

Coalescence à 2 dimensions : expériences sur des films minces de copolymères et simulations numériques

L. Berger¹, V.A. Raghunathan¹, C. Launay¹, D. Ausserré^{1,a}, et Y. Gallot²

¹ Université du Maine, BP 535, 72017 Le Mans Cedex, France

² Institut Charles Sadron, 6 rue Boussingault, 67083 Strasbourg Cedex, France

Reçu : 17 mars 1997 / Révisé : 11 septembre 1997 / Accepté : 2 décembre 1997

Abstract. This paper presents on one hand the experimental study of the coalescence kinetics of two closed bidimensional fluid domains at the surface of a multilayered dibloc copolymer film, and on the other hand a numerical simulation of the same evolution. The latter is based on “diffusive” phenomenological equations which are surface conservative and which neglect the 2-dimensional viscosity of the layers. The successive shapes observed in the experiments and obtained from the simulation are very close. It would not be the case if the 2D viscosity was significant.

Résumé. Cet article présente d’une part l’étude expérimentale de la cinétique de coalescence de deux domaines fluides bidimensionnels fermés à la surface d’un film multicouche de copolymères diblocs, et d’autre part une simulation numérique de la même évolution. La simulation est construite sur la base d’équation phénoménologiques “diffusives” qui conservent la surface du nouveau domaine et qui négligent la viscosité bidimensionnelle des couches. Les formes successives obtenues dans les cinétiques réelle et simulée sont très proches, ce qui ne serait pas le cas si la viscosité bidimensionnelle était significative.

PACS. 47.20.Ma Interfacial instability – 68.10.Jy Kinetics (evaporation, adsorption, condensation, catalysis, *etc.*) – 68.15.+e Liquid thin films

1 Introduction

Les problèmes d’écoulements incompressibles dans des régions finies de l’espace à frontières mobiles interviennent dans des domaines très variés de la physique. Souvent, l’écoulement est piloté par la tension de la surface qui limite le domaine fluide dont la forme finale est sphérique. Cette situation se rencontre par exemple dans les procédés de frittage en phase fluide [1]. C’est dans ce cas la viscosité du fluide qui s’oppose à l’écoulement. Elle est très élevée en pratique, si bien que la description du phénomène se réduit à la résolution de l’équation de Stokes. Un autre exemple de situation physique où l’on trouve des écoulements similaires est fourni par l’évolution des formes de domaines dans les monocouches de Langmuir biphasiques à la surface de l’eau [2]. L’écoulement est alors surtout contrarié par la viscosité de l’eau drainée sous la monocouche. Dans ce second exemple, le problème devient bidimensionnel, et le moteur de l’écoulement est la tension de ligne du bord de domaine.

Nous nous intéressons ici à une situation très proche : la coalescence de domaines bicouches dans un film stratifié de copolymères diblocs. Elle conduit à la formation d’un nouveau domaine par fusion de deux domaines ini-

tialement distincts. La forme du nouveau domaine observée immédiatement après fusion est prise comme point de départ pour une simulation numérique de son évolution. Cette évolution simulée est ensuite comparée à l’évolution expérimentale effectivement observée.

La simulation s’appuie sur l’hypothèse d’une viscosité bidimensionnelle négligeable et obéit d’autre part à une contrainte de conservation de la surface totale du domaine assez bien vérifiée dans l’expérience et déterminante pour la cinétique. Les équations qui gouvernent les écoulements non visqueux à deux dimensions sont identiques à celles qui décrivent les écoulements tridimensionnels visqueux confinés dans des films d’épaisseur constante [3]. Elles devraient donc aussi rendre compte de l’évolution d’une goutte liquide non circulaire piégée entre deux plaques solides, telle celle qu’on pourrait obtenir par écrasement de deux gouttelettes voisines.

L’objectif du présent travail est d’apprécier le rôle de la viscosité bidimensionnelle dans nos systèmes en comparant les cinétiques expérimentale et simulée. La comparaison comporte deux aspects : il s’agit d’une part de comparer les formes successives observées dans les deux cinétiques et d’autre part de comparer les intervalles de temps qui séparent deux formes successives données, le deuxième aspect n’ayant de sens que lorsque les formes sont

^a e-mail: ausserre@aviion.univ-lemans.fr

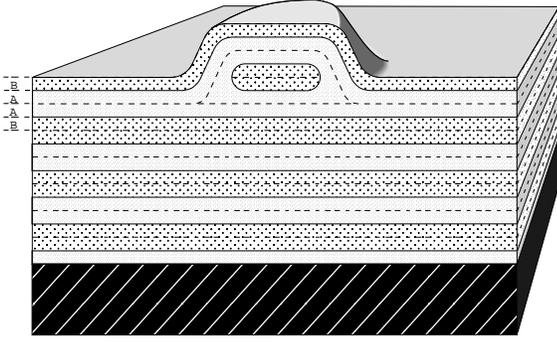


Fig. 1. Structure interne du film.
[Internal structure of the film.]

identiques. Nous allons montrer que l'accord obtenu entre expérience et simulation est excellent en ce qui concerne les formes, et confesser qu'il est moins bon en ce qui concerne les temps. Nous attribuerons cette faiblesse aux erreurs de calcul cumulées dans notre estimation itérative du temps numérique et nous nous appuyerons uniquement sur l'accord des formes pour conclure que la viscosité bidimensionnelle ne joue aucun rôle dans notre système. À cette fin, nous montrerons qu'une dissipation dominée par la viscosité bidimensionnelle conduirait à des formes de contours qualitativement différentes en comparant les cinétiques visqueuse et non visqueuse attendues pour un choix particulier de la forme initiale du domaine. La première sera extraite des travaux de Hopper [4], et la seconde sera fournie par notre simulation.

2 Partie expérimentale : évolution

Le copolymère [5] (AB) utilisé dans ces expériences est un dibloc polystyrène-polyméthylmétaacrylate symétrique de masse moléculaire $M_W = 92000$ g/mole. Ce copolymère est déposé en film mince sur un substrat de silicium par la technique du "spin coating". L'ensemble est recuit sous vide pendant une semaine à une température de 170°C . Un film préparé dans ces conditions présente un ordre lamellaire parallèle au substrat [6,7], ce qui conduit à la quantification de son épaisseur [8]. Celle-ci doit partout correspondre à un nombre entier n de monocouches AB de même parité. Pour ce copolymère et ce substrat, n est impair. Comme l'épaisseur moyenne du film est imposée par les conditions de préparation, elle ne correspond pas nécessairement à l'une de ces épaisseurs autorisées. Il en résulte une coexistence entre deux types de domaines, d'épaisseurs respectives n et $n + 2$ monocouches. Pour le film utilisé dans nos expériences, n vaut 7, et les régions les plus épaisses recouvrent environ 30 % de la surface. La structure interne du film est représentée sur la figure 1. Le raccordement entre les deux épaisseurs correspond à la présence d'un défaut dans la structure lamellaire. Nous l'avons représenté ici comme une simple dislocation, mais sa nature n'est pas certaine [9]. Ce qui compte ici est sa localisation au bord du domaine. Elle

se traduit par l'existence d'une tension de ligne qui privilégie les formes de domaines circulaires et les domaines les plus gros. La profondeur du défaut sous la surface libre est inconnue dans ce cas particulier, mais nous savons qu'elle est la même pour tous les domaines si le film est suffisamment recuit [10]. Les régions épaisses forment des îlots circulaires d'un diamètre moyen de quelques dizaines de microns après une semaine de recuit. Les plus larges d'entre eux grossissent très lentement avec le temps aux dépens des plus petits. Au cours de cette évolution, deux domaines voisins peuvent se retrouver au contact l'un de l'autre et fusionner pour n'en former qu'un seul, le nouveau domaine relaxant rapidement vers une forme circulaire. C'est ce mécanisme que nous appelons coalescence. Ce n'est pas le mécanisme prépondérant dans la cinétique de croissance : le mûrissement d'Ostwald y joue un rôle beaucoup plus important. Mais le but de la présente étude n'est pas d'affiner la description de la cinétique de croissance très interactive de toute la population des domaines, qui est très lente, mais au contraire d'exploiter les phénomènes de coalescence beaucoup plus rapides et surtout beaucoup plus locaux pour explorer les propriétés hydrodynamiques de l'empilement lamellaire. Les cinétiques sont suivies à l'aide d'une platine chauffante fonctionnant sous azote sec et installée sous un microscope optique en réflexion. Onze états successifs de la même région d'un film constituent une cinétique expérimentale. Elle s'étale sur une durée de 12 heures.

3 Équations de la simulation

Après fusion de deux gouttelettes, les écoulements de matière à l'intérieur du liquide (2D) résultent des écarts de courbure le long du contour. La courbure locale $1/R$ de l'interface détermine la pression locale Π (à 2D) du liquide en son voisinage, ce qui se traduit par la relation de Laplace :

$$\Pi - \Pi_0 = \tau/R \quad (1)$$

où Π_0 est la pression de référence à l'extérieur de la goutte, liée à son épaisseur L et à la pression atmosphérique P_a par $\Pi_0 = P_a L$, et où τ désigne la tension de ligne liquide-gaz (l'analogue bidimensionnel d'une tension interfaciale dans un espace à trois dimensions). Le courant \mathbf{j} en tout point de la goutte est lié à la densité ρ du liquide, à son épaisseur L , et à sa vitesse locale \mathbf{v} , par :

$$\mathbf{j} = \rho L \mathbf{v}. \quad (2)$$

Il dépend du gradient de pression local (le moteur) et de la nature de la dissipation (le frein). Faisant l'hypothèse que la friction intercouche est dominante par rapport à la friction intra-couche, \mathbf{j} s'écrit [11] :

$$\mathbf{j} = -\frac{\nabla \Pi}{\tilde{\eta}} \quad (3)$$

où $\tilde{\eta}$ est un coefficient de friction. Il a la dimension d'un coefficient de diffusion (ou d'un coefficient de friction solide).

Le liquide est incompressible et doit obéir à l'équation de conservation :

$$\nabla \cdot \mathbf{j} = 0. \quad (4)$$

La combinaison des équations (2) et (3) conduit à l'équation de Laplace :

$$\Delta H = 0. \quad (5)$$

Le temps Δt écoulé entre deux positions successives d'un point du contour se calcule par :

$$\Delta t = \int_{\text{trajectoire}} dt$$

avec :

$$\mathbf{v} dt = d\mathbf{r} \quad (6)$$

où la trajectoire infinitésimale $d\mathbf{r}$ est prise le long d'une ligne d'écoulement (trajectoire matérielle).

4 Exploitation quantitative des images

4.1 Numérisation des images

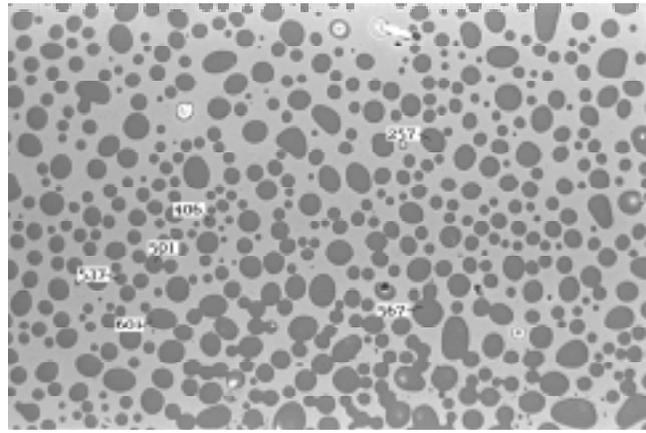
Les images sont numérisées à partir d'un négatif couleur par le procédé CD Kodak. Les images numériques contiennent 3096×2048 pixels en couleur codés chacun sur 3 octets correspondant aux intensités des trois couleurs de base (Rouge, Vert, et Bleu). Elles sont ensuite transformées en images monochromes par une moyenne en chaque pixel des trois octets. Les images noir et blanc obtenues sont codées sur 8 bits par pixel. Un exemple d'image ainsi numérisée est donné sur la figure 2a. Son histogramme, bimodal, est donné par la figure 2b.

4.2 Seuillage

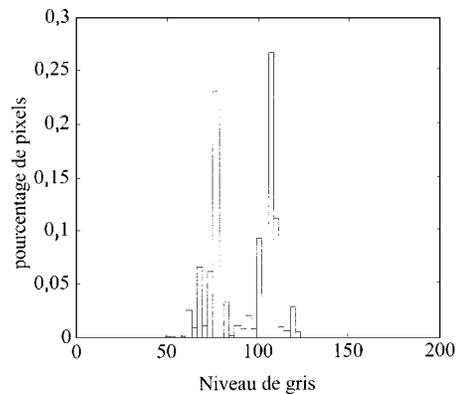
La reconnaissance de l'intérieur et de l'extérieur des domaines s'effectue par une technique de seuillage local. Cette méthode permet d'éliminer les artefacts dus à la non uniformité du fond, liés par exemple à l'éclairage du microscope. Le seuil choisi est le seuil optimal de Bayes effectué par maximisation de la variance interclasse [12]. Il correspond au col de l'histogramme. L'image seuillée est à deux niveaux de gris. À partir de ces images, on calcule aussi la surface et la position des centres de masse des îlots à chaque étape de la cinétique.

4.3 Description du contour

Le contour est obtenu sous la forme d'un ensemble ordonné 8-connexe [13] de N pixels voisins qu'on décrit par la suite $u(p) = x(p) + iy(p)$ de positions dans le plan complexe. L'indice p désigne le rang du pixel compté à partir



(a)



(b)

Fig. 2. a) Image numérisée de l'échantillon à $t = 0$ minute. b) Histogramme de l'image 2a.

[a) Digitized image of the sample at $t = 0$ minute. b) Histogram of image 2a.]

d'un point arbitraire du contour choisi comme origine. La suite est étendue à tous les entiers relatifs par la relation de périodisation :

$$u(p + N) = u(p).$$

Il est important de souligner que p n'est pas une abscisse curviligne.

Pour des raisons techniques liées à l'utilisation des algorithmes de la transformée de Fourier rapide, il est préférable de travailler avec $N = 2^n$ et n entier. Un suréchantillonnage du contour est donc effectué par une interpolation linéaire. Les points retenus ne sont pas équidistants. On obtient ainsi une suite complexe $z(p)$, où p appartient à $[-N/2, N/2 - 1]$. N vaut typiquement 512. Chaque terme

de la suite peut s'écrire comme une série de Fourier :

$$z(p) = \sum_{n=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}-1} z_n e^{j\frac{2\pi pn}{N}}. \quad (7)$$

Les N coefficients complexes z_n sont les descripteurs de Fourier du contour [14]. Ils se calculent par la relation :

$$z_n = \sum_{p=-\frac{N}{2}}^{\frac{N}{2}-1} z(p) e^{-j\frac{2\pi pn}{N}}. \quad (8)$$

Le coefficient z_0 donne la position du centre de masse.

4.4 Lissage

On lisse $z(p)$ en l'approximant par la suite tronquée :

$$v(p) = \sum_{n=-\frac{M}{2}}^{\frac{M}{2}-1} z_n e^{\frac{2\pi jpn}{N}} \quad (9)$$

où M est déterminé par une condition sur la quantité $d(M) = \max_p |v(p) - z(p)|$ exprimée en pixels. Cette fonction détermine la distance maximale tolérée localement entre les courbes initiale et lissée : M est le plus petit entier pour lequel $d(M) < S$, S étant un seuil arbitraire exprimé en pixels. S est de l'ordre de 1, ce qui correspond aux précisions de la numérisation et du seuillage. Le passage de $z(p)$ à $v(p)$ correspond à l'action d'un filtre passe-bas. M vaut typiquement quelques dizaines. La troncation ne conserve pas tout à fait la surface.

Le rayon de courbure $1/R$ est calculé en chaque point du contour à partir de la série (Éq. (9)) en traitant p comme une variable continue.

5 Évolution numérique

5.1 Résolution de l'équation de Laplace

On résout ensuite l'équation de Laplace (5) sur l'intérieur du domaine avec la condition aux limites (1) sur le bord par la méthode SOR (simultaneous over-relaxation) [13]. Le contour étant défini à une échelle bien supérieure aux pixels, on effectue des interpolations linéaires pour y calculer les dérivées utiles. Ces approximations sont détaillées dans l'annexe A.

5.2 Déplacement du contour

La vitesse \mathbf{v} en chaque point du domaine est estimée à un facteur constant près à partir du profil de pression en utilisant l'équation aux différences:

$$\mathbf{v} = \frac{\tilde{u}_{i+1,j} - \tilde{u}_{i-1,j}}{2h} \mathbf{x} + \frac{\tilde{u}_{i,j+1} - \tilde{u}_{i,j-1}}{2k} \mathbf{y} \quad (10)$$

avec les mêmes notations que dans l'annexe A, et où \mathbf{x} et \mathbf{y} désignent les vecteurs unitaires dans les deux directions principales du maillage. Sa valeur en un point du contour est estimée en prenant la moyenne des vitesses des plus proches voisins.

5.3 Déformation du contour

Pendant l'intervalle de temps élémentaire dt , chaque point du contour se déplace dans la direction du gradient de pression d'une quantité $d\mathbf{r} = \mathbf{v}dt$ proportionnelle à la vitesse locale \mathbf{v} du fluide. Quelque part le long du contour, ce déplacement prend la valeur maximum $d\mathbf{r}_M = \mathbf{v}_M dt$. À chaque itération i , on fixe le module de ce déplacement maximum à une valeur fixe dx de l'ordre de 0,2 pixel. L'intervalle de temps associé à l'itération i est donc variable. Il est donné par : $dt(i) = dx/v_M(i)$, v_M désignant un module. La durée Δt qui sépare deux états éloignés du contour est donc :

$$\Delta t = dx \sum_i 1/v_M(i) \quad (11)$$

la somme s'effectuant sur toutes les itérations nécessaires pour passer d'un état à l'autre.

La troncation (9) et le déplacement obtenu à chaque itération peuvent modifier la surface inscrite dans le contour d'une fraction qui n'excède jamais un millième. Cette variation est éliminée en effectuant une homothétie à partir du centre de gravité du domaine. Si la simulation décrit convenablement l'écoulement, le temps numérique calculé par la relation (11) doit être proportionnel au temps réel. Le coefficient de proportionnalité entre les deux temps fait intervenir les caractéristiques constitutives du matériau. Dans cette étude nous ne nous intéressons pas à ce coefficient. Seule la proportionnalité compte.

6 Résultats et discussion

6.1 Résultats

La figure 3 représente la même portion de l'échantillon (d'environ 0.40×0.27 mm) que la figure 2a après un recuit supplémentaire de 710 minutes. De nombreuses coalescences se sont produites, impliquant parfois plus de deux domaines, ce qui conduit à des îlots de formes complexes. La surface des domaines varie très lentement avec le temps, d'environ 14 % sur 12 heures. Cette dérive traduit un réajustement de la période lamellaire du système, probablement du aux écarts de température et de pression entre l'étuve utilisée pour le recuit initial et la platine chauffante utilisée pour l'étude de la cinétique [16]. La dérive est corrigée par une renormalisation numérique des contours au moyen d'une homothétie effectuée à partir des centres de gravité des domaines.

La figure 4 présente la superposition de deux cinétiques issues d'un même domaine initial, indexé 257 sur la figure 2a. Il correspond à la situation obtenue immédiatement

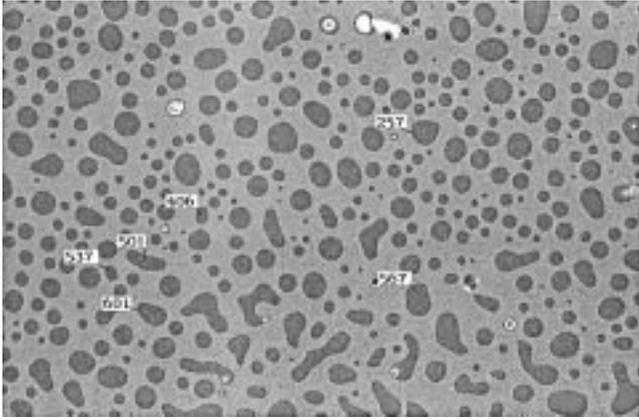


Fig. 3. Image numérisée de la même portion de l'échantillon qu'en 2a pour $t = 710$ minutes.

[Digitized image of the same portion of the sample than in 2a for $t = 710$ minutes.]

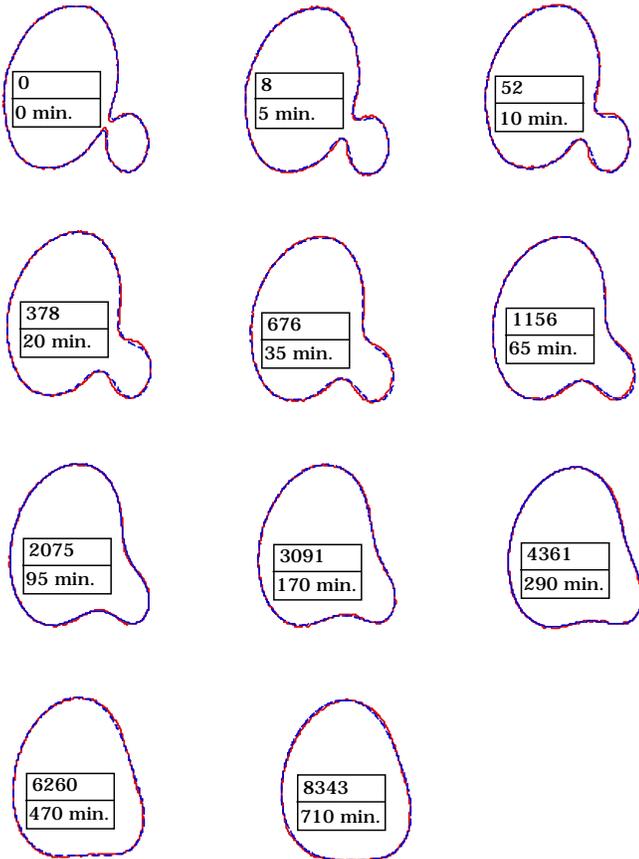


Fig. 4. Évolution temporelle d'un contour (référence 257). Le temps numérique est inscrit dans l'encart supérieur et le temps réel dans l'encart inférieur.

[Temporal evolution of a contour (reference 257). Numerical time is written in the upper box, real time in the lower box.]

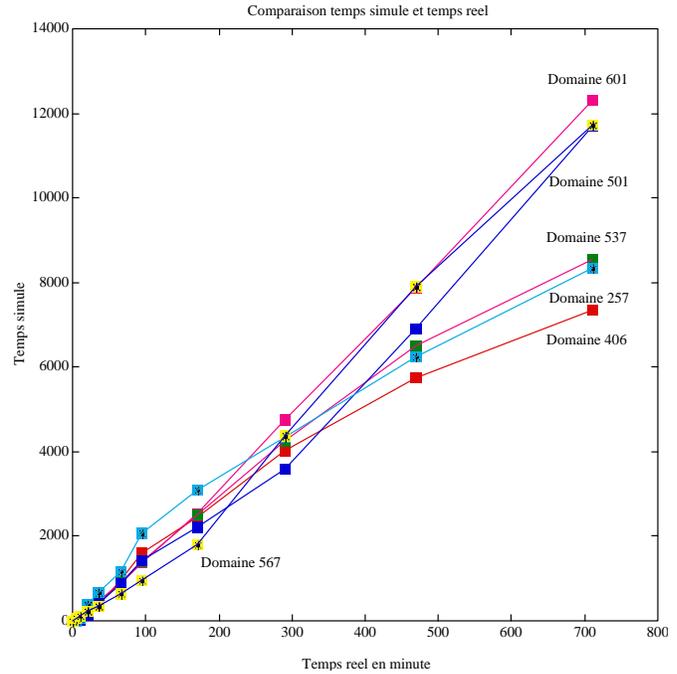


Fig. 5. Variation du temps numérique avec le temps réel pour différents domaines.

[Numerical time *versus* real time for different domains of the sample.]

après la fusion de deux îlots. La première cinétique est expérimentale. Les temps correspondant aux formes sont notés dans la partie inférieure des encarts. La deuxième cinétique correspond à une évolution simulée à partir du même contour initial en utilisant la procédure présentée plus haut. Parmi toutes les formes successives obtenues dans l'évolution simulée, le contour le plus proche de chaque contour expérimental est sélectionné et lui est superposé sur la figure. La technique utilisée pour cet appariement est présentée dans l'annexe B. Le temps numérique correspondant est affiché dans la partie supérieure de l'encart. Son unité est arbitraire.

L'accord entre les formes observées et simulées est excellent, au point qu'il est difficile de détecter l'existence de deux contours superposés sur chaque étape de la figure 4. Ceci reste vrai pour les temps longs, c'est-à-dire les derniers stades de l'évolution. Cette similitude entre les formes observées et simulées de la figure 4 est vérifiée pour n'importe quel domaine de la figure 2, y compris pour les objets compliqués résultant de la coalescence de trois domaines ou davantage.

La figure 5 représente les variations d'un temps numérique en fonction d'un temps réel pour chacun des domaines indexés sur la figure 3. Le temps réel est l'âge du domaine observé expérimentalement. Il est compté à partir du début de la cinétique. À chaque âge est donc associée une forme du domaine. Le temps numérique porté en ordonnée est l'âge du domaine qui lui est apparié dans l'évolution simulée. Les deux temps devraient rester proportionnels, et ce n'est pas le cas. La proportionnalité entre les deux temps n'est jamais vérifiée de façon très satisfaisante. De plus, le signe même de la courbure du

graphe varie d'un domaine à l'autre. L'écart à la proportionnalité n'a donc aucun caractère systématique. C'est pourquoi nous attribuons son origine à l'incertitude sur l'estimation du temps numérique. Si nous nous souvenons que ce temps numérique est estimé par cumul dans un algorithme itératif (Eq. (11)), il n'est pas surprenant de constater une erreur cumulée de l'ordre de 30 % en fin de cinétique.

Cette discussion permet de bien souligner l'existence de deux degrés de difficulté très différents dans les simulations : l'accord des formes et l'accord des temps.

À ce stade, nous concluons que notre simulation basée sur les équations présentées dans la partie 3 est capable de prédire les formes successives effectivement observées dans une cinétique mais pas les temps auxquels elles apparaissent.

6.2 Discussion

Il nous faut maintenant apprécier dans quelle mesure l'accord entre les formes réelles et simulées nous renseigne sur les propriétés hydrodynamiques de notre système, c'est-à-dire dans quelle mesure les formes générées par la simulation sont sensibles à notre hypothèse majeure de viscosité bidimensionnelle négligeable. Nous devons donc nous poser la question suivante : Si nos systèmes étaient gouvernés par d'autres équations que celles utilisées pour la simulation, les formes observées dans les cinétiques expérimentales seraient-elles différentes, ou bien possèdent-elles au contraire un caractère plus universel ? Pour répondre cette question, nous pouvons comparer les évolutions obtenues à partir d'un même objet par une cinétique visqueuse et par une cinétique non visqueuse. Nous ne sommes pas capables aujourd'hui de simuler les cinétiques dominées par une viscosité bidimensionnelle, mais nous pouvons utiliser les résultats analytiques obtenus par Hopper [4] pour des formes particulières; il s'agit de lemniscates de Booth décrites sous la forme polaire (R, β) par l'expression :

$$R^2(t) = \frac{A}{\pi}(1 - m(t) \cos 2\beta) \quad (12)$$

paramétrée par la fonction réelle du temps $m(t)$, qui décroît de 1 à 0. Cette famille est stationnaire par un écoulement purement visqueux piloté par la tension de ligne. La cinétique visqueuse est donc complètement décrite par la fonction scalaire $m(t)$, que l'on sait calculer numériquement [4].

Partant de l'une des courbes de cette famille, notre simulation nous permet d'autre part d'en décrire l'évolution par un écoulement non visqueux. Sur la figure 6, des formes extraites de la cinétique visqueuse sont comparées aux formes les plus proches de la cinétique non visqueuse (au sens de la distance définie dans l'annexe B). Un simple examen visuel montre que ces formes sont qualitativement différentes, les écarts les plus importants se trouvant fort logiquement dans les régions les plus courbées du contour.

Ce contre-exemple suffit à démontrer que les formes obtenues par les cinétiques visqueuse et non visqueuse en

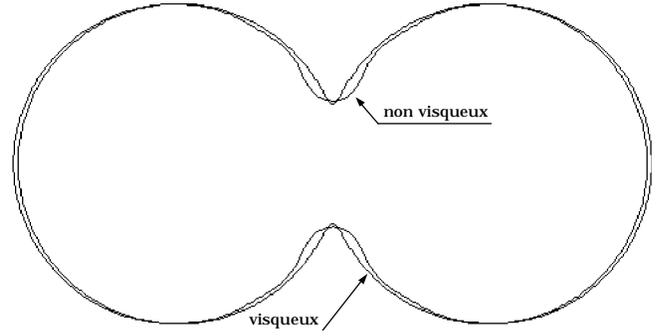


Fig. 6. Domaines obtenus à partir d'un même contour par une cinétique visqueuse et une cinétique non visqueuse.

[Domains obtained from a same initial contour by a viscous kinetics and by a non viscous kinetics.]

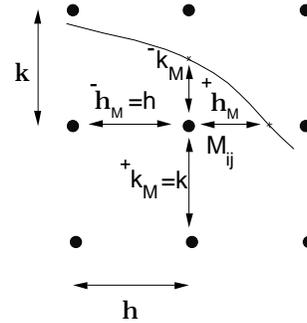


Fig. 7. Maillage pour la discrétisation de l'équation de Laplace.

[Lattice for discretization of Laplace equation.]

partant d'un même domaine initial ne sont pas universelles. Puisqu'elles dépendent des équations utilisées pour calculer l'évolution du contour, l'excellent accord constaté dans ce travail entre les formes réelles et simulées pour un grand nombre de domaines nous conduit à adopter les équations présentées dans la partie 3 pour décrire le comportement de notre système.

7 Conclusion

Cette étude nous a permis de valider une description phénoménologique des écoulements qui gouvernent la relaxation des formes des domaines présents à la surface des films de copolymères diblocs, dans le cas où ces domaines sont des îlots. L'évolution de ces domaines bidimensionnels fermés (gouttes à 2D) est quasistationnaire et très bien décrite par les équations diffusives proposées arbitrairement dans la référence [8].

Les outils numériques que nous avons développés nous permettent maintenant de prévoir de façon précise l'évolution géométrique d'une forme de domaine arbitraire, et d'en prédire de façon plus approximative la cinétique. Ce travail prépare des développements ultérieurs, parmi lesquels :

- une description phénoménologique analogue de la relaxation de domaines ouverts (bulles 2D) ;

- une étude des écoulements multicouches dans les liquides stratifiés, présents en particulier dans les phénomènes de mouillage et de démouillage de cristaux liquides et de polymères. Dans le cas des copolymères diblocs, cette étude était jusqu'alors freinée sur le plan expérimental par la méconnaissance des écoulements "intracouche" ;
- une description à l'échelle moléculaire des mécanismes qui sous-tendent les comportements hydrodynamiques constatés à l'échelle macroscopique et rapportés dans le présent article ;
- la recherche de systèmes gouvernés par une dissipation intracouche visqueuse. Dans le cas des copolymères, ces situations pourraient se rencontrer avec des chaînes plus longues. Nous savons maintenant que l'observation qualitative de l'évolution des parties très courbées d'un contour permettra de les reconnaître.

Annexe A : Discrétisation de l'équation de Laplace

Soit un domaine fermé W , nous cherchons une fonction u vérifiant l'équation de Laplace :

$$\Delta u = 0.$$

Dans la discrétisation de l'équation de Laplace nous cherchons l'inconnue u aux points M_{ij} du maillage (Fig. 7) :

$$u(M_{ij}) = \tilde{u}_{ij}.$$

Lorsque les pas de la grille sont h et k selon les directions x et y , nous obtenons l'équation aux différences finies pour l'opérateur Δ :

$$\frac{\tilde{u}_{i+1,j} - 2\tilde{u}_{i,j} + \tilde{u}_{i-1,j}}{h^2} + \frac{\tilde{u}_{i,j+1} - 2\tilde{u}_{i,j} + \tilde{u}_{i,j-1}}{k^2} = 0. \quad (\text{A.1})$$

Pour l'ensemble des points situés à l'intérieur du domaine et non voisin de la frontière, nous utilisons l'équation (A.1). Pour les points voisins de la frontière nous utilisons l'équation aux différences suivante :

$$\frac{\frac{\tilde{u}_{i+1,j} - \tilde{u}_{i,j}}{+h_M} - \frac{\tilde{u}_{i,j} - \tilde{u}_{i-1,j}}{-h_M}}{+h_M + -h_M} + \frac{\frac{\tilde{u}_{i,j+1} - \tilde{u}_{i,j}}{+k_M} - \frac{\tilde{u}_{i,j} - \tilde{u}_{i,j-1}}{-k_M}}{+k_M + -k_M} = 0. \quad (\text{A.2})$$

Annexe B

La mesure de proximité de deux contours décrits par leurs descripteurs de Fourier $\{z_n^{(1)}\}$ et $\{z_n^{(2)}\}$ nécessite l'introduction d'une distance d définie comme [8] :

$$d(\{z_n^{(1)}\}, \{z_n^{(2)}\}) = \left(\sum_{n=-N/2}^{n=N/2-1} |z_n^{(1)} - z_n^{(2)}|^2 \right)^{1/2}.$$

La comparaison des deux contours exige la superposition de leurs centres de masse. On l'obtient en imposant $z_0^{(1)} = z_0^{(2)}$. Elle doit aussi prendre en compte une possible rotation relative Φ des domaines comparés et un possible décalage des origines $v^{(1)}(0)$ et $v^{(2)}(0)$ des deux contours. L'appariement s'effectue donc en minimisant la quantité :

$$d_1(\{z_n^{(1)}\}, \{z_n^{(2)}\}) = \left(\sum_{n=-N/2}^{n=N/2-1} |z_n^{(1)} - e^{j(n\phi_0 + \phi)} z_n^{(2)}|^2 \right)^{1/2}.$$

Si les deux formes comparées n'ont pas même surface, une homothétie de rapport s est directement introduite dans la comparaison en minimisant la quantité :

$$d_2(\{z_n^{(1)}\}, \{z_n^{(2)}\}) = \left(\sum_{n=-N/2}^{n=N/2-1} |z_n^{(1)} - s e^{j(n\phi_0 + \phi)} z_n^{(2)}|^2 \right)^{1/2}$$

par rapport à s , Φ et Φ_0 . Les deux contours correspondant au minimum de d_2 sont dits "appariés".

Bibliographie

1. D. Bouvard, G. Cizeron, La Recherche, 1144 (1994).
2. E. Mann, S. Hénon, D. Langevin, J. Meunier, J. Phys. II France **2**, 1693 (1992).
3. G. Stokes, Brit. Ass. Rep. 143 (1898) [Papers v 278].
4. R. W. Hopper, J. Fluid Mech. **213**, 349-375 (1990).
5. A. Skoulios, in *Block and Graft Copolymers*, edited by J.J. Burke and V. Weiss (Syracuse University Press, Syracuse, New-York, 1973).
6. G. Krausch, Polym. Prep., ACS Polym. Div. **30**, 366 (1989).
7. T.P. Russell, Mater. Sci. Rep. **5**, 171 (1990).
8. G. Coulon, D. Ausserré, T. Russell, Polym. Prep., ACS Polym. Div. **30**, 366 (1989).
9. B.L. Carvalho, E.L. Thomas, Phys. Rev. Lett. **73**, 3321-3324 (1994).
10. M. Maaloum, D. Ausserré, D. Chatenay, Y. Gallot, Phys. Rev. Lett. **70**, 2577-2580 (1993).
11. D. Ausserré, D. Chatenay, G. Coulon, B. Collin, J. Phys. France **51**, 2571-2580 (1990).
12. M. Coster, J.L. Chermant, *Précis d'analyse d'images* (Presses du CNRS, 1989).
13. J.M. Chassery, A. Montanvert, *Géométrie discrète en analyse d'images, Traité des nouvelles technologies* (Hermès, Paris, 1991).
14. E. Persoon, King-Su Fu, IEEE Transactions on Systems, Man, Cybernetics, SMC-**7**, 170-178 (1977).
15. W.H. Press, B.P. Flannery, S.A. Teukalsky, W.T. Vetterling, *Numerical Recipes in C* (Cambridge University Press, 1988).
16. N. Singh, A. Kudrle, M. Sikka, F. Bates, J. Phys. II France **5**, 377 (1995).