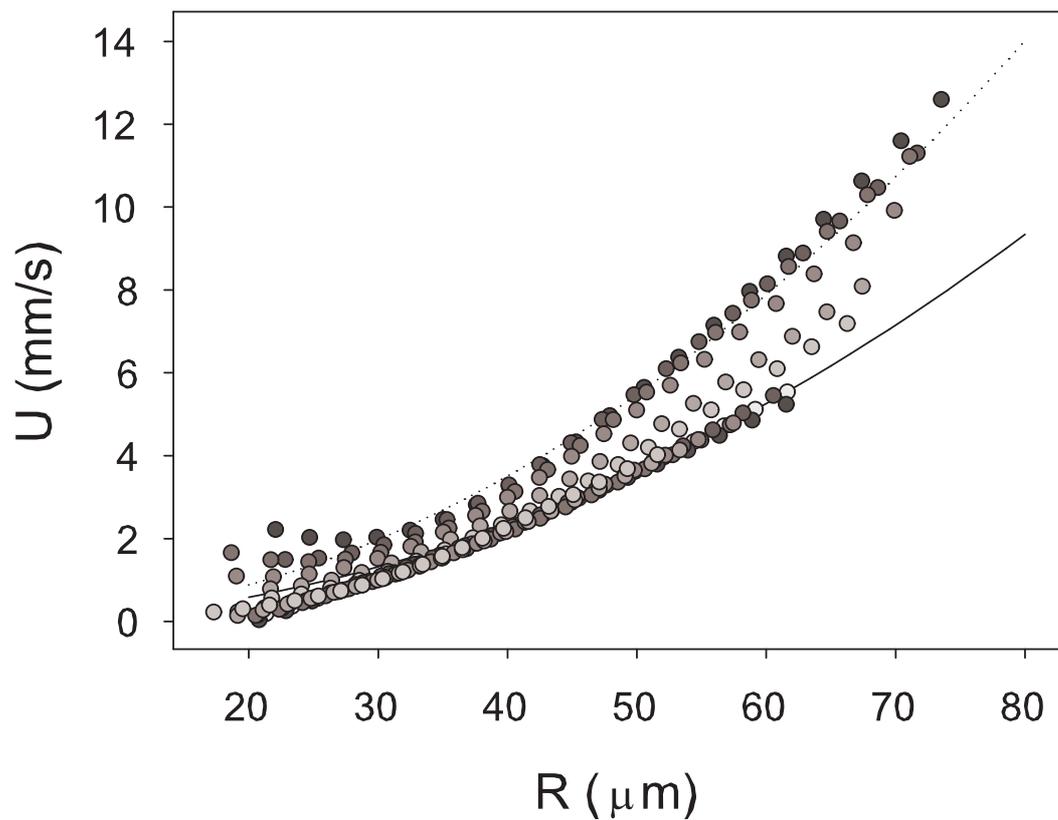


FIG. 7.33 – *Un site incliné traité avec un angle de correction variant linéairement avec la période. Seule la correction due à la paroi inclinée est appliquée. Les hautes fréquences (points sombres) ont tendance à sembler très fluides en début de parcours, tandis que les basses fréquences (points clairs) y restent rigides.*

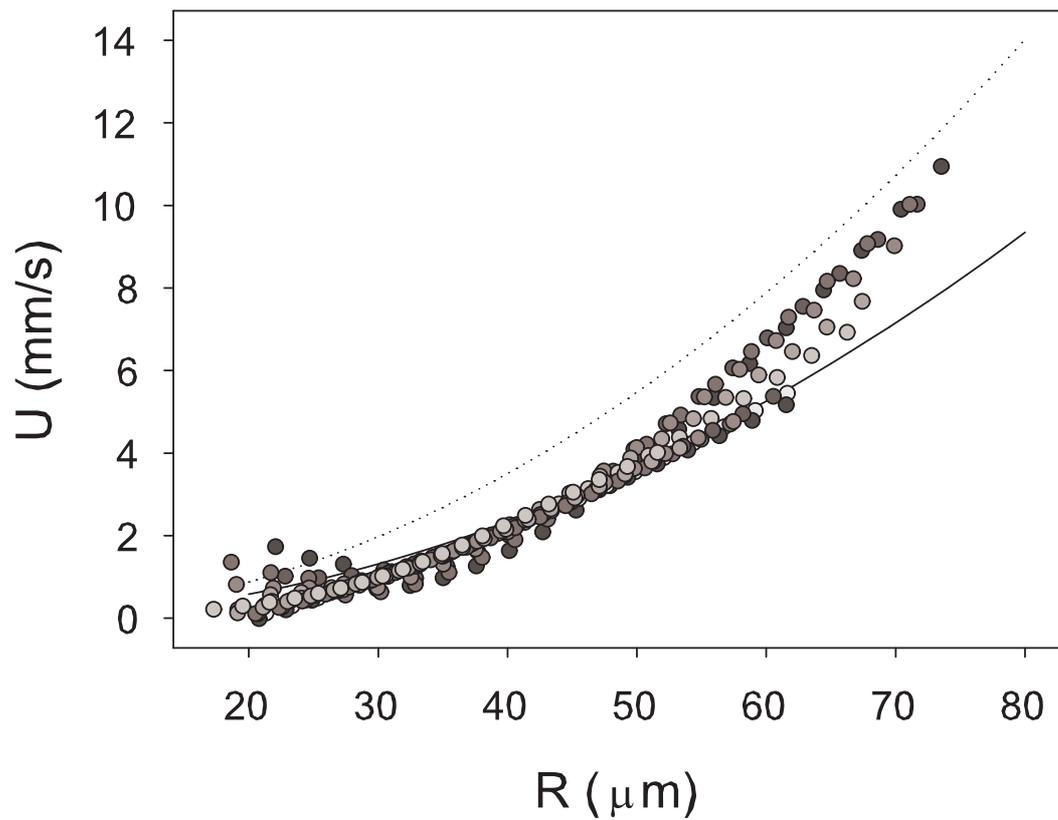


FIG. 7.34 – Le même site que celui de la figure 7.33, mais ici la correction due aux autres bulles est également appliquée. Les sites à hautes fréquences (points sombres) se conforment alors au comportement de ceux à faibles fréquences (points clairs) : début de parcours rigide puis fluidification.

paroi verticale (section 7.5). Une modélisation numérique des comportements de bulles fluides et rigides est présentée (section 7.6), puis les résultats sont discutés (section 7.7). L'étude est finalement répétée sur des sites situés sur paroi inclinée (section 7.8) et aboutit aux mêmes conclusions.

7.10 Conclusion.

Il semble, au vu des figures 7.21 et 7.34, que les bulles subissent un changement de régime pour des nombres de Reynolds valant environ 0.3 à 0.5. L'étude de Liger-Belair et Jeandet [3] montrait un changement d'état de surface se produisant approximativement pour $Re \approx 5$. La prise en compte des corrections dues à la paroi de la flûte, à la fibre et aux autres bulles permet donc d'affiner ce résultat.

Les bulles affichent un comportement rigide en tout début de parcours, inexplicable par la seule action des protéines, et qui semble donc confirmer la présence de surfactants de taille intermédiaire, précédemment identifiés dans d'autres études [79, 80]. La mesure des vitesses des jeunes bulles dans des solutions modèles sans peptides permettraient de confirmer ou d'infirmer cette hypothèse, mais n'a pas été faite dans ce travail.

Par ailleurs, l'existence d'un comportement de groupe des bulles vis à vis de la paroi de verre a été déduite du ralentissement excessif des hautes fréquences, constaté sur des sites observés à des fréquences différentes. Ce comportement de groupe a été vérifié et confirmé expérimentalement.

Chapitre 8

Perspectives et conclusion.

Sommaire

8.1	Résumé.	175
8.1.1	Formation.	175
8.1.2	Libération.	176
8.1.3	Ascension.	177

8.1 Résumé.

Ce travail de trois ans s'est focalisé sur la genèse et les premiers instants des bulles de Champagne en conditions de consommation, c'est-à-dire dans une flûte. On a tenté d'en préciser les différents aspects. Ce dernier chapitre résume les méthodes utilisées et les résultats obtenus.

8.1.1 Formation.

Il a été possible, en étudiant les films enregistrés au moyen d'une caméra rapide à objectif de microscope, de préciser le rôle des fibres de cellulose et de jeter les bases d'un modèle permettant, toutes autres choses mesurées par ailleurs, de prédire la fréquence de bullage d'un site, ou l'épaisseur de la couche de renouvellement du gaz dans le liquide entourant la fibre. Dans ce cadre, la perméabilité de la fibre de cellulose au gaz a été démontrée et confirmée par une autre méthode. L'importance de la convection dans le renouvellement du gaz dissous autour de la fibre, et donc dans la périodicité du phénomène, a également été prouvée.

Une méthode originale, fondée sur l'optique, et non invasive pour les fibres a été mise au point pour en déterminer la forme dans l'espace et la géométrie interne. Dans ce but, un programme de ray-tracing adapté à la géométrie du système a été mis au point et écrit.

On aurait souhaité adapter le petit modèle de grossissement de la poche dans la fibre cylindrique au cas des fibres réelles reconstituées grâce à l'optique (c'était la motivation première de la reconstitution), mais cela pose le problème de la détermination de la forme que prend la poche de gaz dans un tube aplati et irrégulier, problème qu'on n'a pas résolu. Les travaux esquissés sont présentés dans une annexe assez technique, que l'on aurait souhaité intégrer dans un chapitre dédié au grossissement de la poche en géométrie irrégulière, mais que l'on n'a pas eu le temps de mener suffisamment à terme et qui a donc été placée en annexe de ce travail. Un algorithme récursif dont l'attracteur est une surface de courbure constante a été mis au point, en mixant deux méthodes existantes (Steepest Descent et Multiplicateurs de Lagrange), qui fonctionne bien dans le cas d'une courbe, mais que l'on a pas eu le temps de porter à deux dimensions. Une autre méthode moins élégante, basée sur la simulation d'une membrane élastique, a été finalisée, mais les temps de calculs nécessaires, très longs, en ont interdit l'application au cas d'une poche dynamique.

8.1.2 Libération.

La libération est sans doute le phénomène le plus complexe de la naissance de la bulle. Sa description, limitée par la résolution du matériel utilisé, révèle toutefois un certain nombre d'éléments intéressants, décrits aussi précisément que possible.

Le vidage de la bulle peut se faire suivant deux modes dépendants de la mobilité de la poche dans la fibre, limitée par les frottements visqueux dans le film mouillant. L'épaisseur de ce film est déterminée par l'aplatissement de la fibre. Les rayons des bulles libérées compris entre une fois et une fois et demi les rayons des fibres, sont correctement prédits par la minimisation de l'énergie de surface du système, dans les géométries plates ou épaisses.

Pour les fibres épaisses, l'interface est mobile et le vidage s'effectue par l'arrière. L'équilibre des forces de pressions capillaires et des frottements donne un ordre de grandeur acceptable de la vitesse de l'interface et rend compte de la constance de cette vitesse.

Enfin, la rupture semble un compromis entre deux phénomènes classiques de la physique des interfaces : les instabilités de Rayleigh et les ondes capillaires. Dans le premier cas, les frottements visqueux ralentissent l'instabilité capillaire due à la géométrie cylindrique et prévoit un temps de rupture de l'ordre du dixième de milliseconde. Dans le deuxième cas, les frottements sont absents, ce qui accélère le processus et redonne ses droits à l'inertie. Le temps de rupture prévu est alors d'environ un centième de milliseconde. Les observations, insuffisamment précises, ne permettent pas de trancher entre ces deux mécanismes.

8.1.3 Ascension.

Cette partie de la thèse, relativement indépendante du reste, si ce n'est le fil rouge de la chronologie, repose sur une idée exploitée par G. Liger-Belair dans sa thèse, qui compare la vitesse mesurée des bulles à ses valeurs théoriques encadrantes pour en déduire l'état de surface des bulles au cours de leur ascension.

La méthode d'acquisition des données proposée ici, diffère totalement de la sienne, et a occasionné la mise au point et l'écriture d'un programme de traitement d'images adapté, et capable d'analyser un à un les clichés des films enregistrés.

Les corrections nécessaires dues à la proximité de l'environnement dans les premiers instants de l'ascension ont été évaluées. Il a ainsi été possible de préciser les conclusions de G. Liger-Belair quant à l'instant de fluidification des bulles en montrant qu'elles se fluidifient plus tôt que prévu. Toutefois, l'instant précis de fluidification n'est pas encore déterminé avec certitude et un calcul plus précis des corrections fines pourrait faire l'objet d'un travail théorique intéressant.

L'apparente rigidité des jeunes bulles semble indiquer la présence de tensioactifs de masses intermédiaires (capables de traverser la paroi poreuse de la fibre), en accord avec les travaux précédemment menés sur la mousse. La même étude expérimentale appliquée à des solutions modèles dépourvues de telles particules, permettrait sans doute de confirmer ou d'infirmer le rôle de ces éventuelles particules dans le processus en conditions naturelles.

Enfin, le suivi de sites, entrepris au départ comme une simple vérification, a donné des résultats inattendus qui ont finalement mené à la mise en évidence d'un comportement de groupe des bulles vis à vis de la paroi de verre, comportement confirmé par l'expérience et qui, là encore, pourrait faire un beau sujet théorique.

Une partie de ce travail a donné lieu aux résultats suivants :

Publications :

- G. Liger-Belair, M. Vignes-Adler, C. Voisin, B. Robillard, and P. Jeandet. "Kinetics of gas discharging in a glass of champagne : the role of nucleation sites". *Langmuir*, 2002, **18**, 1294-1301.
- G. Liger-Belair, D. Topgaard, C. Voisin, and P. Jeandet. "Is the wall of hydrated cellulose fibers whether or not permeable with CO_2 dissolved molecules ? Application to bubble nucleation in Champagne wines". *Langmuir*, 2004, **20**, 4132-4138.
- (ouvrage collectif) G. Liger-Belair, C. Voisin, and P. Jeandet. "Focus on bubble dynamics in Champagne wines". Proceedings of the *VIIth International Symposium of Enology*. A. Lonvaud-Funel, G. De Revel et P. Darriet (Eds), Lavoisier 2003, 575-578.
- C. Voisin, P. Jeandet, G. Liger-Belair. "On the 3D-reconstruction of Taylor-like bubbles trapped inside hollow cellulose fibers acting as bubble nucleation sites in supersaturated liquids". *Coll. Surf. A*, 2005, **263**, 303-314.

Communications orales :

- G. Liger-Belair, C. Voisin, and P. Jeandet. "Focus on bubble dynamics in Champagne wines". Proceedings of the *VIIth International Symposium of Enology*. Bordeaux 2003.
- C. Voisin, D. Topgaard, P. Jeandet, and G. Liger-Belair. "On the Diffusion of CO_2 Molecules Through the Wall of Cellulose Fibers Acting as Bubble Nucleation Sites in Carbonated Beverages, and on The Reconstructed 3D Geometry of Cellulose Fibers". *Eufoam 2004, Vth European Conference on Foams, Emulsions, and Applications*. Université de Marne-la-Vallée 2004. Dr Michèle Adler.

Communication affichée :

- (lauréat) C. Voisin, G. Liger-Belair, B. Robillard, and P. Jeandet. "Birth of a Bubble in Champagne Wine". *SPO 2002, Problems of Optics and high Technology Material Science*. Université Taras Shevchenko, Kiev, Ukraine 2002. Dr L.V. Poperenko.

Annexe A

Surface minimale contrainte.

Sommaire

A.1 Introduction.	179
A.2 Principes généraux.	180
A.2.1 Surfaces minimales.	180
A.2.2 Courbures.	181
A.2.3 Contraintes physiques.	183
A.2.4 Point de vue de la Physique.	185
A.2.5 Contraintes géométriques.	185
A.3 Approximation ellipsoïdale.	186
A.4 Etude numérique par la méthode modifiée de descente du gradient.	189
A.4.1 Rappel de la méthode.	189
A.4.2 Adaptation de la méthode dans notre cas.	190
A.4.3 Application à la courbe.	192
A.5 Etude numérique par simulation directe.	194
A.5.1 Principe.	194
A.5.2 Détermination des paramètres géométriques importants.	195

A.1 Introduction.

Cette annexe est consacrée à la détermination de la forme de la poche de gaz enfermée dans la fibre. Il s'agit de trouver la forme que prend l'interface liquide-gaz libre mais bordée par les bords de la fibre, qu'on a supposée de section elliptique. Cette forme est essentielle dans la dynamique du problème car elle détermine la courbure et donc la surpression du gaz, ainsi que la surface et le volume de la poche, qui sont des paramètres importants des équations d'évolution de la poche (chapitres 4 et 6). Mathématiquement,

il faut trouver une surface minimale bordée par une ellipse et tangente en sa base à une paroi d'inclinaison variable.

Le problème n'est pas trivial. Quelques discussions avec un mathématicien de l'université ont apporté la conviction que la solution analytique, si elle existait, resterait inapprochable dans le temps accordé à cette partie de la thèse.

Quelques voies ont été explorées pour tenter de trouver une solution, approximative ou numérique à ce problème. Fructueuses mais difficilement praticables (ce pourquoi elles ne figurent pas dans un chapitre), les considérations qui suivent font partie du travail de recherche et apportent tout de même quelques lumières sur le problème, ce qui justifie leur intégration à ce document. Leur caractère parfois technique leur interdisant d'apparaître dans le chapitre des perspectives, il a été choisi de les présenter dans une annexe.

A.2 Principes généraux.

Avec les notations suivantes pour toute fonction f :

$$\begin{aligned} f_x &= \frac{\partial f(x, y)}{\partial x} \\ f_y &= \frac{\partial f(x, y)}{\partial y} \\ f_{xx} &= \frac{\partial^2 f(x, y)}{\partial x^2} \\ f_{yy} &= \frac{\partial^2 f(x, y)}{\partial y^2} \\ f_{xy} &= \frac{\partial^2 f(x, y)}{\partial x \partial y} \end{aligned} \tag{A.1}$$

A.2.1 Surfaces minimales.

Equations d'Euler-Lagrange.

Soit une fonction F dépendant de deux paramètres x et y , d'une fonction de ces paramètres $f(x, y)$ et de ses dérivées premières : $F(x, y, f, f_x, f_y)$. La fonction f est introduite car c'est par son intermédiaire qu'on va perturber F . Il faut minimiser l'intégrale double :

$$A = \int \int F(x, y, f, f_x, f_y) dx dy \tag{A.2}$$

Pour ce faire, la fonction f est légèrement perturbée au moyen d'une fonction $\delta(x, y) \ll 1$ qui s'annule sur les bords de la surface (c'est-à-dire aux limites d'intégration de

l'équation (A.2)). Il est possible de montrer [82, 83] que la variation de la surface δA s'écrit :

$$\delta A = \int \int \left(\frac{\partial F}{\partial f} - \frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial F}{\partial f_x} - \frac{\partial}{\partial y} \frac{\partial F}{\partial f_y} \right) \delta(x, y) dx dy \quad (\text{A.3})$$

Minimiser l'intégrale A revient à annuler sa variation δA . La fonction $\delta(x, y)$ étant arbitraire, l'équation (A.3) ne s'annule que si :

$$\frac{\partial F}{\partial f} - \frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial F}{\partial f_x} - \frac{\partial}{\partial y} \frac{\partial F}{\partial f_y} = 0 \quad (\text{A.4})$$

condition appelée l'équation d'Euler-Lagrange. Elle donne la condition que doit satisfaire localement une fonction pour que sa somme soit extrémale.

Application à la surface.

L'aire d'une fonction $f(x, y)$ se calcule par la formule suivante :

$$A = \int \int \sqrt{1 + f_x^2} \sqrt{1 + f_y^2} dx dy \approx \int \int \sqrt{1 + f_x^2 + f_y^2} dx dy \quad (\text{A.5})$$

où le terme de second ordre a été éliminé dans le membre de droite. Par analogie avec l'équation (A.2), on définit $F(x, y, f, f_x, f_y) = \sqrt{1 + f_x^2 + f_y^2}$. Dans ce cas précis, le membre de gauche de l'équation (A.4) se réécrit ($\partial F / \partial f$ est automatiquement nul dans ce cas puisque F ne dépend que des dérivées de f) :

$$\frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial F}{\partial f_x} + \frac{\partial}{\partial y} \frac{\partial F}{\partial f_y} = \frac{(1 + f_y^2) f_{xx} - 2f_x f_y f_{xy} + (1 + f_x^2) f_{yy}}{(1 + f_x^2 + f_y^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{A.6})$$

et la condition de surface minimum devient :

$$(1 + f_y^2) f_{xx} - 2f_x f_y f_{xy} + (1 + f_x^2) f_{yy} = 0 \quad (\text{A.7})$$

qu'on appelle l'équation de Laplace.

A.2.2 Courbures.

On définit deux sortes de courbures, la courbure moyenne et la courbure gaussienne.

La courbure gaussienne est une propriété intrinsèque, c'est-à-dire qu'elle peut être détectée par les habitants de la surface étudiée. Elle quantifie les changements d'échelles relatifs des coordonnées employées sur la surface. Elle ne sera pas utilisée ici et ne sera donc plus évoquée.

La courbure moyenne est une propriété extrinsèque de la surface, c'est-à-dire qu'elle ne peut pas être détectée par les habitants de la surface. Elle représente la façon dont

la surface est plongée dans l'espace qui la contient et elle nécessite donc une référence à cet espace.

A titre intuitif, la surface d'un ballon est courbée intrinsèquement, mais celle d'un cylindre n'est courbée qu'extrinsèquement. Les habitants d'une sphère peuvent noter que la surface d'un cercle est inférieure à πr^2 , tandis que ceux du cylindre ne verront pas de différence. Le ballon est une surface intrinsèquement courbe, tandis que le cylindre est une surface intrinsèquement plane mais courbée dans l'espace.

La courbure moyenne est définie, en chaque point (x, y) de la surface, par la formule suivante :

$$k = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (\text{A.8})$$

où R_1 et R_2 sont les rayons de courbure principaux de la surface au point étudié, c'est-à-dire les rayons de courbure maximum et minimum.

On peut montrer [84, 85], que

$$\frac{(1 + f_y^2) f_{xx} - 2f_x f_y f_{xy} + (1 + f_x^2) f_{yy}}{(1 + f_x^2 + f_y^2)^{\frac{3}{2}}} = - \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = -2k \quad (\text{A.9})$$

ce qui fait le lien entre le point de vue analytique et le point de vue géométrique.

L'équation (A.7) stipule donc que la courbure moyenne d'une surface minimale est nulle, ce qui, compte tenu de la rigoureuse équivalence de ce point de vue avec le calcul intégral, est parfois utilisé pour *définir* les surface minimales comme des surfaces de courbure moyenne nulle [86].

Point de vue plus intuitif. L'équation (A.9) n'est pas très intuitive mais il est possible de s'en faire une idée plus claire en raisonnant sur une courbe plutôt que sur une surface. Dans ce cas, l'analogie de l'équation (A.9) s'obtient géométriquement (figure A.1). L'arc de cercle couvert par l'angle $d\theta$ peut, en première approximation, s'écrire comme un segment de longueur : $Rd\theta \approx \sqrt{dx^2 + df^2} = dx\sqrt{1 + f_x^2}$. Par ailleurs, en appelant θ l'angle que fait la tangente de la courbe avec l'horizontale, il vient : $f_x = \tan \theta$. En dérivant cette équation et en l'injectant dans la précédente, on obtient, pour chaque point de la courbe :

$$\frac{1}{R} = - \frac{f_{xx}}{(1 + f_x^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{A.10})$$

qui est l'analogie monodimensionnel de l'équation (A.9). La courbure κ apparaît essentiellement comme une dérivée seconde pondérée par la pente, c'est-à-dire par l'orientation de la fonction (à titre d'exemple, le cercle possède une dérivée seconde non constante, mais une courbure constante).

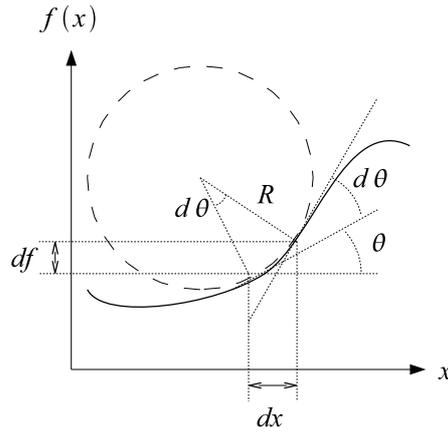


FIG. A.1 – Notations pour courbure 1D.

A.2.3 Contraintes physiques.

L'interface liquide-gaz n'est pas seulement soumise à la tension de surface qui cherche à minimiser sa surface, mais aussi à la pression du gaz qui cherche à maximiser son volume. Il faut donc ajouter aux équations une contrainte de volume maximal.

Le volume sous la fonction $f(x, y)$ (qui représente l'interface), s'écrit :

$$V = \int \int f(x, y) dx dy \quad (\text{A.11})$$

On peut donc, pour minimiser une surface contrainte, résoudre l'équation (A.7) avec la contrainte $V = \text{cste}$. Mais cette méthode n'est pas pratique et il en existe une autre qui, moins évidente de prime abord, se révèle très riche et très intéressante pour l'intuition : l'utilisation des multiplicateurs de Lagrange.

Multiplicateurs de Lagrange.

Pour minimiser une fonction $F(x, y)$ avec une contrainte $C(x, y) = 0$ (qui rend x et y dépendants l'un de l'autre), l'approche classique est d'annuler la différentielle de F en y incorporant explicitement la dépendance de y par rapport à x . Cette dépendance s'écrit $dy = -(C_x/C_y) dx$ (car $dC = 0$) et la différentielle devient :

$$dF = F_x dx + F_y dy = \left(F_x - \frac{C_x}{C_y} F_y \right) dx \quad (\text{A.12})$$

Son annulation $dF = 0$ donne une équation différentielle, $F_x - (C_x/C_y) F_y = 0$, dont F est solution.

L'autre approche consiste à créer une nouvelle fonction $\Phi(x, y) = F(x, y) + \lambda C(x, y)$, telle que son minimum absolu (son vrai minimum, sans contrainte) se trouve au même point que le minimum de $F(x, y)$ compte tenu de la contrainte $C(x, y) = 0$. La figure

A.2 illustre graphiquement cette méthode pour une courbe et pour une surface.

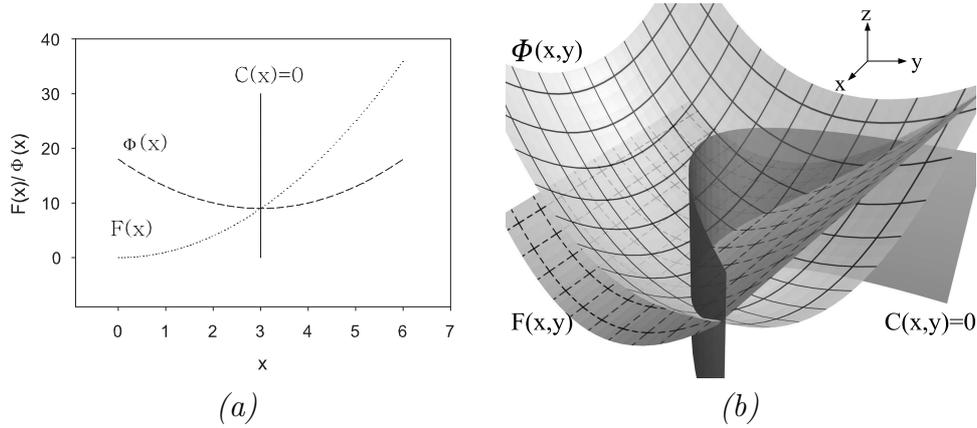


FIG. A.2 – *Interprétation géométrique de la méthode de Lagrange. Dans les deux cas, la fonction initiale F (courbe/texture en pointillés fins) et la contrainte $C = 0$ (paroi verticale) sont remplacées par une fonction Φ (courbe/texture en grille) dont le minimum sans contrainte est solution du problème. (a) Pour une courbe. Dans ce cas, la solution est triviale puisque la contrainte (ligne verticale) donne la solution, mais le schéma est très intuitif. (b) Pour une surface. Une contrainte parabolique (paroi sombre transparente) a été choisie pour cette illustration.*

Le coefficient λ est une constante qui doit être déterminée et s'appelle le multiplicateur de Lagrange (il y en a un par contrainte). Il permet donc de remplacer une minimisation avec contrainte (inconnues (x, y) + contrainte $C(x, y) = 0$) par une minimisation sans contrainte d'une fonction inconnue déterminée en même temps que la solution (inconnues (x, y, λ) sans contrainte).

Dans notre cas, la contrainte de volume maximal peut être traitée par cette méthode. Il faut minimiser la surface (A.5) avec un volume (A.11) maximal. Il est donc possible de créer une fonction $\Phi = A + \lambda V$ et de la minimiser sans contrainte. Dans ce cas, (équations (A.2) et (A.11)), la fonction F s'écrit :

$$F(x, y, f, f_x, f_y) = \sqrt{1 + f_x(x, y)^2 + f_y(x, y)^2} + \lambda f(x, y) \quad (\text{A.13})$$

En injectant l'équation (A.13) dans l'équation d'Euler-Lagrange (A.4), l'équation différentielle que doit vérifier la surface de l'interface est obtenue :

$$\frac{(1 + f_y^2) f_{xx} - 2f_x f_y f_{xy} + (1 + f_x^2) f_{yy}}{(1 + f_x^2 + f_y^2)^{\frac{3}{2}}} = \lambda \quad (\text{A.14})$$

Cette équation est l'analogie de l'équation (A.6) mais avec un terme $\partial F / \partial f = \lambda$ non nul. On peut la réécrire plus simplement grâce à l'équation (A.9) :

$$\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = -\lambda \quad (\text{A.15})$$

Ce qui montre que, mathématiquement, notre problème est de trouver une surface de courbure moyenne constante.

A.2.4 Point de vue de la Physique.

Du point de vue physique, exposé par Landau et Lichitz [8], il faut minimiser l'énergie libre $\Phi = \int \sigma dA - \Delta p dV - SdT$ (Δp est la différence de pression de part et d'autre de l'interface) de la surface à température constante (le terme SdT disparaît). Après quelques manipulations [8, 83], l'équation suivante est obtenue pour la surface de l'interface :

$$\sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = \Delta p \quad (\text{A.16})$$

appelée équation de Laplace-Young, et qui permet, en accord avec [9], de donner un sens physique au multiplicateur de Lagrange λ . Il représente, lorsque la surface est pondérée par la tension de surface σ , la surpression à l'intérieur de la bulle (au signe près). Il y a donc équivalence entre les équations d'Euler-Lagrange et la minimisation de l'énergie libre. Les points de vue mathématique et physique du problème se complètent, chacun offrant une interprétation de l'autre.

Les méthodes de déduction des équations (A.15) et (A.16) rappellent que le problème traité est un problème statique (la surface est supposée à l'équilibre) et qu'il est nécessaire de se trouver dans une approximation quasi statique pour avoir le droit de les utiliser dans le problème dynamique qui nous préoccupe.

On a montré que la solution du problème d'une surface minimale (courbure moyenne nulle) avec contrainte physique (multiplicateur de Lagrange) est une surface de courbure moyenne constante, la courbure étant proportionnelle au multiplicateur de Lagrange, qui prend, dans ce cas, le sens physique d'une pression.

A.2.5 Contraintes géométriques.

La fibre impose sa forme à la poche de gaz qu'elle contient. Dans les chapitres 4 et 6 la présence d'un film liquide entre la poche et la paroi interne de la fibre, et donc l'absence d'un angle de contact, ont été supposées, ce qui signifie que la poche se "sépare" tangentiellement de la paroi. La fibre, par sa forme, impose donc des conditions aux limites pour la fonction f solution de l'équation (A.14) (avec $\lambda = -\Delta p/\sigma$). La poche doit être "contre" la fibre mais aussi tangente à elle. La condition de "contact" impose l'égalité des fonctions de la surface et de la fibre, et la condition de tangence impose celle de leurs dérivées. En appelant $fib(x, y)$ la fonction décrivant la fibre, ceci s'écrit, au point de raccord :

$$f = fib \quad (\text{A.17})$$

$$f_x = fib_x$$

$$f_y = fib_y$$

Et puisqu'on approxime la fibre par une pile d'ellipses, la première des équations (A.17) signifie, qu'au point de raccord, c'est-à-dire quand $f = 0$, x et y doivent être sur l'ellipse porteuse $(x^2/a^2) + (y^2/b^2) = 1$ où a et b sont les demi axes de la fibre au point de raccord. Cela fixe une forme pour f :

$$f(x, y) = \left(\frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} - 1 \right) g(x, y) \quad (\text{A.18})$$

où g est une nouvelle fonction à déterminer. Les conditions sur les dérivées dans les équations (A.17) ne peuvent pas s'écrire autrement puisqu'aucune autre hypothèse n'est faite sur la géométrie de la fibre, laquelle est en principe déterminée par les profils obtenus par les méthodes optiques du chapitre 5.

A.3 Approximation ellipsoïdale.

L'approximation la plus simple d'une calotte sphérique aplatie semble être la calotte ellipsoïdale. Cependant, l'interface doit toujours être une surface de courbure constante (surface minimale avec contrainte) et, si c'est le cas pour la calotte sphérique, ce n'est plus vrai pour l'ellipsoïde. En effet, la fonction décrivant un ellipsoïde de demi axes a , b , et c , s'écrit :

$$f(x, y) = c \sqrt{1 - \frac{x^2}{a^2} - \frac{y^2}{b^2}} \quad (\text{A.19})$$

L'équation (A.9) permet de calculer la courbure de la fonction définie dans l'équation (A.19). Il vient :

$$k(x, y) = \frac{a^4 b^2 c + b^2 c^3 x^2 + a^2 c (b^4 + c^2 y^2 - b^2 (x^2 + y^2))}{2 (b^4 (a^4 - a^2 x^2 + c^2 x^2) - a^4 (b^2 - c^2) y^2) \sqrt{\left(1 - \frac{b^2 x^2 + a^2 y^2}{b^2 a^2}\right) \left(1 + \frac{c^2 (b^4 x^2 + a^4 y^2)}{a^4 b^2 (b^2 - y^2) - a^2 b^4 x^2}\right)}} \quad (\text{A.20})$$

dont il est aisément vérifiable qu'elle se réduit à la valeur constante $k(x, y) = 1/R$ dans le cas de la calotte sphérique ($a = b = c = R$). L'équation (A.20) montre que la courbure de l'ellipsoïde n'est pas constante. La figure A.3 montre, en outre, que ce n'est même pas une très bonne approximation car cette courbure peut varier considérablement au sommet de l'ellipsoïde.

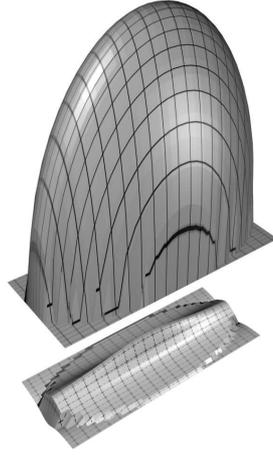


FIG. A.3 – Courbure non constante de l'ellipsoïde pour $(a, b, c) = (2, 5, 10)$. En haut : l'ellipsoïde. En bas : sa courbure.

L'ellipsoïde, quoiqu'il soit la forme analytique la plus simple après la sphère, n'est pas une surface à courbure constante. Sa détermination présente, par ailleurs, d'autres problèmes.

Détermination dans le plan. Sa détermination dans un plan est impossible dans le cas général. En effet, puisqu'on impose à l'interface d'être tangentielle à la fibre, elle ne sera qu'une calotte d'ellipsoïde si la paroi de la fibre n'est pas verticale. Dans le cas de la calotte sphérique, cela ne pose pas de problème. La détermination du centre et du rayon d'un cercle, connaissant la forme de la fibre, est toujours possible. Avec les notations de la figure A.4, les inconnues sont le centre (x_c, y_c) et le rayon R , soit trois inconnues.

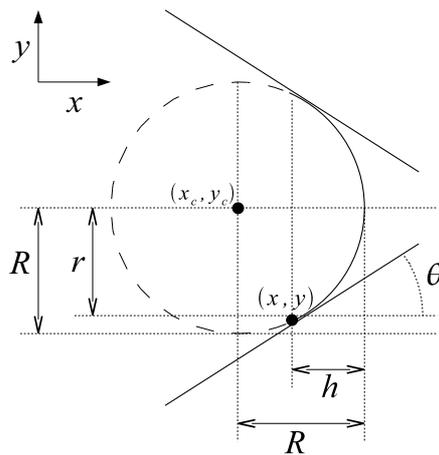


FIG. A.4 – Notations pour le cercle.

Trois équations sont disponibles. Tout d'abord, la définition du cercle : $(x - x_c)^2 + (y - y_c)^2 = R^2$, puis le fait que le cercle doive être tangent à la fibre : $f'(x) = -(x - x_c) / (y - y_c)$,

et enfin la certitude, du fait de la symétrie de la fibre, que le centre du cercle se trouve sur l'axe de rotation de la fibre : $y_c = y + r$. Les trois équations sont donc :

$$\begin{aligned} (x - x_c)^2 + (y - y_c)^2 &= R^2 \\ \frac{\partial f(x)}{\partial x} &= -\frac{(x - x_c)}{(y - y_c)} \\ y - y_c &= -r \end{aligned} \tag{A.21}$$

pour trois inconnues x_c , y_c , et R (les autres valeurs dans le système (A.21) sont toutes connues). Le problème est soluble et sa solution (qu'on trouve, soit géométriquement sur la figure A.4, soit analytiquement en résolvant les équations (A.21)) a été largement utilisée dans les chapitres 4 et 6.

Dans le cas de la calotte ellipsoïdale projetée dans le plan (figure A.5), le rayon R devient deux axes a et c , ce qui ajoute une inconnue. En revanche, le nombre d'équations ne change pas et le système (A.21) devient :

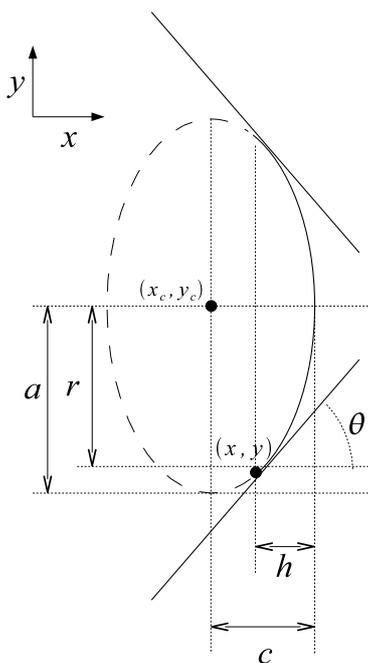


FIG. A.5 – Notations pour l'ellipse.

$$\begin{aligned} \frac{(x - x_c)^2}{c^2} + \frac{(y - y_c)^2}{a^2} &= 1 \\ \frac{\partial f(x)}{\partial x} &= -\frac{a^2 (x - x_c)}{c^2 (y - y_c)} \\ y - y_c &= -r \end{aligned} \tag{A.22}$$

Dans ce cas, on a trois équations pour quatre inconnues x_c , y_c , a , et c . Le système (A.22) est donc insoluble. L'ellipsoïde n'est pas déterminable dans le plan de la figure A.5, et bien sûr, pas plus dans le plan perpendiculaire à celui de la figure A.5 (remplacer a par b).

Détermination dans l'espace. Dans le cas précis où la fibre est droite, c'est-à-dire où les ellipses qui la constituent ont toutes leur centre sur le même axe, la calotte ellipsoïdale existe en principe puisque deux ellipses successives peuvent toujours se trouver sur un ellipsoïde.

En revanche, dans le cas d'une fibre non droite, la calotte ellipsoïdale n'existe même pas puisqu'elle exige la satisfaction des équations (A.17) (en particulier la continuité des dérivées), qui ne peuvent être satisfaites si la fibre ne satisfait pas certaines contraintes (axe de rotation droit). Les fibres modélisées dans le chapitre 5 ayant des ellipses différemment centrées, elles interdisent le raccord tangent de la calotte et de la fibre, et donc l'existence même d'une calotte ellipsoïdale.

On voit donc que la calotte ellipsoïdale, même si elle se présente comme l'approximation la plus simple d'une calotte sphérique aplatie, n'a pas une courbure moyenne constante, n'existe pas toujours dans les fibres telles qu'on les a modélisées, et n'est, de toute façon, pas déterminable. Pour toutes ces raisons, il a fallu abandonner l'idée séduisante d'approximer l'interface libre de la poche de gaz par une calotte ellipsoïdale.

Dans ce cas, il faut résoudre l'équation de Laplace-Young (A.16) (c'est-à-dire l'équation (A.14) avec $\lambda = \Delta p/\sigma$) munie des conditions aux limites (A.17) et (A.18). La section suivante expose une méthode originale pour résoudre ce problème, basée sur deux méthodes connues : la méthode de descente du gradient, et les multiplicateurs de Lagrange pour tenir compte des contraintes.

A.4 Etude numérique par la méthode modifiée de descente du gradient.

A.4.1 Rappel de la méthode.

La méthode de descente du gradient (Gradient Descent Method), également connue comme la méthode de plus forte pente (Steepest Descent Method) [86] est la méthode numérique la plus simple pour trouver le minimum local d'une fonction [87]. Le gradient donnant la direction de la pente la plus forte, l'idée est que pour descendre, il faut se déplacer dans la direction opposée. C'est une méthode itérative : partant d'un point test, la fonction et son gradient sont évalués à chaque pas, puis réévalués jusqu'à immobilité du point test. A une dimension, l'algorithme s'écrit :

$$x^{i+1} = x^i - \epsilon \frac{\partial f}{\partial x} \quad (\text{A.23})$$

à chaque pas i , où $f(x)$ est la fonction dont il faut trouver le minimum local, et $0 < \epsilon \ll 1$ pondère la valeur du gradient.

A.4.2 Adaptation de la méthode dans notre cas.

Pour simplifier l'exposition du problème, il va être traité à une dimension, c'est-à-dire en essayant de minimiser la longueur d'une courbe à surface constante, plutôt que de minimiser une surface à volume constant (ce qui est le vrai problème).

Sans contrainte. Le but est de minimiser la longueur A d'une fonction f définie par un ensemble de points (x_n, f_n) , qui représente la forme de la corde physique. Il faut donc, en vertu des équations d'Euler-Lagrange, annuler la courbure de f . L'idée est, à chaque pas, de faire monter ou baisser chaque point de la fonction proportionnellement à la courbure en ce point. Si la courbure est positive, le point tombe pour la faire diminuer, sinon, il remonte pour la faire augmenter :

$$f_n^{i+1} = f_n^i - \epsilon \frac{1}{R(x_n^i)} \quad (\text{A.24})$$

ce qui, en vertu de l'équation (A.10) se réécrit :

$$f_n^{i+1} = f_n^i + \epsilon \frac{f_{xx}}{(1 + f_x^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (\text{A.25})$$

où les dérivées f_x et f_{xx} sont évaluées au point x_n . On vérifie bien que le point x_n remonte lorsque la fonction est concave (dérivée seconde positive) et redescend sinon.

Avec contraintes. Il faut maintenant adapter la méthode du gradient en lui ajoutant des contraintes. Pour ce faire, l'appareillage des multiplicateurs de Lagrange va être utilisé. La surface devant être conservée, l'élément de longueur $F = \sqrt{1 + f_x^2}$ peut être remplacé par l'élément $F = \sqrt{1 + f_x^2} + \lambda f(x)$ (équation (A.13)). En utilisant l'équation (A.14) à une dimension plutôt que l'équation (A.10), l'analogie avec contrainte de l'équation (A.25) est obtenu :

$$f_n^{i+1} = f_n^i + \epsilon \left(\frac{f_{xx}}{(1 + f_x^2)^{\frac{3}{2}}} + \lambda \right) \quad (\text{A.26})$$

à laquelle il faut adjoindre la condition $C(x, f) = \text{cste}$ qui permet de calculer la courbure inconnue λ .

Pour une fonction définie par N points espacés de Δx , et dont le premier et le dernier sont fixés ($f_1 = f_N = 0$), la surface se calcule exactement comme une somme de trapèzes :

$S = \Delta x \sum_{n=1}^N f_n$ et la contrainte est $S = S_0$, soit $C = S - S_0$, où S_0 est la surface imposée et constante.

Il faut donc, à chaque étape de la résolution numérique, résoudre le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} f_n^{i+1} = f_n^i + \epsilon \left(\frac{f_{xx}}{(1+f_x^2)^{\frac{3}{2}}} + \lambda \right) \\ \Delta x \sum_{n=1}^N f_n^{i+1} = S_0 \end{cases} \quad (\text{A.27})$$

Pour une membrane plutôt que pour une corde, donc définie par un ensemble de points (x_n, y_n, f_n) , il faut minimiser la surface à volume constant. Dans ce cas, le système devient :

$$\begin{cases} f_n^{i+1} = f_n^i + \epsilon \left(\frac{-(1+f_y^2)f_{xx} + 2f_x f_y f_{xy} - (1+f_x^2)f_{yy}}{(1+f_x^2+f_y^2)^{\frac{3}{2}}} + \lambda \right) \\ V(x_n, y_n, f_n^{i+1}) = V_0 \end{cases} \quad (\text{A.28})$$

Avec une expression appropriée pour le volume $V(x_n, y_n, f_n)$. Ce système est l'analogue du système (A.27) dans lequel la courbure $1/R$ (équation (A.10)) est remplacée par son expression bidimensionnelle $(1/R_1 + 1/R_2)$ (équation (A.9)).

Malgré leur aspect peu engageant, la signification des systèmes (A.27) et (A.28) est relativement simple si l'on se souvient que l'expression complexe dans la parenthèse est l'opposée de la courbure. La parenthèse est donc la différence entre la courbure actuelle et la courbure d'équilibre λ . Donc, à chaque étape i , chaque point monte ou descend proportionnellement à l'écart entre la courbure actuelle et la courbure finale λ . Si la courbure est supérieure à la courbure finale, le point descend, et il monte sinon. La subtilité est que la courbure finale λ est inconnue au départ et est calculée pas à pas en même temps que la fonction f solution. L'apparente complexité de ces systèmes provient des expressions complexes de la courbure (équations (A.10) et (A.9)).

Dans les deux cas, il existe $(N + 1)$ équations (une équation par point + la contrainte), pour $(N + 1)$ inconnues (N valeurs $f_n^{i+1} + \lambda$), et les systèmes sont donc solubles.

De même que dans le cas monodimensionnel, il a été imposé aux points extrêmes de rester au sol ($f_1 = f_N = 0$), il faudrait, dans le cas d'une surface, imposer aux points situés sur l'ellipse porteuse de rester nuls également.

Les systèmes (A.27) et (A.28) étant originaux, il faut en vérifier le fonctionnement dans un cas connu, ce qui fait l'objet de la section suivante.

A.4.3 Application à la courbe.

Efficacité de la méthode.

On sait que, pour une courbe dont les deux extrémités sont fixées, et qui est contrainte à rester dans une limite tubulaire, la solution est un arc de cercle qui devient un demi cercle dans le cas limite où les bords de la courbe doivent être verticaux. L'arc de cercle dépend de la surface imposée. La figure A.6 montre les solutions trouvées pour 3 et 10 points mobiles, avec les courbes de convergence du multiplicateur de Lagrange λ (qui est la courbure). Pour la surface choisie, le rayon théorique de l'arc de cercle est de 16 unités. Avec 3 points, le rayon numérique $1/\lambda$ vaut 15.1 et il vaut 16 avec 10 points. La méthode fonctionne donc correctement même avec un nombre réduit de points.

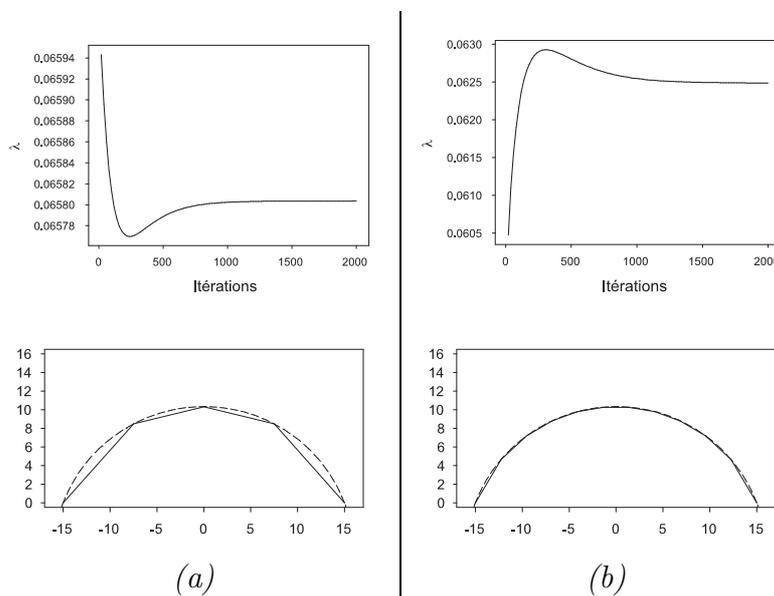


FIG. A.6 – Efficacité de la méthode du gradient avec multiplicateurs de Lagrange. En haut : les courbes de mise à l'équilibre de la courbure λ . En bas : la corde solution trouvée. En pointillé l'arc de cercle théorique correspondant à la surface choisie, qui possède en l'occurrence un rayon théorique de 16.05 unités. (a) Avec 3 points mobiles, les points se placent déjà sur un cercle. Le rayon $1/\lambda$ numérique est de 15.1. (b) Avec 10 points mobiles, la correspondance avec le cercle théorique est meilleure. Le rayon trouvé est dans ce cas de 16.003.

Limites de la méthode.

La courbe solution dépend de la surface imposée. La surface limite est celle qui correspond à un demi cercle, soit $S_0 = \pi a^2/2$. Lorsqu'on tend vers le demi cercle, la convergence de la courbure λ vers la valeur correcte est plus lente, mais la méthode fonctionne. Lorsqu'une valeur supérieure est imposée, il n'existe plus de fonction solution du problème, mais la solution est connue : c'est un demi cercle de rayon a , déplacé vers le

haut. La méthode fournit ici une réponse logique compte tenu de ce qui lui est demandé, mais fautive physiquement : la solution tend progressivement vers un rectangle de surface S_0 , qui possède presque partout une courbure nulle. La procédure minimise donc bien la courbure à surface constante, mais ne fournit plus une réponse physique satisfaisante.

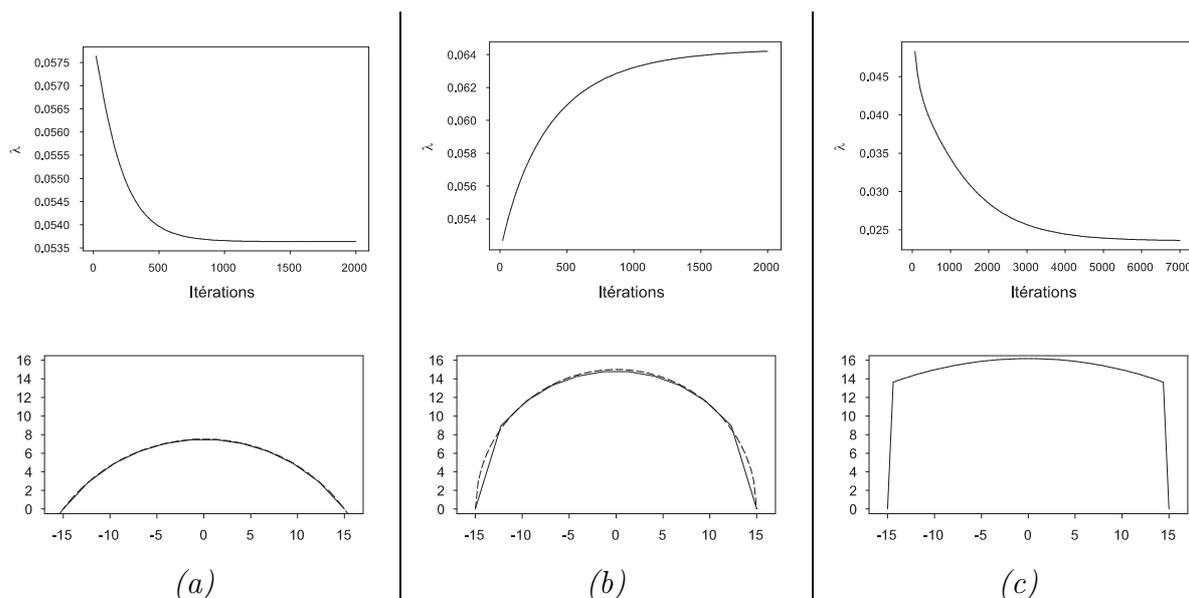


FIG. A.7 – *Limites de la méthode. En haut les courbes de mise à l'équilibre de la courbure λ . En bas les solutions trouvées avec en pointillés l'arc de cercle théorique solution. (a) Pour une petite surface, la méthode fonctionne correctement et converge assez rapidement. (b) Pour une surface correspondant au demi cercle, la méthode fonctionne avec une convergence plus lente. (c) Pour une surface plus grande, la méthode cesse de fonctionner. La solution théorique n'est pas calculable, mais est connue pour des raisons physiques : il s'agit d'un demi cercle déplacé vers le haut, auquel ne correspond aucune fonction monovaluée. Etant dans l'incapacité de trouver la bonne solution, l'algorithme fait tendre la courbe vers un rectangle, à surface constante. Dans ce cas, la courbure λ converge très lentement vers 0.*

La méthode est donc très efficace jusqu'au cas limite où les bords de la fonction deviennent verticaux (ce qui correspond à une interface collée à la paroi de la fibre).

L'adaptation de la méthode au cas d'une surface ne pose aucun problème de principe, mais le temps a manqué pour la faire. En revanche, simultanément au développement de cette méthode, une autre approche par simulation directe du problème physique a été tentée, et est présentée dans la section suivante.

A.5 Etude numérique par simulation directe.

A.5.1 Principe.

La simulation directe consiste à créer une grille de points reliés par une force élastique (la tension de surface) et soumis à une force normale (la pression).

La force élastique reliant deux points est proportionnelle à la distance qui les sépare : $\vec{f}_\sigma = \sigma \vec{d}$.

La force de pression s'exerçant sur un point doit être proportionnelle à la surface l'entourant et inversement proportionnelle au volume de la poche (gaz parfait $P \approx 1/V$ à température et quantité de gaz constants). La membrane élastique étant bordée par une ellipse fixe de demi axes a et b , l'ordre de grandeur du volume est abz_{max} où z_{max} est la hauteur du point le plus haut de la membrane.

En définitive, la force totale s'exerçant sur un point n s'écrit :

$$\vec{F}_n = \sum_{i=1}^k \sigma \vec{d}_{ni} + P \frac{S_n}{abz_{max}} \vec{n}_n \quad (\text{A.29})$$

où σ et P sont deux constantes, k est le nombre de points liés au point n , \vec{d}_{ni} est la distance entre les points n et i , S_n est la surface entourant le point n , et \vec{n}_n est la normale au point n .

La force élastique devant être régulièrement répartie sur la membrane, il faut que les points aient tous le même nombre de voisins. Un pavage rectangulaire régulier, attribuant quatre proches voisins à chaque point, a été utilisé (figure A.8).

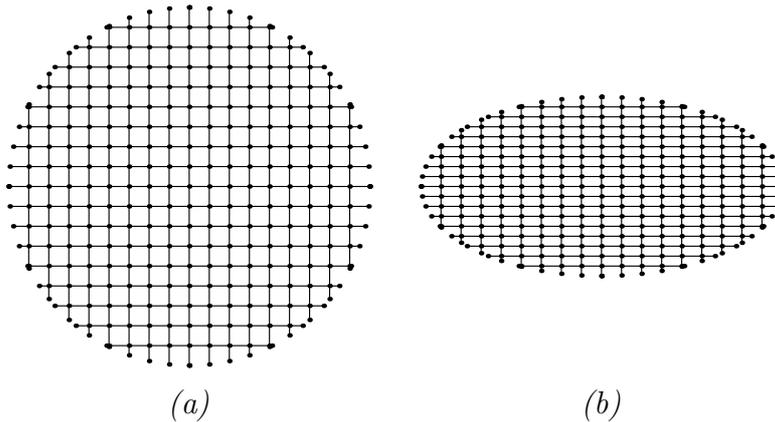


FIG. A.8 – Pavage initial. (a) $a/b = 1$. (b) $a/b = 2$. Les pavages utilisés par la suite sont entre 3 et 5 fois plus denses que ceux présentés dans cette figure.

La procédure est assez simple en principe : les valeurs des constantes σ et P sont fixées et on laisse la membrane évoluer vers son état d'équilibre. Les points périphériques, situés sur l'ellipse porteuse, sont immobiles, et il est interdit aux points mouvants de sortir du

tube fixé par l'ellipse. Deux états d'équilibre sont présentés sur la figure A.9, pour des ellipses porteuses différentes, d'aplatissements respectifs $a/b = 1$ et $a/b = 2$.

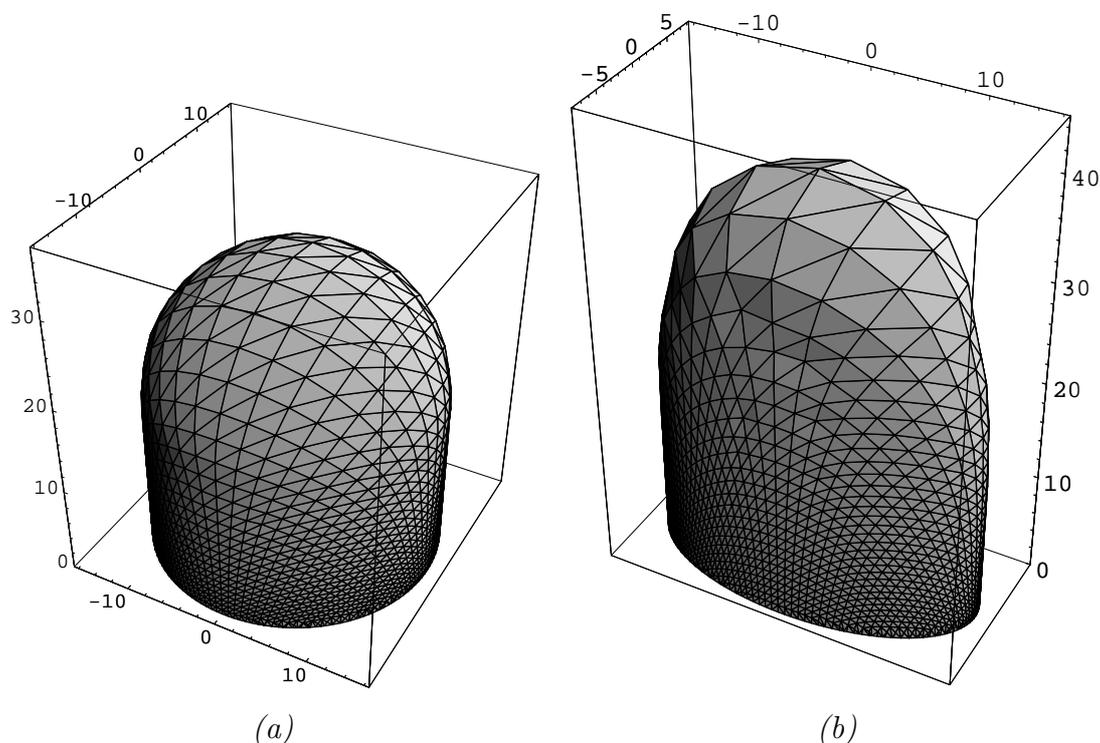


FIG. A.9 – Surfaces obtenues par simulation directe. La pression et la tension de surface sont les mêmes dans les deux cas. (a) $a/b = 1$. (b) $a/b = 2$.

A.5.2 Détermination des paramètres géométriques importants.

Le calcul du volume et de la surface des membranes à l'équilibre ne pose pas de problème. De même, connaissant la position des points à l'équilibre, il est possible d'évaluer numériquement les différentes dérivées nécessaires au calcul de la courbure par l'équation (A.9). Dans le cas $a/b = 1$, dont la réponse est connue ($k = 1/a$), on trouve, pour un rayon réel $a = 15$, un rayon de courbure numérique compris entre 14.8 et 15.2, suivant le nombre de points sélectionnés pour le calcul (il faut éliminer les points situés sur la paroi verticale). La méthode fonctionne donc correctement.

Cependant, il apparaît (figure A.9) qu'une importante proportion de points restent sur la paroi, proportion d'autant plus importante que le rapport a/b grandit. La figure A.10 représente les mêmes membranes que la figure A.9, mais vues de dessus, ce qui laisse apparaître la diminution du nombre de points disponibles pour le calcul de la courbure (la grille de départ comporte le même nombre de points dans les deux cas).

La densité de la maille initiale doit donc augmenter avec le rapport a/b afin d'obtenir assez de points en haut de la membrane pour calculer la courbure moyenne de manière

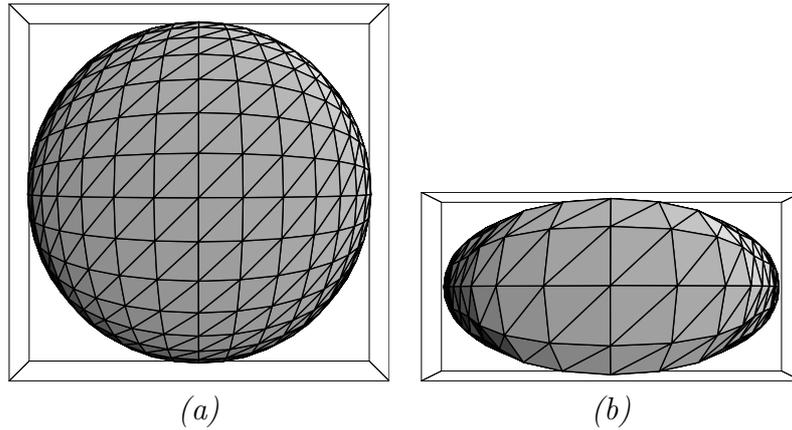


FIG. A.10 – *Etirement du maillage au sommet de la surface et donc de la précision de l'évaluation de la courbure. Ces surfaces sont les mêmes que celles de la figure A.9, mais vues de dessus. Plus l'ellipse porteuse est aplatie, plus il faut de points (pour une précision identique) et plus le calcul est long. (a) $a/b = 1$. (b) $a/b = 2$.*

fiable. En pratique, le nombre de points requis est trop important pour un ordinateur de bureau actuel : il faut plusieurs heures de calculs pour obtenir une surface comme celles présentées sur la figure A.9, ce qui en interdit l'exploitation dans le cas des fibres irrégulières, qui nécessitent un tel calcul à chaque étape de l'avancée de la poche de gaz.

Annexe B

Ascension d'une bulle : éléments théoriques.

Sommaire

B.1	Ascension d'une bulle de rayon constant.	197
B.2	Nombre de Reynolds.	198
B.3	Concentration de surface.	198

B.1 Ascension d'une bulle de rayon constant.

On appellera μ la viscosité dynamique du liquide ($\mu = 1.6 \times 10^{-3} kg.m^{-1}.s^{-1}$) et η sa viscosité cinématique, qui est le coefficient de diffusion de la vitesse du fluide ($\eta = \mu/\rho = 1.6 \times 10^{-6} m^2.s^{-1}$, où $\rho = 998 kg.m^{-3}$ est la densité du fluide).

La force visqueuse s'exerçant sur une sphère s'écrit :

$$F = \chi\pi\mu RU \tag{B.1}$$

où $\chi = 6$ pour une sphère rigide et $\chi = 4$ pour une sphère fluide.

L'équation pour une bulle de gaz montant dans un liquide simple est [48] :

$$\frac{4\pi\rho\alpha_{am}R^3}{3} \left(\frac{\partial U}{\partial t} + \frac{3U}{R} \frac{\partial R}{\partial t} \right) = \frac{4\pi\rho g R^3}{3} - \chi\pi\mu RU \tag{B.2}$$

où $\alpha_{am} = 1/2$ est le coefficient de masse ajoutée, qui traduit l'inertie du fluide déplacé avec la sphère.

Si l'on suppose un rayon constant, l'équation devient :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{g}{\alpha_{am}} - \frac{3\chi\eta}{4\alpha_{am}R^2} U \tag{B.3}$$

dont la solution s'écrit :

$$\begin{aligned}
U(t) &= U_\infty \left(1 - e^{-\frac{t}{\tau_U}}\right) \\
U_\infty &= \frac{4}{3\chi} \frac{g}{\eta} R^2 \\
\tau_U &= \frac{4\alpha_{am}}{3\chi} \frac{R^2}{\eta}
\end{aligned} \tag{B.4}$$

où l'on retrouve l'expression de la vitesse limite stationnaire (équations (7.2) du chapitre 7) et qui donne une expression du temps caractéristique nécessaire à la bulle pour atteindre sa vitesse limite.

Le temps requis par une bulle pour atteindre 95% de sa vitesse limite vaut donc :

$$t_U = -\tau_U \ln \frac{5}{100} \approx 3\tau_U = \frac{2\alpha_{am}R^2}{\eta\chi} \tag{B.5}$$

B.2 Nombre de Reynolds.

Le nombre de Reynolds s'écrit :

$$Re = \frac{2RU}{\eta} \tag{B.6}$$

Sachant que le rayon de la bulle est une fonction linéaire du temps ($R = R_0 + kt$) [45], la vitesse de la bulle, donnée par l'équation (B.4), permet de trouver sa position en fonction de son rayon :

$$z(t) = \int_t U dt = \int_R U \frac{dR}{k} = \frac{4}{9\chi} \frac{g}{\eta k} (R^3 - R_0^3) \tag{B.7}$$

ce qui permet d'exprimer le nombre de Reynolds en fonction de la position de la sphère :

$$Re = \frac{8}{3\chi} \frac{g}{\eta^2} R_0^3 + \frac{6k}{\eta} z \tag{B.8}$$

B.3 Concentration de surface.

La concentration de surface Γ est la masse de tensioactifs par unité de surface à la surface de la bulle : $\Gamma = M/S$ avec $S = 4\pi R^2$. Sa variation avec l'altitude z s'écrit donc :

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial z} = \left(\frac{\partial \Gamma}{\partial z} \right)_{R \text{ cste}} - \frac{\Gamma}{S} \frac{\partial S}{\partial z} \tag{B.9}$$

où le premier terme représente l'augmentation de concentration par adsorption de tensioactifs (par diffusion-convection dans une bulle en mouvement) et le second sa di-

minution par dilution des tensioactifs (diminution de surface). Levich [46] a calculé la valeur du premier terme pour une sphère fluide (FS) ou rigide (RS) en mouvement à petit nombre de Reynolds :

$$\left(\frac{\partial\Gamma}{\partial z}\right)_{R \text{ cste}, FS} = \frac{0.46c}{\sqrt{Pe}} \quad (\text{B.10})$$

$$\left(\frac{\partial\Gamma}{\partial z}\right)_{R \text{ cste}, RS} = \frac{0.63c}{Pe^{\frac{2}{3}}} \quad (\text{B.11})$$

où c est la concentration en tensioactifs dans le liquide, et $Pe = 2RU/D$ est le nombre de Peclet. D est le coefficient de diffusion des tensioactifs dans le liquide.

Le terme de dilution dans l'équation (B.9) s'écrit :

$$\left(\frac{\partial\Gamma}{\partial z}\right)_{\text{dilution}} = -\frac{\Gamma}{S} \frac{\partial S}{\partial R} \frac{\partial R}{\partial z} = -\Gamma \frac{2}{R} \frac{\partial R}{\partial z} \quad (\text{B.12})$$

L'équation (B.7) permet d'exprimer $R(z)$, ce qui donne :

$$\left(\frac{\partial\Gamma}{\partial z}\right)_{\text{dilution}} = -\frac{\Gamma}{\frac{2}{3\chi} \frac{g}{\eta k} R_0^3 + \frac{3}{2}z} \quad (\text{B.13})$$

Les équations (B.10) et (B.13) permettent de trouver l'équation qui régit la variation de concentration en tensioactifs à la surface d'une bulle grossissante fluide ($\chi = 4$) :

$$\left(\frac{\partial\Gamma}{\partial z}\right)_{FS} = 0.46c \left(\frac{2}{3} \frac{g}{\eta D} R_0^3 + \frac{6k}{D} z\right)^{-\frac{1}{2}} - \frac{\Gamma}{\frac{1}{6} \frac{g}{\eta k} R_0^3 + \frac{3}{2}z} \quad (\text{B.14})$$

et les équations (B.11) et (B.13) donnent cette équation dans le cas d'une bulle rigide ($\chi = 6$) :

$$\left(\frac{\partial\Gamma}{\partial z}\right)_{RS} = 0.63c \left(\frac{4}{9} \frac{g}{\eta D} R_0^3 + \frac{6k}{D} z\right)^{-\frac{2}{3}} - \frac{\Gamma}{\frac{1}{9} \frac{g}{\eta k} R_0^3 + \frac{3}{2}z} \quad (\text{B.15})$$

Annexe C

Perturbation des bulles encadrantes.

Sommaire

C.1	Ecoulement autour d'une sphère.	201
C.2	Correction de vitesse due à la bulle supérieure.	202
C.3	Correction de vitesse due à la bulle inférieure.	203
C.3.1	Calcul à l'ordre 2.	203
C.4	Gradients de pression additionnels.	204
C.5	Correction complète.	204

Le but de la présente annexe est le calcul des différents termes de l'équation (7.7) du chapitre 7, qui est rappelée ici :

$$U_i = \frac{U_t - u_1(\lambda_1) - u_2(\lambda_2)}{1 - \frac{1}{\rho g} \frac{\partial P_1}{\partial z} - \frac{1}{\rho g} \frac{\partial P_2}{\partial z}} \quad (\text{C.1})$$

où les termes u_i sont les contributions des bulles encadrantes à la vitesse du fluide au niveau de la bulle étudiée, et les termes $\partial P_i/\partial z$ les gradients de pression des courants dus aux bulles encadrantes. Les indices 1 et 2 réfèrent respectivement les bulles supérieure et inférieure (figure C.1).

C.1 Ecoulement autour d'une sphère.

Pour évaluer les termes de l'équation (C.1), l'expression de la vitesse d'écoulement d'un fluide autour d'une sphère sera nécessaire. Aux petits nombres de Reynolds, l'écoulement d'un fluide loin d'un obstacle est régi par l'équation d'Oseen [7] :

$$\mu \Delta u - \nabla P = \rho u_\infty \cdot \nabla u \quad (\text{C.2})$$

Où μ est la viscosité du fluide, ρ sa densité, P sa pression, u sa vitesse, u_∞ la vitesse à l'infini (très loin de l'obstacle), et Δ et ∇ sont respectivement les opérateurs Laplacien et

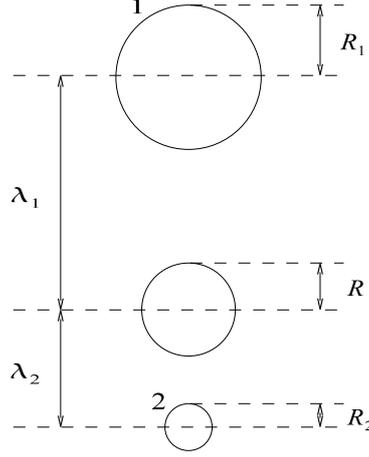


FIG. C.1 – Rappel des notations utilisées pour les bulles 1 et 2.

gradient. La solution de cette équation dans le cas de l'écoulement autour d'une sphère s'écrit [88] :

$$\begin{aligned}
 u_r(r, \theta) &= \frac{2U}{Re} \left(\frac{R}{r} \right)^2 - U \left[\frac{2}{Re} \left(\frac{R}{r} \right)^2 + \frac{1 + \cos \theta}{2(r/R)} \right] e^{-\frac{Re}{4} \frac{r}{R} (1 - \cos \theta)} \quad (C.3) \\
 u_\theta(r, \theta) &= U \frac{\sin \theta}{2(r/R)} e^{-\frac{Re}{4} \frac{r}{R} (1 - \cos \theta)} \\
 Re &= \frac{2RU}{\eta}
 \end{aligned}$$

où U est la vitesse de la bulle et r et θ les coordonnées polaires centrées sur la bulle étudiée —l'axe $\theta = 0$ est dirigé vers le bas— (figure C.2). Pour calculer la valeur de la vitesse du liquide au niveau de la bulle étudiée, on se contentera de la valeur de cette vitesse à la position du centre de la bulle.

On va à présent évaluer un à un les termes intervenant dans l'équation (7.7).

C.2 Correction de vitesse due à la bulle supérieure.

Pour la bulle 1, il est insuffisant de poser simplement $\theta = 0$, qui donne le décevant $u_1(r) = U_1 R_1 / r$. Il faut donc faire une approximation moins grossière. Dans ce but, les coordonnées cylindriques, qui sont ici plus commodes, $\lambda = -r \cos \theta$ et $m = r \sin \theta$ (figure C.2) seront utilisées.

En supposant $\theta \ll 1$ (soit $m \ll \lambda$) et donc $\cos \theta \approx 1 - m^2 / 2\lambda^2$, il vient :

$$u_1(\lambda, m) = \frac{2U_1}{Re_1} \frac{R_1^2}{\lambda^2} \left(1 - e^{-\frac{Re_1}{8} \frac{\lambda}{R_1} \left(\frac{m}{\lambda} \right)^2} \right) + \frac{U_1 R_1}{\lambda} e^{-\frac{Re_1}{8} \frac{\lambda}{R_1} \left(\frac{m}{\lambda} \right)^2} \quad (C.4)$$

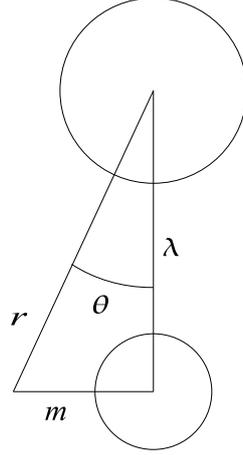


FIG. C.2 – *Systèmes de coordonnées employés.*

Cette expression peut être simplifiée. En effet, si la première exponentielle du membre de droite est suffisamment proche de 1, il est permis de négliger l'expression de gauche dans ce membre. Ceci s'écrit : $Re_1 m^2 / 8R_1 \lambda \ll 1$ soit $\lambda / R_1 \gg (m/R_1)^2 Re_1 / 8$ soit plus simplement, puisque $m \approx R_1$, $\lambda / m \gg Re_1 / 8$. Cette condition est toujours vérifiée puisqu'on travaille à petit Reynolds et qu'on suppose déjà $m \ll \lambda$. Sous cette condition, une valeur approchée satisfaisante, déjà obtenue par Batchelor [89], est obtenue :

$$u_1(\lambda, m) = \frac{U_1 R_1}{\lambda} e^{-\frac{Re_1}{8} \frac{\lambda}{R_1} \left(\frac{m}{\lambda}\right)^2} \quad (\text{C.5})$$

L'équation (C.5) présente toutefois le défaut de dépendre de m . Pour y remédier, il est possible de moyenner cette variable sur toutes les valeurs de m comprises entre 0 et le rayon R de la bulle étudiée :

$$u_1(\lambda) = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^R \int_0^{2\pi} u_1(\lambda, m) m d\phi dm = \frac{8U_1}{Re_1} \left(1 - e^{-\frac{Re_1 R^2}{8R_1 \lambda}}\right) \quad (\text{C.6})$$

C.3 Correction de vitesse due à la bulle inférieure.

Pour la bulle 2, $u_2(r)$ est obtenue directement en posant $\theta = \pi$ dans l'équation (C.3) :

$$u_2(\lambda) = \frac{2U_2}{Re_2} \left(\frac{R_2}{\lambda}\right)^2 \left(1 - e^{-\frac{Re_2}{2} \frac{\lambda}{R_2}}\right) \quad (\text{C.7})$$

C.3.1 Calcul à l'ordre 2.

On peut tenter d'obtenir une formule plus précise en poussant le développement du cosinus à l'ordre 2. En écrivant $\cos(\pi - m/\lambda) = -\cos m/\lambda \approx (m^2/2\lambda^2) - 1$ et en calculant la moyenne sur les valeurs de m comme pour la bulle 1, l'expression de la vitesse au deuxième ordre devient :

$$u_2(\lambda, m) = \frac{2U_2 R_2^2}{Re_2 \lambda^2} \left(1 - e^{-\frac{Re_2}{4} \frac{\lambda}{R_2} \left(2 - \frac{m^2}{2\lambda^2} \right)} \right) \quad (\text{C.8})$$

laquelle, une fois moyennée sur la surface offerte de la bulle étudiée (comme dans l'équation (C.6)), donne l'expression de la perturbation de la vitesse due à la bulle inférieure à l'ordre 2 :

$$u_2(\lambda) = \frac{2U_2 R_2^2}{Re_2 \lambda^2} \left(1 - e^{-\frac{Re_2}{2} \frac{\lambda}{R_2} \frac{8R_2\lambda}{R^2 Re_2} \left(e^{\frac{Re_2 R^2}{8R_2\lambda}} - 1 \right)} \right) \quad (\text{C.9})$$

On vérifie cependant numériquement que le multiplicateur supplémentaire trouvé dans l'équation (C.9) par rapport à l'équation (C.7) vaut pratiquement 1. En conséquence, l'ordre 1 est suffisant et l'équation (C.7) sera utilisée.

C.4 Gradients de pression additionnels.

Les gradients de pression additionnels se calculent en injectant les équations (C.3) dans l'équation d'Oseen. Il vient [72] :

$$\frac{\partial P}{\partial r} = \frac{4\rho U^2 \cos \theta}{R Re} \left(\frac{R}{r} \right)^3 \quad (\text{C.10})$$

Soit, pour la bulle 1, ($r = \lambda_1$, $\theta = 0$, $\partial z / \partial r = -1$) :

$$\frac{\partial P_1}{\partial z} = \frac{4\rho U_1^2}{R_1 Re_1} \left(\frac{R_1}{\lambda_1} \right)^3 \quad (\text{C.11})$$

Et pour la bulle 2 ($r = \lambda_2$, $\theta = \pi$, $\partial z / \partial r = 1$) :

$$\frac{\partial P_2}{\partial z} = \frac{4\rho U_2^2}{R_2 Re_2} \left(\frac{R_2}{\lambda_2} \right)^3 \quad (\text{C.12})$$

C.5 Correction complète.

En injectant les équations (C.6), (C.7), (C.11), et (C.12) dans l'équation (C.1), la formule développée corrigeant la vitesse d'une bulle isolée est finalement obtenue :

$$U_i = \frac{U_t - \frac{8U_1}{Re_1} \left(1 - e^{\frac{Re_1 R^2}{8R_1 \lambda_1}} \right) - \frac{2U_2 R_2^2}{Re_2 \lambda_2^2} \left(1 - e^{-\frac{Re_2}{2} \frac{\lambda_2}{R_2}} \right)}{1 - \frac{4U_1^2}{gR_1 Re_1} \left(\frac{R_1}{\lambda_1} \right)^3 - \frac{4U_2^2}{gR_2 Re_2} \left(\frac{R_2}{\lambda_2} \right)^3} \quad (\text{C.13})$$

Bibliographie

- [1] G. Liger-Belair. *Une première approche des processus physico-chimiques liés à l'effervescence des vins de Champagne*. PhD thesis, Université de Reims, Reims, 2001.
- [2] G. Liger-Belair. La physique des bulles de champagne. *Ann. Phys., Paris*, 27(4) :1–106, 2002.
- [3] G. Liger-Belair and P. Jeandet. More on the surface state of expanding champagne bubbles rising at intermediate reynolds and high peclet numbers. *Langmuir*, 19 :801–808, 2003.
- [4] C. Brücker. Structure and dynamics of the wake of bubbles and its relevance for bubble interaction. *Phys. Fluids*, 11(7) :1781–1796, 1999.
- [5] Q.X. Wang. The evolution of a gas bubble near an inclined wall. *Theoret. Comput. Fluids Dynamics*, 121 :29–51, 1998.
- [6] L. Duchemin. *Quelques problèmes fortement non linéaires de surface libre et leur résolution numérique*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille II, Aix Marseille, 2001.
- [7] M. Rieutord. *Une introduction à la dynamique des fluides*. Masson, Paris, 1997.
- [8] L. Landau and E. Lifchitz. *Cours de physique théorique, tome 6, Mécanique des fluides, 2ème édition*. Editions Mir, Moscou, 1989.
- [9] P.G. De Gennes, F. Brochard-Wyart, and D. Quéré. *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Belin, Paris, 2002.
- [10] I. Prigogine and D. Kondepudi. *Thermodynamique. Des moteurs thermiques aux structures dissipatives*. Odile Jacob, Paris, 1999.
- [11] G.G. Agabalianz. Bases scientifiques de la technologie des vins mousseux. *Bulletin de l'O.I.V.*, 36 :703, 1963.
- [12] R.A. Granger. *Fluid Mechanics*. Dover Publication Inc., New York, 1995.
- [13] B. Duteurtre. La science du champagne. *La Recherche*, 17 :1478, 1986.
- [14] A. Dussaud. *Etude des propriétés de surface statiques et dynamiques de solutions alcooliques de protéines : Application à la stabilité des mousses de boissons alcoolisées*. PhD thesis, ENSIAA, Massy, France, 1993.
- [15] R.G. Wilt. Nucleation rate and bubble stability in water-carbon dioxide solutions. *J. Colloid Interface Sci.*, 112 :530, 1986.

- [16] H.B. Callen. *Thermodynamics and an introduction to thermostatistics. Second edition*. John Wiley and sons, New York, 1985.
- [17] C.A. Ward, P. Tikuisis, and R.D. Venter. Stability of bubbles in a closed volume of liquid-gas solution. *J. Appl. Phys.*, 53 :6076, 1982.
- [18] L. Pauling. *General Chemistry (Appendix IX)*. Dover Publication Inc., New York, 1988.
- [19] R.P. Feynman. *Statistical Mechanics, a Set of Lectures*. Addison-Wesley Publishing Company, The Advanced Book Program., New York, 1972.
- [20] S.F. Jones, G.M. Evans, and K.P. Galvin. Bubble nucleation from gas cavities - a review. *Adv. Colloid Interface Sci.*, 80 :27–50, 1999.
- [21] A. Bankoff. Entrapment of gas in the spreading of liquid over a rough surface. *AIChE J.*, 4 :24, 1958.
- [22] D. Quéré. Croissance et décrochage des bulles dans un verre contenant une boisson pétillante, Etude interne et confidentielle. *Saint-Gobain Recherche, Aubervilliers, France*, 1996.
- [23] B. V. Derjaguin and S. M. Levi. *Film coating theory*. The Focal Press, London, 1964.
- [24] G. Liger-Belair. Communication personnelle.
- [25] M. Shoji and Y. Takagi. Bubbling features from a single artificial cavity. *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, 44 :2763–2776, 2001.
- [26] D. Topgaard. *Nuclear magnetic resonance studies of water self-diffusion in porous system*. PhD thesis, Lund University, Sweden, 2003.
- [27] G. Liger-Belair, D. Topgaard, C. Voisin, and P. Jeandet. Is the wall of hydrated cellulose fibers whether or not permeable with CO_2 dissolved molecules ? application to bubble nucleation in champagne wines. *Langmuir*, 20 :4132–4138, 2004.
- [28] M. Terrien and J. Fournier. *Chimie du petit déjeuner*. Cultures et Techniques, Collection Formation, Nantes, 1998.
- [29] A.C. O’Sullivan. Cellulose : the structure slowly unravels. *Cellulose*, 4 :173–207, 1997.
- [30] J. E. Stone and A. M. Scallan. The effect of component removal upon the porous structure of the cell wall of wood. ii. swelling in water and the fiber saturation point. *Tappi*, 50(10) :496–501, 1967.
- [31] J.E. Stone and A.M. Scallan. A structural model for the cell wall of water-swollen wood pulp fibers based on their accessibility to macromolecule. *Cellul. Chem. Technol.*, 2 :343–358, 1968.

- [32] D. Topgaard and O. Söderman. Changes of cellulose fiber wall structure during drying investigated using NMR self-diffusion and relaxation experiments. *Cellulose*, 9 :139–147, 2002.
- [33] D. Fengel and G. Wegener. *Wood : Chemistry, ultrastructure and reactions*. W. De Gruyter, New York, 1984.
- [34] G. Liger-Belair, E. Prost, M. Parmentier, P. Jeandet, and J.-M. Nuzillard. The diffusion coefficient of CO_2 molecules as determined by ^{13}C -nuclear magnetic resonance in various carbonated beverages. *J. Agric. Food Chem.*, 51(26) :7560–7563, 2003.
- [35] D. Topgaard and O. Söderman. Self-diffusion in two- and three-dimensional powders of anisotropic domains : An NMR study of the diffusion of water in cellulose and starch. *J. Phys. Chem. B*, 106 :11887–11892, 2002.
- [36] F.P. Bretherton. The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.*, 10 :166–188, 1961.
- [37] Q.C. Bi and T.S. Zhao. Taylor bubbles in miniaturized circular and noncircular channels. *Int. J. of Multiphase Flow*, 27 :561–570, 2001.
- [38] A. Mazouchi and G.M. Homsy. Thermocapillary migration of long bubbles in polygonal tubes. *Physics of Fluids*, 13(6) :1594–1600, 2001.
- [39] J. Bico and D. Quéré. Rise of liquids and bubbles in angular capillary tubes. *J. Colloid Interface Sci.*, 247 :162–166, 2002.
- [40] Q. Liao and T. S. Zhao. Modeling of taylor bubble rising in a vertical mini non-circular channel filled with a stagnant liquid. *Int. J. Multiphase Flow*, 29 :411–434, 2003.
- [41] S.F. Jones, G.M. Evans, and K.P. Galvin. The cycle of bubble production from a gas cavity in a supersaturated solution. *Adv. Colloid Interface Sci.*, 80 :51–84, 1999.
- [42] C. Ybert and J.-M. Di Meglio. Ascending air bubbles in proteins solutions. *The European Physical Journal B*, 4 :313–319, 1998.
- [43] J. Magnaudet, B. Rivero, and J. Fabre. Accelerated flows past a rigid sphere or a spherical bubble. part i : steady straining flow. *J. Fluid Mech.*, 284 :97–135, 1995.
- [44] R. Clift, J. R. Grace, and M. E. Weber. *Bubbles, Drops and Particles*. Academic Press, New-York, San-Francisco, London, 1978.
- [45] G. Liger-Belair, M. Vignes-Adler, C. Voisin, B. Robillard, and P. Jeandet. Kinetics of gas discharging in a glass of champagne : the role of nucleation sites. *Langmuir*, 18 :1294–1301, 2002.
- [46] V. G. Levich. *Physicochemical Hydrodynamics*. Prentice Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1962.

- [47] J. Rossier. *Photoablated Polymer Microsystems for Electro- and Biochemical Analyses*. PhD thesis, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne, Suisse, 2000.
- [48] G. Liger-Belair, R. Marchal, B. Robillard, T. Dambrouck, A. Maujean, M. Vignes-Adler, and P. Jeandet. On the velocity of expanding spherical gas bubbles rising in line in supersaturated hydroalcoholic solutions : Application to bubble trains in carbonated beverages. *Langmuir*, 16 :1889–1895, 2000.
- [49] A.V Anisimov, N.Y. Sorokina, and N.R Dautova. Water diffusion in biological porous systems : a NMR approach. *Magn. Reson. Imaging.*, 16 :565–568, 1998.
- [50] L.W. Schwartz, H.M. Princen, and A.D. Kiss. On the motion of bubbles in capillary tubes. *J. Fluid Mech.*, 172 :259–275, 1986.
- [51] C. Voisin, P. Jeandet, and G. Liger-Belair. On the 3D-reconstruction of Taylor-like bubbles trapped inside hollow cellulose fibers acting as bubble nucleation sites in supersaturated liquids. *Colloids and Surfaces A*, 263 :303–314, 2005.
- [52] S. Zauscher and D. Klingerberg. Normal forces between cellulose surfaces measured with colloidal probe microscopy. *J. Colloid Interface Sci.*, 229 :497–510, 2000.
- [53] M. Holmberg, J. Berg, S. Stemme, L. Ödberg, J. Rasmusson, and P. Claesson. Surface force studies on langmuir-blodgett cellulose films. *J. Colloid Interface Sci.*, 186 :369, 1997.
- [54] A. Godavarty, D. Hawrysz, R. Roy, E.M. Sevick-Muraca, and M.J. Eppstein. Influence of the refractive index mismatch at the boundaries measured in fluorescence-enhanced frequency-domain photon migration imaging. *Optic Express*, 10(5) :653–662, 2002.
- [55] L. Landau and E. Lifchitz. *Cours de physique théorique, tome 2, théorie des champs, 4ème édition*. Editions Mir, Moscou, 1989.
- [56] R. Maertens and R. Rousseau. Een nieuwe benaderde formule voor de omtrek van een ellips (A new approximate formula for the perimeter of an ellipse). *Wiskunde & Onderwijs*, 26 :249–258, 2000.
- [57] G. G. Stokes. *Trans. Camb. Phil. Soc.*, 9 :8, 1851.
- [58] J. Hadamard. Mouvement permanent lent d’une sphère liquide et visqueuse dans un liquide visqueux. *C. R. Acad. Sci.*, 152 :1735, 1911.
- [59] W. Rybczynski. On the translatory motion of a fluid sphere in a viscous medium. *Bull. Int. Acad. Pol. Sci. Lett. Cl. Math. Natur. Ser. A*, pages 40–46, 1911.
- [60] F. Takemura. Migration velocities of spherical solid particles near a vertical wall for reynolds number from 0.1 to 5. *Phys. Fluids*, 16 :204–207, 2004.
- [61] J. Magnaudet, S. Takagi, and D. Legendre. Drag, deformation and lateral migration of a buoyant drop moving near a wall. *J. Fluid. Mech.*, 476 :115–157, 2003.

- [62] O. Sano. Mobility of a small sphere in a viscous fluid confined in a rigid circular cylinder of finite length. *J. of the Phys. Soc. of Japan*, 56(8) :2713–2720, 1987.
- [63] N. Lecoq, F. Feuillebois, N. Anthore, R. Anthore, F. Bostel, and C. Petipas. Precise measurement of particule-wall hydrodynamic interactions at low reynolds number using laser interferometry. *Phys. Fluids A*, 5 :3–12, 1993.
- [64] T. Godin, M. Bouzidi, P. Lallemand, and A. Ambari. Numerical calculation of wall effect and 'backflow' on the stokes force. *C.R. Mecanique*, 300 :837–842, 2002.
- [65] P. Ligneul. Study of the influence of the proximity of a moving wall on bubble dynamics. *Phys. Fluid.*, 30(7) :2280–2283, 1987.
- [66] B. Lin, J. Yu, and S.A. Rice. Diffusion of an isolated colloidal sphere confined between flat plates. *Coll. Surf. A*, 174 :121–131, 2000.
- [67] H. Power. The interaction of a deformable bubble with a rigid wall at small reynolds number : a general approach via integral equations. *Engineering Analysis with Boundary elements*, 19 :291–297, 1997.
- [68] F. Takemura, S. Takagi, J. Magnaudet, and Y. Matsumoto. Drag and lift forces on a bubble rising near a vertical wall in a viscous liquid. *J. Fluid. Mech.*, 461 :277–300, 2002.
- [69] P. Vasseur and R.G. Cox. The lateral migration of spherical particles sedimenting in a stagnant bounded fluid. *J. Fluid. Mech.*, 80 :561–591, 1977.
- [70] J. Happel and H. Brenner. *Low Reynolds Number Hydrodynamics*. Prentice Hall Englewood Clifts, New York, 1965.
- [71] A. Ambari, B. Gauthier-Manuel, and E. Guyon. Effect of a plane wall on a sphere moving parallel to it. *J. Phys (France) Lett.*, 44 :143, 1983.
- [72] J. Katz and C. Meneveau. Wake-induced relative motion of bubbles rising in line. *Int. J. Multiphase Flow*, 22 :239–258, 1996.
- [73] P. Snabre and F. Magnifotcham. Formation and rise of a bubble stream in a viscous liquid. *Eur. Phys. J. B*, 4 :369–377, 1998.
- [74] D. Edwards, H. Brenner, and D.T. Wasan. *Interfacial Transport Processes and Rheology*. Butterworth-Heinemann, Stoneham, 1991.
- [75] M. Ahmed and E. Dickinson. Effect of ethanol on the foaming of aqueous protein solutions. *Colloids and Surfaces*, 47 :353–365, 1990.
- [76] A. Dussaud, G.B. Han, L. Ter-Minassian-Sagara, and M. Vignes-Adler. Surface properties of protein alcoholic solutions. I surface tension. *J. Colloid Interface Sci.*, 167 :247–255, 1994.
- [77] J. Senée. *Influence des macromolécules et des particules sur la stabilité des mousses de solutions hydroalcooliques complexes : Application aux vins de Champagne*. PhD thesis, INPL, Nancy, France, 1996.

- [78] J. Senée, B. Robillard, and M. Vignes-Adler. *Foaming of Glycoprotein Alcoholic Solutions (in : Food Emulsions and Foams)*. Eds E. Dickinson and J.M. Rodriguez Patino, Roy. Soc. Chem., Cambridge, England, 1999.
- [79] J. Senée, B. Robillard, and M. Vignes-Adler. Films and foams of champagne wines. *Food Hydrocolloids*, 13 :15–26, 1999.
- [80] J. Senée, B. Robillard, and M. Vignes-Adler. The zeta-potential of the endogenous particles of a wine of champagne in relation to the foaming behavior. *Colloids and surfaces B*, 21 :59–67, 2001.
- [81] H.K. Tsao and D. L. Koch. Observations of high reynolds number bubbles interacting with a rigid wall. *Phys. Fluid*, 9(1) :44–56, 1997.
- [82] R.P. Feynman. *Le cours de physique de Feynman, Electromagnétisme*. InterEditions, Paris, 1979.
- [83] C. Isenberg. *The science of soap films and soap bubbles*. Dover Publications, Inc., New York, 1992.
- [84] J.B.M.C. Meusnier. *Mémoire sur la courbure des surfaces*. PhD thesis, Mém. Mathém. Phys. Acad. Sci. Paris, Paris, 1785.
- [85] J.H. Hubbard and B.B Hubbard. *Vector Calculus, Linear Algebra, And Differential Forms. A unified Approach*. Prentice Hall, New Jersey, 1999.
- [86] E.W. Weisstein. *CRC Concise Encyclopedia of Mathematics*. CRC Press, London, New York, Washington D.C., 1999.
- [87] W.H. Press, S.A Teukolsky, W.T. Vetterling, and B.P. Flannery. *Numerical Recipes. The Art of Scientific Computing. 2nd Edition*. Cambridge University Press, Cambridge, 1992.
- [88] A. M. Golovin and M. F. Ivanov. Motion of a bubble in a viscous liquid. *J. Appl. Mech. Tech. Phys. (USSR)*, 12 :91–94, 1973.
- [89] G.K. Batchelor. *An Introduction to Fluid Mechanics*. Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1967.

