



AVERTISSEMENT

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

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

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

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

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

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

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

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

**École Doctorale n° 608 : Sciences et Ingénierie des
Molécules, des Produits, des Procédés et de l'énergie
(SIMPPÉ)**

THÈSE

Présentée pour l'obtention du grade de DOCTEUR
DE L'UNIVERSITE DE LORRAINE

par

Mehdi STITI

**Modélisation et développement de diagnostics optiques
pour la caractérisation de gouttes surfondues en
écoulement ou en interaction avec un substrat sous-
refroidi**

Spécialité : Mécanique et Énergétique

Soutenue le 10 Novembre 2020 devant un jury composé de :

Rapporteur	Anne-Laure Bianco	DR CNRS, HDR, ILM, Lyon
Rapporteur	Cameron Tropea	Professor, TU, Darmstadt
Examineur	Frédéric Grisch	Professeur, INSA, Rouen
Examineur	Christophe Josserand	Professeur, Ecole Polytechnique, Paris
Examineur	Claire Laurent	Ingénieur de recherche, ONERA, Toulouse
Examineur	Rosaria Vetrano	Associate Professor, KU Leuven
Directeur de thèse	Fabrice Lemoine	Professeur, Université de Lorraine, Nancy
Co-directeur de thèse	Alexandre Labergue	Maître de Conférences, HDR, Université de lorraine, Nancy
Invité	Guillaume Castanet	CR CNRS, HDR, LEMTA, Nancy
Invité	Franck Hervy	Ingénieur de recherche, DGA, Paris

Remerciements

Je tiens en premier lieu à remercier Fabrice Lemoine, mon directeur de thèse, pour la confiance qu'il m'a accordé et l'aide qu'il m'a apporté tout au long de ces trois années. Malgré un emploi du temps plus que chargé, il s'est toujours montré disponible lorsque je le sollicitais. Je le remercie enfin pour la relecture attentive de ce manuscrit et ses conseils avisés qui m'ont permis de conclure ce manuscrit.

Je tiens maintenant à remercier mon Co-Directeur de thèse, Alexandre Labergue, sans qui tout ce travail n'aurait certainement pas vu le jour. Tu as commencé à m'encadrer tout d'abord comme étudiant à L'ENSEM puis nous avons eu la chance de travailler ensemble durant mon projet de fin d'étude. Tu as ensuite accepté de me supporter plus longtemps en stage de fin d'étude pour enfin accepter de m'encadrer durant ma thèse. Je tiens donc tout d'abord à te remercier pour ta confiance. Tu as su m'aider durant toute ma thèse sur la mise en place des expériences, leurs réalisations ou encore la rédaction des articles et de ce manuscrit. Je tiens à souligner le fait que tu étais l'un des rares maîtres de conférences qui arrivait à trouver du temps pour faire des manips. Tous ces travaux n'auraient donc jamais pu être possible sans toute ton aide, merci. Au-delà de nos relations professionnelles, nous avons pu passer de très bon moments en dehors du travail, pour aller au restaurant, au foot ou encore pour discuter de tout et n'importe quoi. J'espère avoir l'occasion de travailler de nouveau avec toi dans l'avenir et de se revoir en conférence, à Nancy ou ailleurs.

Je tiens maintenant à remercier Guillaume Castanet, sans qui une grande partie de ce travail n'aurait pas été possible. Nous avons eu la chance de pouvoir travailler ensemble sur l'étude de l'impact bien que cela n'était pas directement prévu. J'ai eu la chance d'apprendre auprès de toi un grand nombre de choses, mais surtout, je pense que tu as réussi à me transmettre ton envie de savoir. Cela doit faire maintenant presque 2 ans que nous travaillons activement ensemble, nous en avons passé des soirées complètes en salle de manips ou encore au téléphone à travailler ou juste discuter. J'ai dû te rendre complètement fou avec mes appels ou encore mes passages dans ton bureau (parfois plus de 10 fois dans la même journée). Merci donc pour toutes les compétences que tu as pu me transmettre et pour tous les moments hors du travail que nous avons passé ensemble.

Merci à Anne-Laure Biance et Cameron Tropea, rapporteurs de cette thèse, pour le temps qu'ils m'ont accordé et leurs remarques constructives, ainsi qu'aux autres membres du jury, Frédéric Grisch, Christophe Josserand, Claire Laurent, Rosaria Vetrano et Franck Hervy, pour les échanges enrichissants qui ont eu lieu lors de la soutenance.

Je souhaite remercier également tous les membres du LEMTA pour leur accueil et les échanges toujours amicaux et souvent éclairants que j'ai pu entretenir avec eux. Je souhaite également remercier Nicolas Louvet et Sebastien Kiesgen de Richter pour mon stage de M1 que j'ai réalisé avec eux et qui m'a donné le goût à la recherche.

Un grand merci à tous les membres de l'équipe, Ophélie, Michel, Nicolas, Romain, Yang-peng, Alexandre, Juan et Arthur pour leur aide et les bons moments que j'ai pu passer à leurs côtés. Merci à Sébastien et Didier pour leurs aides lors des expériences en IRMN. Je souhaiterais particulièrement adresser des remerciements à toute l'équipe technique sans qui les manips n'auraient jamais pu exister. Je remercie donc Éric, Pascal et Franck

pour leur disponibilité, Mathieu et Jamel pour leur expertise dans le domaine de l'électronique, Simon pour la réalisation de tous les softs sans qui les mesures auraient été impossible et Hadrien pour tous les conseils dans le domaine de l'optique, Sébastien Jérémy et Jean-Yves Morel pour leurs conceptions mécaniques, toujours irréprochables. Merci aussi à Irène, Valérie, Laura et Rachida pour leurs aides inestimable face aux méandres administratifs.

Un remerciement tous particulier à tous les doctorants que j'ai eu la chance de côtoyer durant ma thèse, Romain, Mylène, Axel, Juan, Julian, Salah, Justine. Un grand merci à Anas d'avoir fait en sorte que cette thèse soit plus supportable malgré quelques carottes. Un grand merci aussi à tous mes animales pour m'avoir permis de m'échapper du quotidien de doctorant, Mehdi, Boris, Marion, Keshav, Vincent, Renato et Laetitia. Un merci tout particulier à Lucas venu tout droit d'Istanbul pour tous les moments passés durant ces trois années, j'ai l'impression de te connaître depuis beaucoup plus longtemps que cela. Je suis sûr que l'on va continuer de se voir pendant encore longtemps, prépare moi déjà une chambre en Corse :).

Je souhaite maintenant remercier toute ma famille pour leur soutien. Je pense particulièrement à mes oncles et mes tantes, Malika, Akila, Hedi, Samira, Mourad, Khaled, Sabrina et Kamel mon « oncle » de trois ans d'écart. Un remerciement tout particulier à mes deux sœurs Ines et Linda de m'avoir supporté dans ma folie et mes absences du fait de la thèse. Je souhaite remercier tout particulièrement mes parents de m'avoir soutenu durant toutes mes années d'études et d'avoir faits en sorte que je ne manque de rien et de m'avoir poussé à toujours persévérer, même quand la motivation venait à manquer.

Enfin, mes derniers mots iront à ma femme Sabah, qui a partagé ma vie pendant ces années et depuis maintenant plus de dix ans. Merci de m'avoir toujours soutenu et ce même quand la motivation venait à manquer , tu m'as apporté un bonheur au quotidien sans faille et tu as su supporter toutes mes humeurs. Merci encore à toi ma femme et ma meilleure amie.

Table des matières

Table des matières	V
Liste des figures	XIII
1 Introduction	1
1.1 Contexte	2
1.1.1 Conditions aéronautiques givrante dans le secteur aérien	2
1.1.2 Réglementation aérienne	4
1.1.3 Certification en conditions aéronautiques givrantes	5
1.1.3.1 Essais au sol	6
1.1.3.2 Essais en vol	7
1.2 Objectifs de la thèse	8
1.3 Références	9
2 État de l'art	11
2.1 Aspects théoriques du givrage	12
2.1.1 Le phénomène de surfusion	12
2.1.2 La nucléation	12
2.1.2.1 La nucléation homogène	12
2.1.2.2 La nucléation hétérogène	14
2.1.2.3 Modèle statistique	16
2.1.2.4 Modèle de nucléation singulière	19
2.1.3 La solidification de l'eau	21
2.1.3.1 La recalescence	22
2.1.3.2 Le modèle de Stefan	23
2.1.3.3 Effet de la différence de densité	27
2.1.4 Impact de gouttes sur un substrat solide	31
2.1.4.1 Impact d'une goutte sur une paroi isotherme	31
2.1.4.2 Impact sur une paroi sous-refroidie	32
2.2 Diagnostics non-intrusifs appliqués à la caractérisation du givrage	38
2.2.1 Mesure de température	39
2.2.1.1 Thermographie infrarouge	39
2.2.1.2 Technique d'Arc-En-Ciel (AEC)	39
2.2.1.3 La spectroscopie Raman	42
2.2.2 Caractérisation du changement de phase	43
2.2.2.1 Technique d'imagerie interférométrique en défaut de mise au point (ILIDS)	43
2.2.2.2 Spectroscopie par Imagerie de Résonance Nucléaire (IRMN)	44
2.3 Références	46

3	Caractérisation de gouttes surfondues par fluorescence induite par laser	53
3.1	Thermométrie par Fluorescence Induite par Laser	55
3.1.1	Le phénomène de fluorescence	55
3.1.2	Modèle à deux niveaux	56
3.1.3	Absorption et réabsorption	59
3.1.4	Dépendance en température d'un colorant fluorescent dissout dans un liquide	60
3.2	Développement d'une chaîne LIF pour la caractérisation d'eau à température négative	61
3.2.1	Caractérisation des traceurs fluorescents	61
3.2.2	Technique à un seul colorant et une couleur - LIF1c1d	63
3.2.3	Technique à un seul colorant et deux couleurs - LIF2c1d	64
3.2.4	Méthode à deux couleurs et deux colorants - LIF2c2d	64
3.2.5	Mélange développée pour l'eau surfondue	66
3.2.6	Montage optique de la chaîne LIF2c2d	68
3.3	Calibration en température	70
3.4	Étude du signal LIF en milieu diphasique (liquide/glace)	72
3.5	Calibration du rapport R_{31} en fonction de la fraction de glace dans un mélange d'eau liquide/glace	75
3.5.1	Étude de la variation de volume de l'eau en cours de solidification par LIF	75
3.5.1.1	Caractérisation de la fraction de glace par spectrométrie Raman	78
3.5.2	Mesures de la fraction de glace par Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire (IRMN)	80
3.5.2.1	Principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire	80
3.5.2.2	Dispositif de mesure par IRMN	82
3.5.3	Calibration du signal de fluorescence à l'aide des mesures IRMN	85
3.6	Influence des traceurs sur les propriétés physiques de l'eau en surfusion	86
3.6.1	Influence sur les propriétés physiques de l'eau	86
3.6.2	Influence des traceurs sur la température de solidification de l'eau en situation de surfusion	87
3.7	Effet de la taille des gouttes sur le signal de fluorescence	90
3.8	Conclusion du chapitre	93
3.9	Références	93
4	Caractérisation de gouttes surfondues en écoulement	97
4.1	Conditions givrantes à faible vitesse d'écoulement	98
4.1.1	Dispositifs expérimentaux	98
4.1.1.1	Génération de l'environnement froid	99
4.1.1.2	Génération des gouttes	100
4.1.1.3	Dispositif de mesure de LIF	101
4.1.2	Modélisation des transferts	102
4.1.2.1	Cas de la goutte isolée	103
4.1.2.2	Cas du train de gouttes monodispersées	105
4.1.3	Mesure de température	105
4.1.3.1	Traitement du signal de fluorescence	105
4.1.3.2	Résultats expérimentaux sur le jet de gouttes monodispersées	107
4.1.4	Estimation de la fraction de glace	111

4.1.4.1	Convergence statistique du rapport R_{31}	112
4.1.4.2	Détermination des gouttes liquides	112
4.1.4.3	Détermination des gouttes solides	114
4.1.4.4	Estimation de la fraction de glace dans les gouttes mixtes	115
4.2	Mesures dans des conditions givrantes proches de l'environnement aéronautique réel	117
4.2.1	Dispositif expérimental : le Petit Anneau Givrant (PAG)	117
4.2.2	Mesure de la température des gouttes	119
4.2.2.1	Influence de la température de l'écoulement d'air	119
4.2.2.2	Influence de la vitesse de l'air	120
4.2.2.3	Influence de l'hygrométrie de l'air dans la veine d'essais	121
4.2.2.4	Influence de la teneur en eau (LWC) et du DVM	122
4.2.3	Étude d'un cycle de givrage	123
4.3	Conclusion du chapitre	125
4.4	Références	125
5	Solidification d'une goutte impactant une paroi sous-refroidie	127
5.1	Dispositif expérimental	129
5.1.1	Impact de gouttes sur paroi sous-refroidie	129
5.1.2	Montage optique	130
5.1.3	Contrôle de l'humidité	132
5.2	Caractérisation dynamique de la morphologie du front de glace par PLIF rapide	133
5.2.1	Mesure de l'épaisseur liquide	134
5.2.2	Traitement des images	135
5.2.3	Reconstruction du front de glace	137
5.3	Étude de la solidification d'une goutte sans phénomène de surfusion	138
5.3.1	Modélisation de la solidification d'une goutte	139
5.3.1.1	Le problème de Stefan 1D à deux phases	139
5.3.1.2	Simulation numérique du problème de solidification à deux dimensions	140
5.3.1.3	Couplage thermique entre le substrat et la goutte	143
5.3.2	Solidification d'une goutte impactant un substrat de conductivité thermique élevée	145
5.3.3	Solidification d'une goutte impactant une paroi de faible conductivité thermique	150
5.3.4	Étude de la formation de la pointe	152
5.4	Étude de la solidification d'une goutte avec phénomène de surfusion	154
5.4.1	Modélisation de la solidification	154
5.4.1.1	Solidification d'un liquide complètement surfondu avant solidification	155
5.4.1.2	Solidification d'un liquide partiellement surfondu	160
5.4.2	Solidification d'une goutte impactant une paroi en Duraluminium	164
5.4.2.1	Comparaisons des temps de solidification expérimentaux et numérique	164
5.4.2.2	Dynamique du front de solidification	165
5.4.2.3	Étude de la formation de la pointe	167
5.5	Conclusions du chapitre	168
5.6	Références	170

6 Conclusions et perspectives	173
6.1 Conclusions	173
6.1.1 Développement d'une chaîne de Fluorescence Induite par Laser appliquée à l'eau surfondue	173
6.1.2 Caractérisation de gouttes surfondues en écoulement	174
6.1.3 Solidification d'une goutte impactant une paroi sous-refroidie	174
6.2 Perspectives	175
6.2.1 Diagnostics optiques	175
6.2.2 Caractérisation de gouttes en écoulement	176
6.2.3 Influence de la nature du substrat sur la solidification d'une goutte impactant sur un substrat sous-refroidi	177
6.2.4 Modélisation de la solidification d'une goutte impactant un substrat sous-refroidi	177
6.3 Références	177

Nomenclature

Symboles Latins

\dot{m}	flux massique	[kg.s ⁻¹]
A	Surface	[m ²]
A_M	Aimantation macroscopique	[A.m ⁻¹]
A_{21}	Taux de désactivation de l'état 2 vers 1	[s ⁻¹]
B	Champ magnétique	[kg.s ⁻² .A ⁻¹]
B_M	Nombre de Spalding massique	[-]
B_T	Nombre de Spalding thermique	[-]
b_{12}	Taux de transition de l'état 1 vers 2	[s ⁻¹]
C	Paramètre de distance	[-]
c	Concentration	[mol.L ⁻¹]
C_λ	Facteur de conversion	[S.I]
C_p	Capacité thermique	[J.K ⁻¹]
D	Diffusivité thermique	[m ² .s ⁻¹]
d	Diamètre	[m]
D_m	Diamètre membrane	[m]
DVM	Diamètre Volumique Moyen	[m]
e	Effusivité thermique	[J.K ⁻¹ .m ⁻² .s ^{-0.5}]
E_x	Coefficient de dilatation thermique	[K ⁻¹]
F	Fréquence	[Hz]
f	focal	[m]
h	Hauteur	[m]
H_r	Humidité relative	[%]
I	Intensité signal	[W]
I_0	Intensité laser initiale	[W]
I_f	Intensité de fluorescence	[W]
I_λ	Intensité à la longueur d'onde λ	[W]

I_{IRM}	Image IRM	[-]
J	Taux de nucléation surfacique	$[m^{-2}.s^{-1}]$
k	Conductivité thermique	$[W.m^{-1}.K^{-1}]$
L	Chaleur latente de solidification	$[J.Kg^{-1}]$
l	Distance	[m]
L_v	Chaleur latente d'évaporation	$[J.Kg^{-1}]$
LWC	Liquid Water Content	$[kg.m^{-3}]$
M	Moment magnétique	$[N.m.T^{-1}]$
N	Nombre d'élément	[-]
Nu	Nombre de Nusselt	[-]
P	Puissance	[W]
Q	Taux de désactivation collisionnelle	$[s^{-1}]$
Q_v	Débit volumique	$[m^3.s^{-1}]$
R	Rayon	[m]
$R_{ij,n}$	Rapport de fluorescence des bandes spectrale i et j normalisée	[-]
R_{ij}	Rapport de fluorescence des bandes spectrale i et j	[-]
Re	Nombre de Reynolds	[-]
S	Facteur de forme	[-]
s	Sensibilité en température	$[%/^{\circ}C]$
S_f	Facteur de transformation	$[m^{-1}]$
Sh	Nombre de Sherwood	[-]
T	Température	[K]
t	Temps	[s]
V	Volume	$[m^3]$
v	Vitesse	$[m.s^{-1}]$
w	Taux de nucléation	$[m^{-3}]$
X	position interface liquide/glace	[m]
K_{opt}	constante de transmission des optiques de collection	[-]

Symboles Grecs

α	Angle	$[^{\circ}]$
χ	Fraction de glace	[%]
ΔG	Énergie libre de Gibbs	[J]
ϵ	Coefficient d'absorption molaire	$[L.mol^{-1}.m^{-1}]$
η	Viscosité cinématique	$[m^2.s^{-1}]$

η	coefficient de réduction des nombres de Sherwood et Nusselt	[-]
η_M	coefficient de réduction du nombre de Sherwood	[-]
η_T	coefficient de réduction du nombre de Nusselt	[-]
λ	Longueur d'onde	[m]
μ	Viscosité dynamique	[kg.m]
ν	Rapport de diffusivité thermique	[-]
ω	Angle solide de collection	[°]
$\Phi(\lambda)$	Rendement quantique de fluorescence	[-]
Φ_c	Flux convective	[W]
ψ	Rapport de densité	[-]
ρ	Masse volumique	[kg.m ⁻³]
σ	Tension superficielle	[N.m ⁻¹]
σ_s	Écart-type	[S.I]
θ	Angle	[°]
ζ	Moment gyromagnétique	[rad.s ⁻¹ .T ⁻¹]

Indices

<i>air</i>	Air
<i>amb</i>	Ambiant
<i>c</i>	Collection
<i>f</i>	Fusion
<i>g</i>	Goutte
<i>h</i>	Huile
<i>het</i>	Hétérogène
<i>hom</i>	Homogène
<i>inj</i>	Injection
<i>L</i>	Liquide
<i>lam</i>	Lamelle
<i>m</i>	Moyenne
<i>n</i>	Normalisé
<i>nucl</i>	Nucléation
<i>S</i>	Solide/Glace
<i>sat</i>	Saturé
<i>sol</i>	Solidification
<i>surf</i>	Surface
<i>tot</i>	Totale

Liste des figures

1.1	Gauche : accrétion de glace sur le bord d'attaque d'une aile ($d_g < 50 \mu\text{m}$), à droite : accrétion de glace sur l'extrados d'une aile (SLD) (Sources : NASA et UCAR)	3
1.2	Accrétion de glace sur la partie centrale du réacteur et les pales d'entrée d'air (Sources : NASA)	3
1.3	Injection de fluide dégivrant sur le bord d'attaque d'une aile d'avion	4
1.4	Gauche : système de boudins gonflables. Droite : injection d'air d'air chaud au niveau du bord d'attaque.	4
1.5	Photographies de l'intérieur de la soufflerie de la Nasa Glenn Research Center. L'image de gauche représente un essai d'accrétion de givre sur le bord d'attaque d'une aile d'avion et celle de droite un essai réalisé sur une maquette d'avion.	6
1.6	Schéma du PAG de la DGA Essais Propulseurs	7
1.7	Essais en vol de certification aux conditions givrantes.	8
2.1	Évolution de l'énergie libre de Gibbs en fonction du rayon du germe solide .	13
2.2	Schéma de principe du phénomène de nucléation hétérogène	14
2.3	Rapport entre le nombre de gouttes solides et le nombre de gouttes initiales en fonction du temps après impact pour différentes températures de surface pour une goutte à une température initiale de +20 °C B) et -15 °C A) pour un nombre de Weber de 140 [66].	15
2.4	Décroissance de la proportion de gouttes liquides en fonction du temps après impact pour différentes températures initiales de gouttes [51]	18
2.5	Évolutions de la décroissance du nombre de gouttes liquide au cours du temps pour des gouttes ayant un volume de $4,93 * 10^5 \mu\text{m}^3$ (a) et $2,87 * 10^4 \mu\text{m}^3$ (b) [14].	18
2.6	A) évolution de la proportion de goutte sessile liquide déposés sur un substrat solide en fonction de la température du substrat. B) évolution du taux de nucléation η_{si} en fonction du degré de surfusion obtenus à partir de la courbe de gauche [51]	19
2.7	Évolution temporelle du nombre de goutte liquide impactant une surface solide constituée de matériaux différentes pour une température de -16 °C [54].	20
2.8	Température de nucléation de l'eau en fonction de la concentration de Snomax (<i>Pseudomonas syringae</i>) [13]	21
2.9	Solidification d'une goutte sessile a-d) phase de recalescence. e-h) front de solidification plan. [31]	21
2.10	Évolution de la fraction de glace en fonction du degré de surfusion avant recalescence [29].	22

2.11 A) différents modes de solidification de l'eau en fonction du degré de surfusion et B) évolution de la vitesse du front de recalescence en fonction du degré de surfusion du liquide [52].	23
2.12 Champ de température dans la glace et le liquide dans le cas du problème de Stefan à une phase.	24
2.13 Champ de température dans la glace et le liquide dans le cas du problème de Stefan à deux phases.	25
2.14 Augmentation de volume d'une goutte après solidification. [74]	27
2.15 Observation de la "pointe" en fin de phase de solidification avec un angle de cône α . L'expérience à été menée pour différents rapports d'aspect H/R et différentes températures de surface T_0 . Cas A) $\alpha = 147^\circ$, $T_0 = -34,4^\circ\text{C}$ et $H/R = 4,96$. Cas B) $\alpha = 141^\circ$, $T_0 = -44,1^\circ\text{C}$ et $H/R = 1,16$. Cas C) $\alpha = 139^\circ$, $T_0 = -20,8^\circ\text{C}$ et $H/R = 0,46$. D) correspond au front de glace dans une goutte observée dans une cellule de Hele-Shaw [39].	28
2.16 Schéma indiquant les différentes grandeurs intervenant durant la solidification d'une goutte d'eau	28
2.17 Évolution de l'angle de contact à l'interface air/liquide/glace en fonction de la hauteur relative [39].	29
2.18 Évolution de la racine carré l'angle de contact γ ($\gamma = \alpha + \theta$) en fonction du temps normalisé. L'ajustement des résultats expérimentaux par l'équation 2.54 est ajouté [74].	30
2.19 Processus de solidification d'une goutte d'eau de $20\ \mu\text{L}$ déposée sur une surface sous-refroidie à $-18,4^\circ\text{C}$. Visualisation de la solidification par ombroscopie [74].	30
2.20 Schéma des différentes phases d'impact d'une goutte sur une paroi solide (cas isotherme).	31
2.21 Influence de la température de surface initiale sur le facteur d'étalement maximal lors de l'impact d'une goutte de $2\ \text{mm}$ de diamètre à une vitesse de $3\ \text{m.s}^{-1}$ [52] et pour une température initiale de la goutte de 20°C et -20°C	33
2.22 A) évolution de la surface mouillés en fonction du temps lors de l'impact d'une goutte sur une paroi à une température de -20°C [66]. B) évolution de la surface mouillé en fonction du temps lors de l'impact d'une goutte à une température de $14,3^\circ\text{C}$ pour deux températures de paroi différentes [51].	34
2.23 Impact d'une goutte à une température initiale de A) 20°C et B) $-14,8^\circ\text{C}$ sur une surface sous-refroidie à une température de A) -23°C et B) $-24,3^\circ\text{C}$ [66].	36
2.24 Représentation des différents mode de solidification d'une goutte à une température initiale supérieur à la température de solidification du liquide impactant une surface sous-refroidie [66]	36
2.25 (a)-(h) Impact d'une goutte de $3,8\ \text{mm}$ diamètre à température ambiante sur une surface de température -9°C et pour une vitesse d'impact de $2,6\ \text{m.s}^{-1}$. (i) Profil de hauteur de glace de la goutte en fin de solidification [60]	37
2.26 Imagerie infrarouge de l'impact et du rebond total d'une goutte surfondue à une température initiale de -3°C sur une surface à $+5^\circ\text{C}$. La goutte à un diamètre de $1,5\ \text{mm}$ et une vitesse d'impact de $3,4\ \text{m.s}^{-1}$ [38]	40

2.27	Séquence d'images acquises par thermographie infrarouge de gouttes déposées sur une surface soumise à une rampe de refroidissement. L'image la plus à gauche montre le début d'une expérience avec toutes les gouttes liquides, et lorsque la surface se refroidit (vers la droite), de plus en plus de gouttes sont gelées. La solidification est détectée lorsque la goutte se réchauffe à 0 °C. [22].	40
2.28	Interaction de la lumière avec une goutte sphérique [36]	41
2.29	Indice de réfraction de l'eau en fonction de la température. [50]	41
2.30	A) intensité de spectres Raman en fonction de la température de l'eau. B) influence de la solidification sur le spectre Raman. [15]	42
2.31	Rapport du signal Raman mesuré sur sur deux bandes spectrales distinctes en fonction de la température de l'eau [15]	43
2.32	Gauche : principe optique de la technique de mesure ILIDS. Droite : exemple d'image en défaut de mise au point d'une goutte d'eau liquide et gelée [44] .	44
2.33	Montage ILIDS permettant l'imagerie en défaut de mise au point selon deux vue d'une particule de glace [9].	45
2.34	Évolution du signal RMN du proton, enregistré dans un volume de 4µL à une température initiale de -10 °C [28].	46
3.1	Schéma des spectres d'absorption et d'émission d'une molécule fluorescente.	56
3.2	Diagramme de Jablonsky résumant les différents phénomènes photophysiques se produisant lors de l'excitation d'une molécules photo-active par un rayonnement électromagnétique.	57
3.3	Diagramme d'énergie d'une molécule à deux niveaux représentant les différents échanges photophysiques entre ceux-ci.	57
3.4	Différents régimes de la fluorescence : évolution de l'intensité de fluorescence en fonction de l'intensité de l'excitation laser.	59
3.5	Schéma du principe d'absorption et de réabsorption du signal de fluorescence	60
3.6	Spectres d'absorption normalisés de différents colorants en solution aqueuse. FL : Fluorescein dissodium, FL 27 : Fluorescein 27, Rh560 : Rhodamine 560, Rh6G : Rhodamine 6G, RhB : Rhodamine B, KR : Kitonred, Rh640 : Rhodamine 640, SRh640, Sulforhodamine 640. [6]	62
3.7	Dispositif de refroidissement et d'étude du signal de fluorescence de l'eau contenu dans une cuve.	62
3.8	Spectres normalisés par rapport au maximum d'émission à différentes températures pour la rhodamine 560, l'éosine Y, Le kiton red et la rhodamine B. L'axe de droite représente l'évolution de la sensibilité en fonction de la longueur d'onde.	63
3.9	Illustrations des trois types de conflits spectraux.	65
3.10	Spectres d'absorption et d'émission de la rhodamine 560 et du kiton red à température ambiante. Chaque spectre est normalisé par son maximum. . .	66
3.11	Spectres du mélange Rh560/Kr pour différentes températures normalisés par la température la plus basse et évolution de la sensibilité en température.	67
3.12	Évolution du signal de fluorescence en fonction du chemin optique sur les bandes spectral 1 et 2 (réabsorption), pour une concentration $c_{Rh560} = 5 * 10^{-6} mol.L^{-1}$ et $c_{Kr} = 5 * 10^{-7} mol.L^{-1}$	68
3.13	Sonde de collection LIF	69
3.14	Principe de fonctionnement d'un photomultiplicateur.	69

3.15 Schéma de la chaîne de détection de la fluorescence sur trois bandes spectrales distinctes LIF3c2d.	70
3.16 Évolution de $\ln(R_{12}/R_{12,0})$ en fonction de la température. La calibration est réalisée en cuve et sur une goutte suspendue.	71
3.17 Dispositif de calibration en température réalisé à l'aide d'une goutte suspendue dans une atmosphère contrôlée et sous-refroidie.	72
3.18 Spectres de fluorescence du mélange rhodamine560 / kiton red en phase liquide et solide (glace) normalisés par le maximum d'émission du mélange	72
3.19 Évolution des logarithmes des rapport de fluorescence, $\ln(R_{12}/R_{12,0})$ et $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la température. La calibration est réalisée en cuve et sur une goutte suspendue.	73
3.20 schéma d'une goutte se solidifiant par la surface externe.	74
3.21 cuvette jaugée utilisée pour la calibration du signal de fluorescence en fonction de la variation de volume d'eau, lors de la phase de solidification.	76
3.22 Dispositif expérimental de caractérisation du signal de fluorescence en fonction de l'évolution du volume de glace.	77
3.23 Exemple d'expérience réalisées avec le montage Figure 3.21.	77
3.24 Évolution du logarithme du rapport de fluorescence $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ A) en fonction de la variation de volume d'eau, B) en fonction de la variation de volume d'eau normalisé, défini selon l'équation 3.30, ceci pour différents volume d'eau initiaux. Sur B) est ajoutée l'évolution du signal Raman en fonction de la variation de volume d'eau normalisé.	79
3.25 Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la spectrométrie Raman de l'eau.	79
3.26 Spectres Raman (normalisés par leurs maximums) en phase liquide et en phase solide.	80
3.27 Séquence d'écho de spin.	81
3.28 A) Spectromètre RMN 600 MHZ wide bore. B) Dispositif expérimental pour la mesure de fraction de glace par IRMN inséré dans l'aimant et repérage des trois volumes de collections.	82
3.29 Évolution du signal RMN à différentes températures. La courbe de droite insérée représente l'évolution de la température de l'huile en fonction de celle de l'air.	83
3.30 Images IRMN de la solidification de l'eau dans la cuvette de mesure : la zone 1 correspond à l'huile de silicone et la zone 2 à l'eau. La colorbar représente l'évolution de la fraction de glace dans le milieu, : -1 (bleu) pour 100% glace et 0 (jaune) pour 100% liquide.	84
3.31 Évolution de la fraction de glace mesurée en IRMN en fonction de la variation du volume d'eau normalisée.	85
3.32 Évolution du logarithme du rapport de fluorescence $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la fraction de glace reconstruite grâce à la technique d'IRMN	86
3.33 Dispositif expérimental utilisé pour étudier l'effet des colorants fluorescents sur le degré de surfusion des gouttes A) et image typique en vue de dessus de la plaque refroidie avec des gouttes gelées B).	87
3.34 Évolution de la hauteur maximale d'une goutte déposé sur une surface en fonction du temps pour le cas avec et sans balayages à l'azote.	88

3.35	Évolution de la proportion de goutte solide en fonction de la température de surface de la plaque pour des goutte d'eau pure A) et des gouttes ensemencées par le mélange Rh560/Kr B), pour différentes expériences à des fins de reproductibilité.	89
3.36	Évolution de la proportion de goutte solide en fonction de la température de surface de la plaque froide dans le cas de l'eau pure, de l'eau ensemencée avec des colorants fluorescents, ceci pour différentes concentrations.	90
3.37	Évolution des deux rapports de fluorescence normalisés R_{12} et R_{31} utilisés dans la technique de LIF3c2d en fonction de la pression d'injection du liquide et mesurés dans un spray. Comparaison avec le rapport de fluorescence R_{23} pour du kiton red seul comme réalisé dans [13].	91
3.38	Spectres de fluorescence du kiton red à une concentration de $5 \times 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ généré par un atomiseur à pression (Danfoss) sur les bandes spectrales A) [540 nm; 560 nm] et B) [595 nm; 610 nm] pour différentes pressions d'injection. Les spectres sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la bande spectrale [640 nm; 690 nm] non affectée par la réabsorption.	92
3.39	Spectres de fluorescence A) de la rhodamine 560 à une concentration de $1 \times 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ B) du mélange Rh560/Kr généré par un atomiseur à pression (Danfoss) pour différentes pressions d'injection. Les spectres sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la bande spectrale A) [590 nm; 640 nm], B) [640 nm; 690 nm] non affectée par la réabsorption.	92
3.40	Spectres de fluorescence du mélange rhodamine 560/kiton red généré par un atomiseur pour différentes pression d'injections sur les bandes spectrales : A) [540 nm; 560 nm] et B) [595 nm; 610 nm]. Les spectres sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la bande spectrale [640 nm; 690 nm] non affectée par la réabsorption.	93
4.1	Schéma de la colonne refroidie et du dispositif optique de fluorescence induite par laser.	98
4.2	Schéma technique de la colonne refroidie.	99
4.3	Exemple de deux champs de température de l'air à l'intérieur de la colonne de 400 mm de hauteur.	100
4.4	Schéma d'un jet de gouttes monodispersées.	101
4.5	A) Volume d'excitation laser obtenus avec une sonde LDV. B) Volume de mesure correspondant à l'intersection entre les volumes de collection de la sonde de fluorescence et d'excitation laser.	102
4.6	Transfert de chaleur dans une goutte en évaporation.	103
4.7	Principe de détection du signal de fluorescence émis par une goutte.	106
4.8	Illustration de la convergence statistique du rapport R_{12} en fonction du nombre de goutte utilisée pour le calcul du rapport de fluorescence.	107
4.9	Schéma des dispositifs de mesure LDV et LIF mis en place dans la colonne.	108
4.10	A) comparaison de la température mesurée par LIF3c2d avec la simulation dans le cas $\eta = 0,6$ et dans le cas d'une goutte isolée; avec $T_{inj} = 4,7 \text{ }^\circ\text{C}$, $v_{inj} = 6,9 \text{ m.s}^{-1}$, $d_{inj} = 226 \text{ }\mu\text{m}$ et $C_{inj} = 1,52$. T_m représente la température moyenne, T_c la température du centre, T_{surf} la température de surface calculées et T_{LIF} la température mesurée par LIF. B) Simulation de l'évolution du diamètre de la goutte au cours du temps.	109

4.11	Évolution du coefficient de correction η en fonction du paramètre de distance C pour différents nombres de Reynolds. Les données extraites de [2] dans le cas de goutte en faible évaporation ont été ajoutée à la Figure.	110
4.12	A) Convergence du rapport R_{31} en fonction du nombre de goutte. B) Densité de probabilité des rapports de fluorescence R_{31} normalisés par le rapport de fluorescence d'une goutte purement liquide.	112
4.13	Évolution du logarithme du rapport de fluorescence normalisé $R_{31}/R_{31,0}$ pour des membranes de diamètre $D_m = 50 \mu\text{m}$, $D_m = 150 \mu\text{m}$ et $D_m = 200 \mu\text{m}$ pour une température ambiante moyenne de A) $-34 \text{ }^\circ\text{C}$ et B) $-45 \text{ }^\circ\text{C}$. Les gouttes sont classées en fonction de leur état : purement liquide ou mixte et solide. Pour chaque classe, est représenté la fraction de gouttes dans un état donné par rapport au nombre de gouttes total. Pour les gouttes purement liquides, la température moyenne $\overline{T_g}$ mesurée par LIF des gouttes est ajoutée.	113
4.14	Densité de probabilité du rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$, ajusté par une loi log-normale pour les trois diamètres de membranes étudiées à une température moyenne de l'air ambiant de $-45 \text{ }^\circ\text{C}$	114
4.15	Étapes du traitement des données de fluorescence permettant l'estimation de la fraction de glace dans un ensemble de gouttes produites par un injecteur de gouttes monodispersées.	115
4.16	Fraction de goutte A) 100% liquide, B) mixte et C) 100% solide pour les différentes températures moyenne de l'air étudiées et pour les différents diamètres de membrane étudiés.	116
4.17	Représentation de la fraction de glace χ_S totale pour l'ensemble des conditions testées.	116
4.18	A) schéma du Petit Anneau Givrant (PAG) de la DGA Essais propulseurs. B) schéma du convergent et de la veine d'essais.	117
4.19	A) Schéma du dispositif optique utilisé pour la caractérisation de goutte évoluant dans une soufflerie givrante ; B) Photographie du dispositif optique placé autour de la veine d'essais du PAG.	118
4.20	Évolution de la température de goutte T_g mesuré par LIF pour un diamètre volumique moyen d'injection de $200 \mu\text{m}$, une température d'injection de $17 \text{ }^\circ\text{C}$, une vitesse d'air de 100 m.s^{-1} en fonction de la température statique de l'écoulement d'air. Les traits en pointillés correspondent au cas d'une goutte à l'équilibre thermique avec l'air.	119
4.21	Évolution de la température de goutte T_g en fonction de la vitesse de l'air v_{air} pour une température totale d'air de $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ et un diamètre volumique moyen (DVM) de $100 \mu\text{m}$	120
4.22	Évolution du nombre de Weber aérodynamique en fonction de la vitesse de l'air pour un diamètre de goutte de $100 \mu\text{m}$	121
4.23	Évolution de la température de goutte T_g en fonction de la teneur en eau (LWC) pour un diamètre volumique moyen de $100 \mu\text{m}$ et $200 \mu\text{m}$, une vitesse d'air de 100 m.s^{-1} et une température statique de l'air de $-39 \text{ }^\circ\text{C}$	122
4.24	Évolution du rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ en fonction du temps pour un cycle de givrage et de la fraction de glace estimée cumulée durant la séquence de givrage	124
5.1	Dispositif d'impact d'une goutte sur un substrat sous-refroidi.	130
5.2	Dispositif expérimental pour la mesure de l'évolution du front de glace d'une goutte impactant une paroi sous-refroidies par PLIF rapide.	131

5.3	Spectre d'absorption et de fluorescence de la rhodamine 6G, normalisé par leur maximum.	131
5.4	Signal de fluorescence émis par une goutte sans utilisation du guide d'onde A) et avec utilisation du guide d'onde B).	132
5.5	Schéma de la boîte étanche.	133
5.6	Image de fluorescence d'une goutte impactant un substrat de Duraluminium sous-refroidi à $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ à humidité non contrôlée. La température initiale de la goutte est de $18\text{ }^{\circ}\text{C}$ et le nombre de Weber d'impact est de 65. Les images ont été obtenues avec le dispositif de la Figure 5.2.	133
5.7	Schéma d'une goutte en solidification et définitions des principaux paramètres géométriques.	134
5.8	Les différentes étapes du post-traitement des images	136
5.9	Comparaison entre le profil d'une goutte mesuré par LIF en vue de dessus et celui mesuré par ombroscopie en vue de côté. Cas d'une goutte déposée sur une surface isotherme en Duraluminium.	137
5.10	Comparaison entre le profil du front de solidification obtenu avec ou sans prise en compte de la dilatation volumique. Expérience réalisée dans le cas où l'humidité n'est pas contrôlée avec une température de substrat de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et un nombre de Weber de 65.	138
5.11	Images ombroscopiques de la solidification d'une goutte impactant une surface en NBK-7 sous-refroidie à une température de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et avec un Weber incident de 65.	138
5.12	Images ombroscopiques de la solidification d'une goutte impactant une surface en Duraluminium sous-refroidie à une température de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et avec un Weber incident de 65.	139
5.13	Schéma des phénomènes dissipatifs intervenant lors de l'étalement d'une goutte impactant une surface mouillante.	141
5.14	Comparaison entre le modèle analytique 1D (équation 2.44 et 2.47) et la solution numérique 2D-axi pour le profil de température A) et la position de l'interface liquide/solide B) pour une température initiale de $18\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une température de substrat constante de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$. Le domaine de calcul à une longueur de 100 cm et une largeur de 50 cm.	142
5.15	Axe de gauche : Évolution de la position de l'interface liquide/solide au centre de la goutte pour différentes tailles de maillage. Axe de droite : évolution de l'erreur avec comme référence la hauteur du front lorsque le maillage est le plus fin. Les simulations sont réalisées dans le cas d'une goutte de $400\text{ }\mu\text{m}$ de hauteur et de $3500\text{ }\mu\text{m}$ de rayon, pour une température de surface de $T_0 = -10\text{ }^{\circ}\text{C}$	143
5.16	Domaine de calcul et conditions aux limites prises en compte dans la résolution numérique de la solidification d'une goutte.	144
5.17	Schéma des principaux paramètres du front de solidification sphérique.	145
5.18	Évolution de l'épaisseur du front de solidification A) et de la position radiale B) du front de glace à la tri-jonction air/liquide/solide (point B) en fonction du temps pour $T_0 = -10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $T_{\infty} = 18\text{ }^{\circ}\text{C}$	146
5.19	Évolution de l'épaisseur du front de glace au centre de la goutte (point A) en fonction du temps.	147

5.20	Évolution de la position du front de glace au centre de la goutte (point A) obtenue numériquement et expérimentalement en fonction du temps pour différentes températures de surface. L'ajustement par une loi en $t^{0,75}$ est ajoutée pour chaque expérience.	147
5.21	Évolution de la position du front de glace au centre de la goutte (point A) obtenue numériquement pour une géométrie de goutte identique à celle présentée à la Figure 5.18 ($\times 1$) et pour une multiplication par dix de toutes les grandeurs géométriques de la goutte ($\times 10$).	148
5.22	Position du front de solidification déterminée expérimentalement A) en négligeant la dilatation volumique et B) en prenant en compte la dilatation volumique. Comparaisons avec des simulations 2D-axi. Les conditions de givrage sont les mêmes que celles présentées sur la Figure 5.18.	148
5.23	Profil expérimental du front de glace à $t = 1$ s pour une goutte impactant un substrat en Duraluminium. R_S représente le rayon de courbure du cercle d'ajustement.	149
5.24	Évolution temporelle de la masse de glace obtenue numériquement et expérimentalement. Les conditions expérimentales sont les mêmes que celles présentées à la Figure 5.18.	149
5.25	Position du front de solidification déterminée en prenant en compte la dilatation volumique et d'une simulation 2D-axi dans le cas de l'impact d'une goutte à une température initiale de 18 °C sur un substrat en N-BK7 à une température de $T_0 = -10$ °C et pour un Weber de 65.	150
5.26	Évolution de la température de surface du substrat en N-BK7 : A) au centre de la goutte, B) sur le bord de la goutte ($r = 3,2$ mm). Les conditions de givrage sont les mêmes que celles présentées sur la Figure 5.25.	151
5.27	Évolution temporelle de A) la position du front de glace à la tri-jonction air/liquide/solide (point B), et B) de la masse de glace obtenue numériquement et expérimentalement. Les conditions de givrage sont les mêmes que celles présentées sur la Figure 5.25.	151
5.28	Profil expérimental du front de glace à $t = 13$ s pour une goutte impactant le substrat en N-BK7. R_S représente le rayon de courbure du cercle ajusté au front de solidification.	152
5.29	Évolution du rayon de courbure R_S et de l'angle γ pour un substrat en A) Duraluminium, B) N-BK7 à une température de $T_0 = -10$ °C.	153
5.30	Images de fluorescence en vue de dessus d'une goutte impactant un substrat de Duraluminium sous-refroidi à -11 °C dans une ambiance à humidité contrôlée. La température initiale de la goutte est de 16 °C et le Weber d'impact est de 60. Le cercle en pointillés rouge correspond au diamètre de la goutte avant la phase de solidification.	154
5.31	Images de fluorescence en vue de côté de la solidification d'une goutte impactant une surface en Duraluminium dans les mêmes conditions que présentées sur la Figure 5.30.	155
5.32	Schéma du processus de solidification d'une goutte totalement surfondue avant la phase de recalescence.	156
5.33	Domaine de calcul et conditions aux limites prises en compte dans la résolution numérique 1D de la solidification d'une goutte.	156

5.34 A) Profil de température calculé numériquement pour une longueur de domaine de 1 mm, une température initiale de $T_{\infty} = 13$ °C, une température de surface $T_0 = -15$ °C et un temps avant nucléation t_{nucl} de 4 s, B) profil de fraction de glace obtenu après la phase de recalescence dans les conditions A).	157
5.35 Comparaison entre le modèle analytique 1D et la solution numérique 1D pour l'évolution temporelle de la position de l'interface liquide/solide dans le cas d'un milieu présentant une fraction de glace initiale de 0,2, une température du milieu de 0 °C et une température de surface de $T_0 = -15$ °C. . .	158
5.36 Évolution temporelle de la position de l'interface liquide/solide pour différentes fractions de glace dans le milieu.	159
5.37 Comparaison de l'évolution temporelle de la position de l'interface liquide/solide pour une fraction de glace constante de 0,2 et une fraction de glace variable (présentée sur la Figure 5.34 B)).	159
5.38 Évolution du temps de solidification en fonction de la température de surface pour différentes hauteurs H du milieu liquide et un temps avant nucléation de 4 s.	160
5.39 Évolution du temps de solidification en fonction de la température de surface du substrat pour une hauteur du milieu $H = 1$ mm et différents temps avant nucléation.	161
5.40 Schéma du processus de solidification d'une goutte partiellement surfondu avant la phase de recalescence.	161
5.41 Résumé des différents modèles de solidification mis en œuvre en fonction de la hauteur de l'isotherme 0 °C.	163
5.42 A) évolution de la position de l'isotherme 0 °C en fonction du temps avant nucléation. B) Évolution du temps de solidification en fonction du temps avant nucléation.	163
5.43 Comparaisons entre les temps de solidifications obtenus expérimentalement et numériquement dans le cas A) de la modélisation 1D semi-infini (section 5.3.1.1) et dans le cas B) du modèle développé dans les sections 5.4.1.1 et 5.4.1.2.	164
5.44 Position du front de solidification déterminée A) en négligeant la dilatation volumique B) et en prenant en compte la dilatation volumique pour une goutte impactant un substrat en Duraluminium de température $T_0 = -14$ °C. Le temps avant nucléation t_{nucl} est de 4 s et le Weber d'impact est de 260.	166
5.45 Évolution de A) la position du front de glace au centre (point A) et B) à la jonction air/liquide/solide (point B) en fonction du temps pour $T_0 = -14$ °C et $t_{nucl} = 4$ s.	166
5.46 A) Évolution de l'angle γ en fonction du temps après nucléation ($t' = t - t_{nucl}$) pour les différents angle de contact obtenus. B) Évolution de la racine carré du rapport entre l'angle γ et l'angle de contact θ_0 en fonction du temps normalisé ($\tau = t' / t'_{sol}$)	168

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1 Contexte	2
1.1.1 Conditions aéronautiques givrante dans le secteur aérien	2
1.1.2 Réglementation aérienne	4
1.1.3 Certification en conditions aéronautiques givrantes	5
1.1.3.1 Essais au sol	6
1.1.3.2 Essais en vol	7
1.2 Objectifs de la thèse	8
1.3 Références	9

1.1 Contexte

À l'heure actuelle, il est possible d'estimer qu'un avion décolle toutes les secondes dans le monde alors qu'en 2020 le nombre de vols annuels devrait dépasser les 200 millions. Avec cette augmentation considérable du nombre de vols, la sécurité des personnes et des biens est un élément-clé, même si l'avion reste cependant le moyen de transport le plus sûr. En 2017, l'IATA (International Air Transport Association) a recensé un nombre record de 4 milliards de voyageurs aériens. L'année 2019 apparaît comme la troisième année la plus sûre pour l'aviation après la Seconde Guerre mondiale : 293 décès sont à déplorer devant 559 pour l'année 2018. L'IATA note également que la sécurité aérienne augmente puisque le nombre d'accidents, par million de vols effectuée passe de 1,35 en 2018 à 0,91 en 2019. Il est possible de classer les différentes causes d'accidents aériens en fonction de leur importance. En premières positions, se trouvent les causes d'origine humaine. Viennent ensuite les problèmes techniques liés aux appareils (maintenance, défaillances techniques, erreurs de conception...) et enfin les causes d'origine météorologique. On peut noter dans cette catégorie l'accident de la compagnie Air Algérie (2014) ou celui d'air France (2009). D'après les enquêtes et rapports effectués suite à ces accidents, les conditions atmosphériques de vol de ces aéronefs et surtout le phénomène de givrage sont mis en cause. Ainsi, dans la suite de ce travail, nous nous intéresserons plus précisément aux conditions aéronautiques givrantes et à la réglementation mise en place.

1.1.1 Conditions aéronautiques givrante dans le secteur aérien

Le niveau de vol des avions commerciaux se situe entre 10-12 km, ce qui signifie qu'ils évoluent dans la troposphère (altitude comprise entre 8 – 15 km). La température de l'air dans cette couche basse de l'atmosphère peut atteindre -60 °C . La présence de zones nuageuses dans la troposphère, composées d'eau sous formes liquides, solides ou mixtes (mélange liquide/solide), a été constatée. La traversée de certaines couches nuageuses par les avions ne représente aucun danger tandis que pour certaines autres, des risques majeurs de givrage existe. Dans ce cas, on peut observer une accréation de glace sur les parois de l'aéronef résultant de la solidification de gouttes d'eau surfondues après impact. L'état de surfusion correspond à des gouttes à l'état liquide pour des températures inférieures à leur température de solidification ($T_{sol} = 0\text{ °C}$ pour l'eau). Le danger d'un nuage lié au risque de givrage est classé selon deux paramètres : la teneur en eau liquide (*LWC* pour Liquid Water Content) et la teneur en glace (*IWC* pour Ice Water Content). Il est possible de distinguer trois types de conditions givrantes :

- Lorsque la teneur en eau liquide est proche de 1 g.m^{-3} , cela signifie que la majorité des gouttes d'eau sont sous forme liquide. Les gouttes restent sous forme liquide tant qu'aucun élément glaçogène n'induit leur solidification. Le passage d'un avion dans ce nuage peut perturber l'état métastable des gouttes et ainsi induire leurs solidifications. Dans le cas de petites gouttes d'eau (diamètre d_g inférieur à $50\text{ }\mu\text{m}$), l'impact va induire une solidification instantanée des gouttes sur les bords d'attaque des ailes d'avion. Cette accréation modifie le profil aérodynamique des ailes (Figure 1.1 image gauche) [1]. Les conséquences sont une diminution de la portance et une augmentation de la traînée, cette dernière pouvant atteindre 20%. Lorsque le diamètre des gouttes devient supérieur à $50\text{ }\mu\text{m}$, on parle alors de *SLD* (Supercooled Large Droplets). Pour ces gouttes, la chaleur latente de solidification induit une augmentation de la température du liquide proche de 0 °C ce qui limite la solidification de l'eau. Une partie du liquide initial peut donc ruisseler le long de l'aile et

se solidifier à l'aval (Figure 1.1 image de droite).



FIGURE 1.1 – Gauche : accrétion de glace sur le bord d'attaque d'une aile ($d_g < 50 \mu\text{m}$), à droite : accrétion de glace sur l'extrados d'une aile (SLD) (Sources : NASA et UCAR)

- Lorsque la majorité des gouttes est sous forme solide et que l' IWC dépasse la valeur de $1.5\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, on parle alors de conditions givrantes dangereuses. Les cristaux de glace ont des tailles généralement compris entre $50 \mu\text{m}$ et $500 \mu\text{m}$. Cette condition givrante peut être critique pour les moteurs d'avion. Ainsi, les entrées d'air des moteurs peuvent être obstruées par la glace ce qui peut conduire à une baisse de rendement du moteur (Figure 1.2).

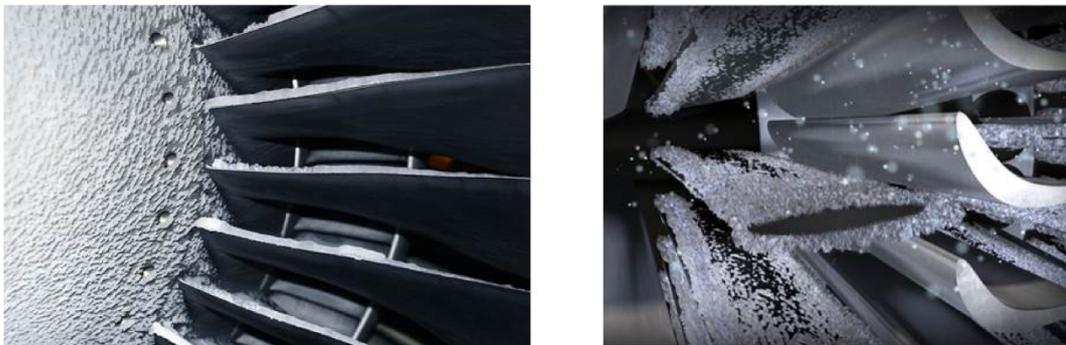


FIGURE 1.2 – Accrétion de glace sur la partie centrale du réacteur et les pales d'entrée d'air (Sources : NASA)

- Enfin, la dernière condition givrante se caractérise par la présence simultanée de gouttes d'eau liquides, surfondues et solides. Cette condition givrante est appelée "phase mixte".

De nombreux systèmes de protection contre le givrage existent. Il existe deux modes d'action de lutte contre le givrage : les systèmes de prévention empêchant le givre de se former et ceux permettant de supprimer le givre déjà formé.

Dans la première catégorie, on peut citer les systèmes basés sur l'injection de fluides dégivrants, principalement à base de glycol, sur les surfaces sensibles des avions. La Figure 1.3 présente un système d'injection de fluide dégivrant. Le fluide est réparti sur l'ensemble de l'aile et permet de limiter l'accrétion de givre sur l'appareil. La recherche de nouveaux matériaux permettant de limiter l'accrétion de givre sur l'appareil est un second moyen de lutte.



FIGURE 1.3 – Injection de fluide dégivrant sur le bord d'attaque d'une aile d'avion

Enfin, pour retirer le givre déposé sur l'aile, on peut citer différents types de technologie. La Figure 1.4 présente un système de boudins gonflables, placés le long du bord d'attaque d'une aile, qui permettent de détacher la glace de la surface lorsqu'ils sont gonflés. Puis, lorsque la glace est retirée, les boudins reprennent leurs formes initiales. Ce système n'est installé que sur les petits avions, alors que la majorité des avions actuels sont équipés d'un système de dégivrage par injection d'air chaud au niveau du bord d'attaque. Cet air chaud est prélevé au niveau du moteur entre les compresseurs basse et haute pression (Figure 1.4).

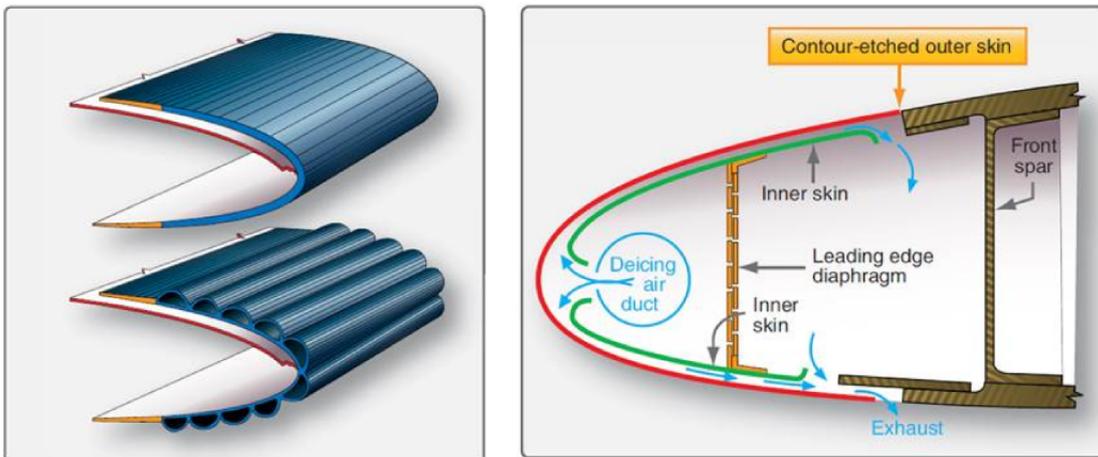


FIGURE 1.4 – Gauche : système de boudins gonflables. Droite : injection d'air d'air chaud au niveau du bord d'attaque.

1.1.2 Réglementation aérienne

L'EASA (European Aviation Safety Agency) et la FAA (Federal Aviation Administration), respectivement en Europe et aux États-Unis, sont les agences qui définissent les réglementations aériennes. Nous allons ici nous intéresser aux réglementations spécifiques liées au givrage. Ces réglementations sont principalement définies dans les Appendix C, O, D et P [3].

Appendix C

Les premières réglementations liées au risque de givrage sont apparues dans les années 1950. La réglementation 14 CFR 20 Appendix C7 est utilisée depuis 1964 et englobe la grande majorité des conditions givrantes pour des gouttes ayant des diamètres inférieurs à 50 μm . Les conditions givrantes y sont définies pour des gouttes ayant un MVD (diamètre volumique moyen) de 40 μm en conditions continues (stratiformes) et jusqu'à 50 μm pour des conditions intermittentes (cumuliformes).

Appendix O

Suite à l'accident d'un ATR-72 de la compagnie American Eagle en octobre 1994, les certifications aériennes liées au risque de givrage ont évoluées. En effet, l'enquête a déterminé que la présence de *SLD* était responsable de cet accident. L'appendix O définit précisément les caractéristiques des nuages givrants en fonctions de la taille des gouttes.

Appendix D/P

Suite à l'accident du vol Rio-Paris en 2009 sur un airbus A330 de la compagnie Air France, mettant en cause la présence de cristaux de glace dans les sondes Pitot, les réglementations aériennes ont de nouveau été étendues. Cette nouvelle annexe définit la réglementation liée à la présence de cristaux de glace et de phases mixtes.

Pour résumer les réglementations actuelles comporte :

- 14 CFR 20, Appendix C (FAA)
 - Gouttes surfondues ayant des diamètres compris entre 15 μm et 50 μm
 - Température comprise entre 0 °C et -30 °C
- 14 CFR 25, Appendix O (FAA)
 - SLD
 - Pluies givrantes (pour des gouttes ayant un diamètre supérieur à 500 μm) et bruines givrantes (pour des gouttes ayant un diamètre compris en 100 μm et 500 μm)
 - Taille des gouttes jusqu'à 2 mm de diamètre avec une proportion de goutte de diamètre supérieur à 1 mm représentant 10% de la masse totale des gouttes.
- 14 CFR 33, Appendix D (FAA) et CS 25, Appendix P (EASA)
 - Conditions glacées (cristaux de glace) en phase mixte
 - Température jusqu'à -60 °C

Les constructeurs aéronautiques doivent maintenant certifier les équipements de protections et de lutte pour l'ensemble des conditions givrantes en vigueur. Pour certifier les aéronefs, différents essais doivent être réalisés.

1.1.3 Certification en conditions aéronautiques givrantes

Les essais liés à la certification peuvent être réalisés lors d'essais soit au sol, soit en vol. Les essais en vol sont souvent dangereux et très onéreux. Désormais, avec l'émergence d'un grand nombre de souffleries givrantes (*IWT* pour Icing Wind Tunnel), il est possible de recréer un grand nombre de conditions givrantes et donc de réaliser davantage de tests normatifs.

1.1.3.1 Essais au sol

Deux types de souffleries givrantes existent : celle visant à recréer les conditions aéronautiques givrantes d'un avion en vol (vitesse de l'air de plus de 200 m.s^{-1} et conditions givrantes) et celles visant à recréer les conditions physiques rencontrées dans les nuages. Ne seront mentionnés ici que les essais visant à recréer les conditions aéronautiques givrantes rencontrées par un avion en vol. Lorsqu'un avion vol à son altitude de croisière, celui-ci se déplace à une vitesse supérieure à 150 m.s^{-1} dans un environnement à une température inférieure à -40 °C . Les vitesses des écoulements d'air générées par les souffleries givrantes varient en fonction de la géométrie du convergent, des conditions reproduites ainsi que des essais qui doivent y être réalisés. L'injection des gouttes d'eau est, dans la majorité des cas, réalisée par une rampes de buses générant un spray de gouttes polydispersées en tailles. Les gouttes sont généralement injectées à température ambiante ($T_{amb} \approx 20 \text{ °C}$) et à des vitesses nettement plus faibles que celles de l'écoulement d'air. Elles sont ainsi refroidies et accélérées durant leurs temps de vol dans la soufflerie. Ce type de soufflerie permet donc la certification d'aéronefs au risque de givrage. L'une des plus grandes est celle de la Nasa Glenn Research Center aux USA (Figure 1.5). Cette soufflerie peut générer des nuages de gouttes surfondues ayant un diamètre volumique moyen de $275 \text{ }\mu\text{m}$, une vitesse d'air jusque 150 m.s^{-1} et des température d'air pouvant avoisiner -35 °C . Les dimensions de la veine d'essais sont de 2 mètres de hauteur, 3 mètres de largeur et 6 mètres de longueur, permettant ainsi de réaliser des tests sur des parties d'avion ou des modèles réduits d'aéronefs.



FIGURE 1.5 – Photographies de l'intérieur de la soufflerie de la Nasa Glenn Research Center. L'image de gauche représente un essai d'accrétion de givre sur le bord d'attaque d'une aile d'avion et celle de droite un essai réalisé sur une maquette d'avion.

Il existe un grand nombre de souffleries givrantes à travers le monde (Russie, États-Unis, Italie, Autriche, Canada, France, ...). En France, la DGA dispose d'une soufflerie givrante appelée PAG (Petite Anneau Givrant) présenté sur la Figure 1.6 permettant de réaliser dans la majorité des cas des essais sur des sondes de givrage. La veine d'essais a une section de $40 \times 40 \text{ cm}^2$ et permet de recréer un écoulement d'air jusque -40 °C et des vitesses jusque 200 m.s^{-1} avec une humidité contrôlable. L'ONERA à achever la construction d'une soufflerie verticale d'une hauteur de 15 m. Les principales limitations, concernant la caractérisation des conditions expérimentales des souffleries givrantes, portent sur le contrôle de la phase liquide. La génération de gouttes ayant des diamètres supérieurs à $200 \text{ }\mu\text{m}$, ainsi que la génération d'un environnement froid, sont parfaitement maîtrisés. L'un des principaux verrous porte sur la mesure de la température des gouttes dans la veine d'essais. En effet, les gouttes étant injectées à une température proche de 20

°C, elles sont refroidies par l'écoulement froid durant un temps de séjour très bref du fait de la vitesse de l'air élevée. Pour le cas des *SLD*, la question de la température des gouttes dans la zone d'essais est essentielle afin de pouvoir certifier la représentativité des conditions recrées par comparaison aux cas réels. En effet, en haute altitude, les gouttes sont à l'équilibre thermique avec l'air ambiant et il semble plus difficile d'assurer cette condition dans les *IWT*. Malheureusement, il n'existe à ce jour aucune technique de mesure permettant de répondre à ces questions. En effet, la mise en place de techniques de mesure non-intrusives pour la mesure de température, de tailles et la caractérisation de l'état (i.e. liquide/solide) en conditions givrantes reste un réel défi. Récemment (entre 2015 et 2019), le projet NUAGE (Nouveaux oUtils pour la cAractérisation aéroautiques GivrantEs) financé dans le cadre du programme ASTRID (financement DGA et pilotage par l'Agence Nationale de la Recherche, ANR) a permis de développer différentes techniques optiques capable de caractériser des gouttes surfondues (tailles cristaux, température, état et composition).

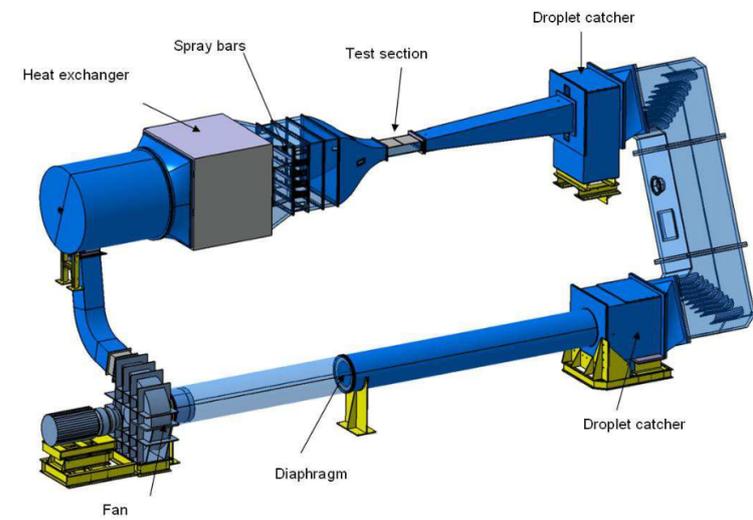


FIGURE 1.6 – Schéma du PAG de la DGA Essais Propulseurs

1.1.3.2 Essais en vol

Lorsqu'un aéronef a passé les étapes de certifications en soufflerie givrantes et/ou par simulation simulations numériques, des essais peuvent être réalisés en conditions givrantes naturelles. Pour cela, l'aéronef à certifier est instrumenté pour connaître précisément les types de conditions givrantes rencontrées. Ce type de certification est dangereux et surtout très onéreux. En effet, dans la majorité des cas, pour un temps de vols de 85 h seulement, 20 h se trouvent en conditions givrantes [2]. Pour pallier à ces problèmes, certains constructeurs aéronautiques ont recours à des essais en vol avec création de conditions givrantes. L'avion à certifier vole derrière un avion qui génère des sprays de gouttes dans son sillage (Figure 1.7). Ce principe permet de limiter le coût des essais en vol. Comme dit précédemment, l'aéronef à certifier est équipé de sondes aéroportées permettant de déterminer les conditions rencontrées en vol (température et tailles des gouttes). Ces capteurs proviennent, pour la plupart, de dispositifs utilisés pour étudier la micro-physique des nuages.



FIGURE 1.7 – Essais en vol de certification aux conditions givrantes.

1.2 Objectifs de la thèse

L'objectif principal de la thèse porte sur le développement de diagnostics optique pour la caractérisation de gouttes surfondues en écoulement dans une atmosphère à température négative ou dans des conditions d'impact sur un substrat solide sous-refroidi. Plus particulièrement, ils contribuent au développement de diagnostics optique pour la mesure de la température et la détermination de l'état d'un liquide surfondu ainsi que pour la caractérisation du phénomène de solidification dans une goutte. Ces travaux de thèse s'intègrent en partie au sein du projet NUAGE, ayant pour objectif la mise en place de diagnostics non-intrusifs pour l'étude de *SLD* en conditions aéronautiques givrantes. L'ensemble de ces travaux ont été réalisé au LEMTA au sein de l'opération scientifique «Transferts dans les Fluides »spécialisée dans le développement de diagnostics optiques permettant la caractérisation fine de transferts thermiques entre des gouttes et leurs environnement, notamment en utilisant la Fluorescence Induite par Laser (LIF). Cette technique a principalement été utilisée pour caractériser la température et la composition de gouttes en conditions «chaud » : gouttes en évaporation ou en impact sur des parois surchauffées.

Dans le chapitre deux, nous aborderons les aspects théoriques des phénomènes de surfusion et de nucléation de l'eau. Un intérêt particulier sera porté à la physique mise en jeu lors de l'impact d'une goutte sur une paroi sous-refroidie afin d'appréhender les modèles qui seront développés dans le chapitre 5 de la thèse. Nous finirons par dresser un état de l'art des différents types de diagnostics non-intrusifs appliqués à la mesure de température et à la détermination de l'état de gouttes surfondues.

Le chapitre trois sera focalisé sur le développement et la mise en place de la technique de LIF pour la caractérisation de gouttes surfondues. Nous commencerons par nous intéresser au phénomène de fluorescence. L'application de la LIF pour la mesure de températures de goutte d'eau surfondues sera ensuite abordée. La technique sera ensuite étendue à l'évaluation de la fraction de glace dans un milieu en cours de solidification, ceci permettant en particulier de discriminer des gouttes liquide, solide ou présentant une phase mixte (mélange liquide/glace).

Le chapitre quatre portera sur l'application de la nouvelle technique de fluorescence (température de goutte surfondues, estimation de la fraction de glace) sur des gouttes en écoulement. Pour cela, une étude sera réalisée pour des gouttes monodispersées avec des vitesses de goutte pouvant atteindre 10 m.s^{-1} . Enfin, l'utilisation de la technique pour des mesures en conditions aéronautiques (vitesse jusqu'à 200 m.s^{-1} , température et humidité relative de l'air contrôlées) givrantes sera présentée. La nouvelle méthode, appliquée à l'étude d'un spray de gouttes polydispersées en taille dans une soufflerie givrante (*IWT*),

permettra d'aborder la question de la représentativité des conditions givrantes recrées dans ce type d'installation.

Le cinquième chapitre portera sur l'étude de la solidification d'une goutte impactant un substrat sous-refroidi. Afin d'analyser sur la dynamique de la solidification d'une goutte impactante, une technique de mesure basée sur la fluorescence induite par plan laser (PLIF) rapide permettant de visualiser la solidification dans la goutte a été développée. Les résultats expérimentaux seront comparés à un modèle numérique 2D de propagation du front de solidification.

Le sixième et dernier chapitre constitue la conclusion de ce document. Des perspectives dans la continuité de cette thèse seront également proposées.

1.3 Références

- [1] CEBECI, T. et F. KAFYEKE. 2002, « a Ircraft I Cing », *Annual Review of Fluid Mechanics*, vol. 35, n° 1, doi :10.1146/annurev.fluid.35.101101.161217, p. 11–21, ISSN 0066-4189. [2](#)
- [2] F.CAMINADE. 2018, «EXEMPLE D'APPLICATION DES MOYENS DE CONFORMITE POUR LA CERTIFICATION DES AVIONS CONFRONTES AU VOL EN CONDITIONS GIVRANTES», dans *WORKSHOP GIVRAGE IMFT-ONERA 31/05/2018*. [7](#)
- [3] JECK, R. K. 2008, «Advances in the Characterization of Supercooled Clouds for Aircraft Icing Applications», *Working Paper*, , n° November, p. 138. [4](#)

Chapitre 2

État de l'art

Sommaire

2.1 Aspects théoriques du givrage	12
2.1.1 Le phénomène de surfusion	12
2.1.2 La nucléation	12
2.1.2.1 La nucléation homogène	12
2.1.2.2 La nucléation hétérogène	14
2.1.2.3 Modèle statistique	16
2.1.2.4 Modèle de nucléation singulière	19
2.1.3 La solidification de l'eau	21
2.1.3.1 La recalescence	22
2.1.3.2 Le modèle de Stefan	23
2.1.3.3 Effet de la différence de densité	27
2.1.4 Impact de gouttes sur un substrat solide	31
2.1.4.1 Impact d'une goutte sur une paroi isotherme	31
2.1.4.2 Impact sur une paroi sous-refroidie	32
2.2 Diagnostics non-intrusifs appliqués à la caractérisation du givrage	38
2.2.1 Mesure de température	39
2.2.1.1 Thermographie infrarouge	39
2.2.1.2 Technique d'Arc-En-Ciel (AEC)	39
2.2.1.3 La spectroscopie Raman	42
2.2.2 Caractérisation du changement de phase	43
2.2.2.1 Technique d'imagerie interférométrique en défaut de mise au point (ILIDS)	43
2.2.2.2 Spectroscopie par Imagerie de Résonance Nucléaire (IRMN)	44
2.3 Références	46

2.1 Aspects théoriques du givrage

2.1.1 Le phénomène de surfusion

Lorsqu'un matériau se trouve à l'état liquide pour une température inférieure à sa température de solidification (T_{sol}), le liquide est alors dit surfondu. Il s'agit d'un phénomène connu par les scientifiques depuis plusieurs décennies [1]. L'eau sera considérée comme surfondue lorsqu'elle est liquide pour une température inférieure à 0 °C. Il est possible, sous certaines conditions, d'observer de l'eau surfondues jusqu'à -42,6 °C [19]. En dessous de cette température, l'eau se solidifie instantanément. Comme les propriétés thermophysiques de l'eau dépendent fortement de la température, celles-ci ont été largement caractérisées dans la littérature [4] [51] [57] [5] [40]. Lorsqu'un liquide se trouve à une température inférieure à sa température de solidification, l'état stable de ce dernier est en général la phase solide [1]. La surfusion représente donc un état métastable. Ainsi, une certaine quantité d'énergie est nécessaire afin d'amorcer la solidification du liquide et dépasser la barrière d'énergie libre de Gibbs.

2.1.2 La nucléation

La nucléation correspond à l'apparition d'un premier germe solide dans une phase liquide [2]. La nucléation provient de l'agitation moléculaire ainsi que de la probabilité de la création d'un cristal de glace de taille suffisante dans le liquide. L'agitation moléculaire étant un phénomène stochastique, il en va de même pour l'apparition du germe solide. Il est tout de même possible de modéliser le phénomène de nucléation par des outils statistiques. Deux types de nucléation peuvent être distingués : la nucléation homogène et la nucléation hétérogène.

- La nucléation homogène intervient dans un liquide pur (sans présence d'agents externes favorisant la nucléation). Dans ce cas, l'agitation moléculaire seule peut permettre la formation d'un agrégat de molécules permettant de dépasser la barrière de Gibbs et donc d'initier le phénomène de nucléation.
- Il y a nucléation hétérogène lorsqu'une interface liquide/solide est présente, la partie solide jouant ici le rôle d'agent de nucléation.

Dans la grande majorité des cas, le taux de nucléation homogène est inférieur au taux de nucléation hétérogène. Cela signifie que pour une température donnée, un liquide en état de surfusion en contact avec une surface solide aura une probabilité plus importante de se solidifier qu'un liquide porté par une phase gazeuse [37] [53] [42] [45].

2.1.2.1 La nucléation homogène

Intéressons-nous tout d'abord au phénomène de nucléation homogène, phénomène intervenant, notamment en haute atmosphère, lorsqu'une goutte est en suspension dans l'air. L'énergie libre de Gibbs de nucléation ΔG dans un volume de liquide surfondu représente la différence entre l'énergie totale de la phase liquide et celle de la phase solide comprenant le nucléus. Cette énergie correspond à celle nécessaire pour former l'interface solide/liquide. L'énergie libre de Gibbs ΔG de formation d'un nucléus sphérique de rayon R s'écrit [41] :

$$\Delta G = -\frac{4}{3} \pi R^3 \Delta G_f + 4 \pi R^2 \sigma_{SL} \quad (2.1)$$

avec ΔG_f l'énergie de fusion par unité de volume et σ_{SL} l'énergie interfaciale entre les phases liquide et solide. Si l'on fait l'hypothèse que les capacités thermiques des phases liquide et solide sont constantes avec la température, il est possible d'exprimer ΔG_f par [41] :

$$\Delta G_f = \frac{L \Delta T}{T_{sol}} \quad (2.2)$$

avec, L la chaleur latente de solidification par unité de volume et ΔT le degré de surfusion de la phase liquide, c'est-à-dire la différence entre la température de solidification du liquide et sa température pour $T < T_{sol}$. En fixant comme constant les valeurs de σ_{SL} , L , T et T_{sol} , il est possible de représenter l'évolution de l'énergie libre de Gibbs en fonction du rayon du germe solide R . La Figure 2.1 présente l'évolution de ΔG en fonction du rayon du germe solide créé : ΔG atteint un maximum pour un rayon critique qui sera noté R^* .

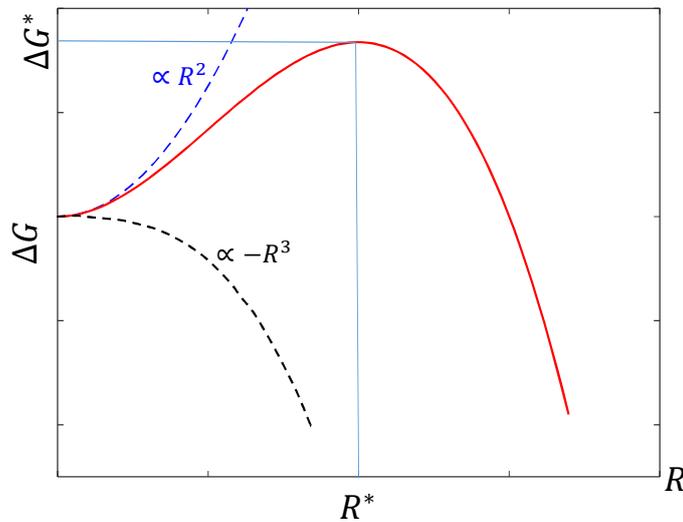


FIGURE 2.1 – Évolution de l'énergie libre de Gibbs en fonction du rayon du germe solide

En partant du principe que tout système tend à minimiser son énergie, il est possible de déterminer deux cas en fonction du rayon de germe solide :

- Si $R < R^*$, le système tend vers une dissolution du germe solide et l'état stable sera liquide.
- Si $R > R^*$ la nucléation peut débuter car l'état stable conduira à une augmentation du rayon R du germe solide.

Il est possible de déterminer le rayon critique R^* en dérivant l'équation 2.1 :

$$\frac{d(\Delta G)}{dR} = 0 \implies R^* = \frac{2 \sigma_{SL}}{\Delta G_f} \quad (2.3)$$

Il est intéressant, dans le cas de l'eau surfondue, de connaître l'effet de la température sur la valeur de R^* . D'après l'équation 2.2, il est possible d'obtenir une expression de R^* en fonction du degré de surfusion du liquide :

$$R^* = \left(\frac{2 \sigma_{SL} T_{sol}}{L} \right) \frac{1}{\Delta T} \quad (2.4)$$

D'après l'équation 2.4, la valeur du rayon critique conduisant à la nucléation au sein du liquide est inversement proportionnelle au degré de surfusion de ce dernier. Cela signifie que la probabilité de nucléation dans un liquide augmente avec son degré de surfusion.

2.1.2.2 La nucléation hétérogène

Dans le cas du phénomène de givrage, des gouttes d'eau surfondues impactent une surface à une température inférieure à 0 °C. Le phénomène de nucléation hétérogène est donc le mécanisme prépondérant, puisque la nucléation hétérogène se produit dès lors qu'il y a présence d'une interface entre le liquide et une surface solide ou présence d'impuretés, jouant le rôle d'agents nucléateurs, qui sont susceptibles de favoriser, ou au contraire, de défavoriser le phénomène de nucléation. La Figure 2.2 représente schématiquement la formation d'un germe solide sphérique de rayon R et de volume V_S dans un liquide déposé sur une surface. Une interface solide/surface de section A_{SP} se forme, créant ainsi une contrainte de tension superficielle σ_{SP} . Cette interface se substitue à l'interface entre le liquide et la surface ayant donc une section $A_{LP} = A_{SP}$ et générant une contrainte de tension superficielle σ_{LP} . Il est donc possible, en suivant la même démarche que dans le cas de la nucléation homogène, de déterminer l'énergie libre de Gibbs dans le cas hétérogène [41] :

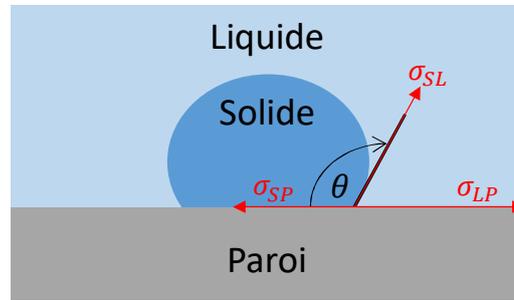


FIGURE 2.2 – Schéma de principe du phénomène de nucléation hétérogène

$$\Delta G_{het} = -V_S \Delta G_f + A_{SL} \sigma_{SL} + A_{SP} \sigma_{LP} \quad (2.5)$$

Dans le cas de la nucléation hétérogène, l'angle de contact θ (Figure 2.2) représentant la ligne où se rencontrent les phases liquide, solide et la surface (ligne triple) doit être pris en compte dans le calcul de l'énergie interne. Il a été montré qu'à l'équilibre cet angle de contact suit la loi de Young [51] :

$$\theta = \arccos\left(\frac{\sigma_{LP} - \sigma_{SP}}{\sigma_{SL}}\right) \quad (2.6)$$

Ceci de manière similaire à l'angle de contact définissant la mouillabilité d'une surface. Cet angle peut aussi définir la capacité d'une surface à favoriser ou non le phénomène de nucléation. Une surface ayant un angle de contact $\theta = 180^\circ$ ne favorisera pas la nucléation (analogue à une surface hydrophobe), alors qu'une surface avec un angle de contact de $\theta = 0^\circ$ favorisera fortement la formation de glace (analogue à une surface hydrophile). Il est possible d'exprimer l'équation 2.5 en fonction d'un facteur de forme $S(\theta)$ [51] variant entre [0 ; 1], exprimant la dépendance à l'angle de contact :

$$\Delta G_{het} = \left(-\frac{4}{3} \pi R^3 \Delta G_f + 4 \pi R^2 \sigma_{SL}\right) S(\theta) \quad (2.7)$$

avec :

$$S(\theta) = \frac{(1 - \cos(\theta))^2 (2 + \cos(\theta))}{4} \quad (2.8)$$

Dans le cas limite où $S(\theta) = 1$, l'équation de l'énergie libre de Gibbs dans le cas de la nucléation homogène est retrouvée, c'est à dire le cas d'une goutte sphérique sur une paroi hydrophobe. Cela signifie que si l'angle de contact prend une valeur de 90° , la surface ne favorise pas la formation de glace et l'énergie de tension superficielle entre la glace et la surface est la même que celle entre le liquide et la surface. Pour des valeurs de $S(\theta) < 1$, l'énergie libre de Gibbs diminue, ce qui caractérise des conditions favorables au phénomène de nucléation. En dérivant l'équation 2.7 en fonction du rayon du germe solide, il est possible de déterminer le rayon critique R^* de nucléation en fonction du degré de surfusion du liquide :

$$R^* = \left(\frac{2 \sigma_{SL} T_{sol}}{L} \right) \frac{1}{\Delta T} \quad (2.9)$$

Notons que les équations 2.4 et 2.9 sont identiques, ce qui signifie que la taille critique R^* ne dépend pas de la nature de la surface. Il est cependant possible de calculer l'énergie libre de Gibbs critique ΔG^* pour $R = R^*$:

$$\Delta G_{het}^* = S(\theta) \Delta G_{hom}^* \quad (2.10)$$

Ainsi, l'énergie libre de Gibbs critique est donc pondérée par la valeur de $S(\theta)$. Pour $S(\theta) < 1$, l'énergie critique ΔG^* nécessaire pour initier la nucléation est donc moins importante dans le cas hétérogène. Pour résumer, la nucléation aura tendance à se manifester pour des degrés de surfusion moins importants dans le cas hétérogène.

Dans le cas limite où θ tend vers 0 et donc S tend vers 0, l'énergie libre de Gibbs devient nulle, ce qui signifie que la nucléation intervient immédiatement. Dans la réalité, ce cas limite apparaît lorsque de la glace déjà présente sur la surface du substrat solide, jouant le rôle d'agent nucléant, va provoquer spontanément la solidification.

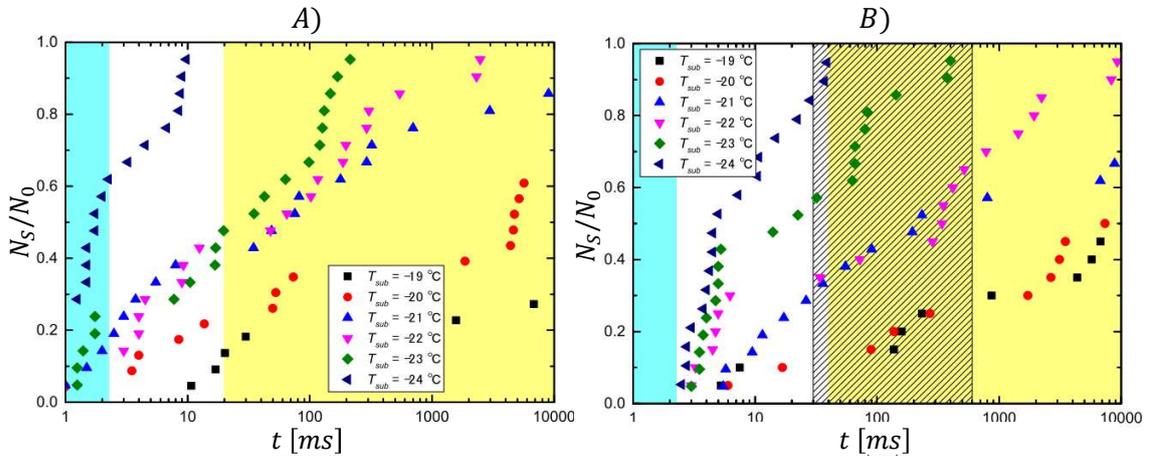


FIGURE 2.3 – Rapport entre le nombre de gouttes solides et le nombre de gouttes initiales en fonction du temps après impact pour différentes températures de surface pour une goutte à une température initiale de $+20^\circ\text{C}$ B) et -15°C A) pour un nombre de Weber de 140 [66].

La Figure 2.3 présente l'évolution du nombre de gouttes gelées relativement au nombre de gouttes initiales N_0 en fonction du temps pour différentes températures de goutte et de surface dans le cas d'une goutte impactant à un nombre de Weber de 140 [66] obtenu, à l'aide de mesure par ombroscopie. La Figure 2.3 B) représente des impacts réalisés avec une température de goutte de $+20^\circ\text{C}$ et La Figure 2.3 A) avec des gouttes surfondues à une température de -15°C . D'après l'équation 2.4, pour une température de substrat solide donnée, la proportion de gouttes gelées doit être plus grande dans le cas de la goutte surfondue. Ainsi, pour des températures de surfaces équivalentes, il est possible, pour

un instant donné, de constater une augmentation du nombre de gouttes gelées. En effet, pour une température du substrat solide de -19 °C , une proportion de 30% de gouttes gelées est obtenue dans le cas d'une goutte à $+20\text{ °C}$, tandis qu'une proportion de 50% est obtenue dans le cas de gouttes surfondues pour un temps après impact supérieur à 10 s. Ce constat peut être généralisé quel que soit la température du substrat illustrant ainsi l'augmentation de la probabilité de solidification avec le degré de surfusion du liquide.

La nucléation étant un phénomène stochastique dépendant intrinsèquement de l'agitation moléculaire, il est nécessaire de réaliser un grand nombre d'expériences pour obtenir un échantillon statistique convergent du phénomène stochastique étudié. La nucléation est un phénomène irréversible dès lors qu'un cristal de taille $R > R^*$ apparaît dans un volume liquide. Ce processus dépend d'un grand nombre de paramètres initiaux comme le volume du liquide [35], la température du liquide [66], la pureté de liquide [13] mais aussi du temps [66]. Il est possible de déterminer un taux de nucléation en analysant la nucléation d'un grand nombre de gouttes soumises aux mêmes conditions externes. Les études peuvent se décomposer en deux catégories :

- L'étude de la solidification d'un grand nombre d'échantillons soumis aux mêmes conditions [34].
- L'étude d'un unique échantillon soumis périodiquement aux mêmes conditions [6] [23] [70].

Deux types d'analyse des résultats peuvent être ensuite réalisés : une étude statistique et une étude singulière [62]. La première a objectif de rendre compte de l'effet stochastique dû à la temporalité du phénomène de nucléation. Elle permet de déterminer le taux de nucléation pour les cas de température de substrat solide imposé ou de rampes de refroidissement imposées. L'étude singulière est basée sur le principe que la nucléation est un phénomène ne dépendant que de la température du liquide, ce qui ne permet que l'étude du phénomène de nucléation homogène. L'étude statistique considère le temps comme le paramètre fondamental. Il convient donc d'utiliser ce type de traitement pour l'étude de phénomènes dynamiques comme l'impact de gouttes sur parois sous-refroidies. Notons que dans la suite une paroi sera considérée comme sous-refroidie dès lors que sa température sera inférieure à la température de solidification de l'eau ($T_{sol} = 0\text{ °C}$). L'étude singulière permet de déterminer la capacité d'un matériau à retarder ou favoriser le phénomène de nucléation en analysant la température critique de nucléation.

2.1.2.3 Modèle statistique

L'étude statistique permet l'analyse d'expériences de nucléation homogène et hétérogène. Considérons un échantillon composé de N_0 gouttes de même volume V_g . La probabilité de nucléation d'une goutte entre l'intervalle de temps $[t + dt]$ dépend du volume de la goutte et du taux de nucléation de celle-ci. La probabilité de nucléation d'une goutte P_{nucl} peut donc s'écrire en fonction du nombre de gouttes gelées $N_S(t)$ à un instant t [1] :

$$P_{nucl}(V_g, t) = \frac{N_S(t)}{N_0} \quad (2.11)$$

L'instant initial correspond au moment où toutes les gouttes sont liquides ($\frac{N_S(t)}{N_0} = 0$). Dans le cas de la nucléation homogène, le nombre de gouttes gelées à un instant $t + dt$ dépend du nombre de gouttes gelées à l'instant t ainsi que du taux de nucléation homogène d'une goutte (J_{hom}) à la température T :

$$N_S(t + dt) = N_S(t) + [N_0 - N_S(t)] V_g J_{hom}(T) dt \quad (2.12)$$

Il est possible de normaliser l'équation précédente par le nombre initial de gouttes N_0 qui conduit à la probabilité de nucléation d'une goutte à l'instant $t + dt$:

$$P_{nucl}(V_g, t + dt) = P_{nucl}(V_g, t) + [1 - P_{nucl}(V_g, t)] V_g J_{hom}(T) dt \quad (2.13)$$

soit encore :

$$P_{nucl}(V_g, t + dt) = P_{nucl}(V_g, t) + \frac{d}{dt} P_{nucl}(V_g, t) dt \quad (2.14)$$

Le taux de goutte solide à un instant t est alors :

$$\frac{N_S(t)}{N_0} = 1 - e\left(-\int_0^t V_g J_{hom}(T) dt\right) \quad (2.15)$$

Dans le cas où la température est maintenue constante, l'équation précédente se simplifie :

$$\frac{N_S(t)}{N_0} = 1 - e^{-V_g J_{hom}(T) t} \quad (2.16)$$

Il est possible de déterminer le nombre de gouttes liquides à un instant t en se servant de l'équation précédente et se rappelant qu'à tout instant :

$$N_S(t) + N_L(t) = N_0 \quad (2.17)$$

Expérimentalement, les expériences consistent bien souvent à refroidir un ensemble de gouttes d'une température T_0 à une température T^* avec un gradient de température $\frac{dT}{dt} = \dot{T}$ constant.

$$\frac{N_S(t)}{N_0} = 1 - e\left(-\frac{V_g}{\dot{T}} \int_{T_0}^{T^*} J_{hom}(T) dt\right) \quad (2.18)$$

Le taux de solidification (statistique) d'une goutte w a pour expression :

$$w = -\frac{1}{N_L} \frac{dN_L}{dt} = J_{hom} V_g \quad (2.19)$$

Ce taux de solidification dépend donc du volume des gouttes ainsi que du taux de nucléation homogène d'une goutte. Également, dans ce type d'expériences, il est possible de faire l'hypothèse que la probabilité de solidification d'une goutte est indépendante de celle des autres gouttes de l'ensemble étudié [20]. Il est ainsi possible de modéliser la probabilité de l'apparition de N_{nu} site de nucléation dans une goutte à un instant t , par une loi du type Poisson :

$$P(N_{nu}, t) = \frac{(V_g J_{hom}(T))^{N_{nu}} e^{-V_g J_{hom}(T)}}{N_{nu}!} \quad (2.20)$$

Tout ce qui a été décrit précédemment vise à l'analyse de résultats dans le cas de la nucléation homogène. Dans le cas de la nucléation hétérogène, la même approche peut être utilisée. Le taux de gouttes solides formées à un instant t dépend maintenant du taux de nucléation hétérogène J_{het} et du volume d'une goutte.

$$\frac{N_S(t)}{N_0} = 1 - e^{-V_g J_{het}(T) t} \quad (2.21)$$

Et comme précédemment, dans le cas d'un refroidissement avec une rampe de température constante, il est possible d'écrire :

$$\frac{N_S(t)}{N_0} = 1 - e\left(-\frac{V_g}{\dot{T}} \int_{T_0}^{T^*} J_{het}(T) dt\right) \quad (2.22)$$

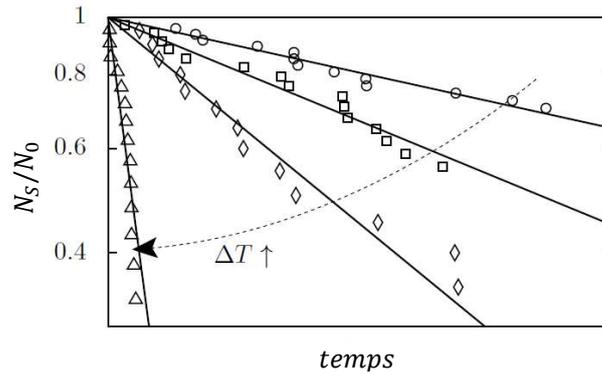


FIGURE 2.4 – Décroissance de la proportion de gouttes liquides en fonction du temps après impact pour différentes températures initiales de gouttes [51]

L'expérience réalisée par Schremb et al. [51] (Figure 2.4) représente l'évolution de la proportion de gouttes liquides en fonction du temps après impact pour une goutte à différentes températures initiales impactant un substrat solide à une température inférieure à celle de solidification du liquide. Cet exemple permet d'illustrer la décroissance du nombre de gouttes gelées en fonction du temps à une température donnée. Cette décroissance est prévue par les équations 2.16 et 2.22 dans les cas des phénomènes de nucléation homogène et hétérogène. Une décroissance du nombre de gouttes liquides plus rapides au cours du temps, avec l'augmentation du degré de surfusion, peut également être observée. Ce résultat est conforme à la théorie du phénomène de nucléation et avait été observé sur la Figure 2.3. Une modélisation basée sur les équations 2.16 et 2.22 permet une détermination du taux de nucléation w en fonction de la température des gouttes. Une augmentation du taux de nucléation est observée avec le degré de surfusion. D'après l'équation 2.19, une dépendance du taux de nucléation au volume de la

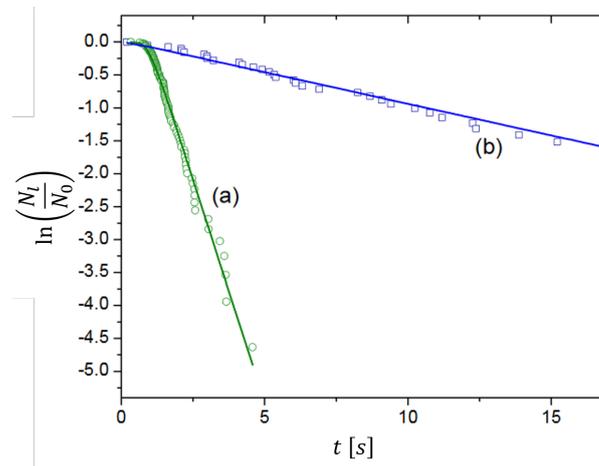


FIGURE 2.5 – Évolutions de la décroissance du nombre de gouttes liquide au cours du temps pour des gouttes ayant un volume de $4,93 \cdot 10^5 \mu m^3$ (a) et $2,87 \cdot 10^4 \mu m^3$ (b) [14].

goutte peut-être prédite. En effet, des expériences menées sur des gouttes de différents volumes ($V_g = 4,93 \cdot 10^5 \mu m^3$ et $V_g = 2,87 \cdot 10^4 \mu m^3$) en lévitation acoustique dans un environnement froid ont permis de valider cette dépendance. Les gouttes n'étant en contact avec aucun solide, le phénomène de nucléation rencontré est bien celui de nucléation homogène. La Figure 2.5 représente l'évolution du nombre de gouttes liquides en lévitation acoustique dans de l'air à une température de $-36,1 \text{ }^\circ\text{C}$ et pour les deux volumes de goutte

différents. Un taux de nucléation de $1,5 \text{ s}^{-1}$ est obtenu pour les gouttes de $49 \mu\text{m}$ de diamètre et de $8,2 * 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ pour des gouttes de $19 \mu\text{m}$ de diamètre. Le taux de nucléation est donc quasi proportionnel avec le volume car il est dans cet exemple 16,5 fois plus grand pour un volume 17,42 fois plus grand.

2.1.2.4 Modèle de nucléation singulière

L'analyse d'expérience par un modèle de nucléation singulière est réservée à l'étude du phénomène de nucléation hétérogène. Ce type d'analyse est fortement utilisée pour la caractérisation d'une surface destinée à favoriser ou non le phénomène de nucléation ou encore pour caractériser l'effet d'un agent nucléant dissout dans un liquide sur la nucléation [67] [13] [71]. Il est possible de calculer une densité de nucléation η_{si} dépendant de la température du liquide [51]. Des recherches menées sur des données atmosphériques ont permis de mettre en évidence la dépendance de ce paramètre avec la température du liquide [68] : η_{si} augmente lorsque le degré de surfusion du liquide augmente.

$$\eta_{si}(\Delta T) = \eta_0 e^{\left(\frac{\Delta T}{\tau_0}\right)} \quad (2.23)$$

Les paramètres η_0 et τ_0 sont des constantes. En se basant sur le fait que le nombre de gouttes liquide à une température T suit une loi de type Poisson, il est possible d'écrire que :

$$\frac{N_L(\Delta T)}{N_0} = e^{(-\eta_{si}(\Delta T) A_{moui})} \quad (2.24)$$

L'équation précédente montre ainsi la décroissance du nombre de gouttes liquides avec l'augmentation du degré de surfusion ou avec l'augmentation de l'interface liquide/solide. Il est possible, à partir d'expériences, de déterminer les paramètres η_{si} et donc de caractériser l'effet de l'ajout d'un élément nucléant dans le liquide. La Figure 2.6 est issue de

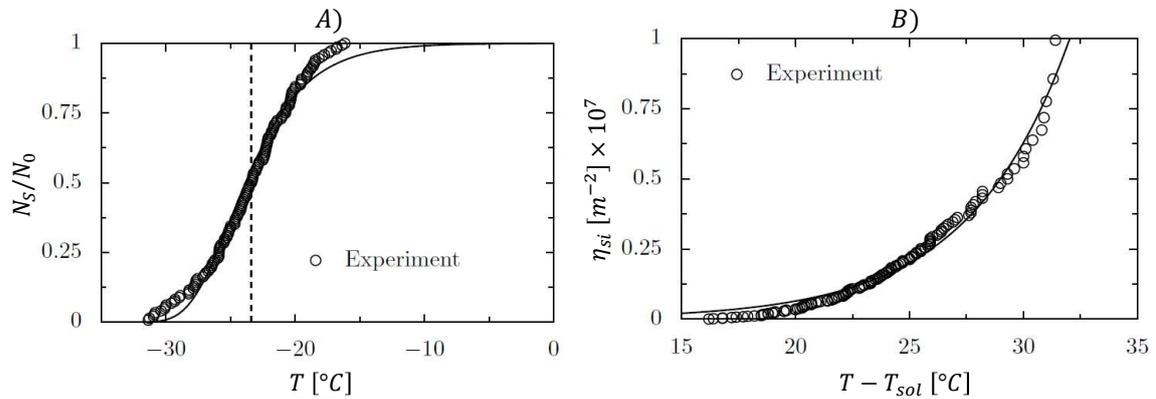


FIGURE 2.6 – A) évolution de la proportion de goutte sessile liquide déposés sur un substrat solide en fonction de la température du substrat. B) évolution du taux de nucléation η_{si} en fonction du degré de surfusion obtenus à partir de la courbe de gauche [51]

résultats de travaux de Schremb et al. [51]. L'expérience consiste à refroidir un ensemble de 148 gouttes sessiles de volume de $1 \mu\text{L}$, déposées sur une surface en aluminium et subissant un refroidissement de $5^{\circ}/\text{s}$. Une diminution du nombre de gouttes liquides avec l'augmentation du degré de surfusion peut être constatée (Figure 2.6 A). Au vu de ces résultats, il est possible de déterminer une température critique de nucléation, lorsque la moitié des gouttes sont passées de l'état liquide à l'état solide. Ici, pour le cas d'une surface en aluminium et des gouttes de $1 \mu\text{L}$ de volume, cette température critique est

$T_{cri} = -23,4$ °C. D'après l'équation 2.24, il est possible de déterminer l'évolution de η_{si} en fonction du degré de surfusion du liquide (Figure 2.6 B)). L'augmentation de η_{si} avec la température permet donc de caractériser la température critique de nucléation de l'eau en contact avec une surface d'aluminium.

Dans le domaine de l'aviation, un intérêt particulier est porté sur la capacité d'une surface à favoriser ou non le phénomène de nucléation. C'est donc pour cela que le modèle de nucléation singulière est très utilisé pour aider à déterminer des matériaux réduisant le phénomène d'accrétion de givre. L'utilisation de parois superhydrophobes permet de retarder le phénomène de nucléation hétérogène en augmentant l'angle de contact θ . Récemment l'utilisation de surfaces nano-texturées a permis d'élaborer des matériaux permettant de supprimer complètement le phénomène de nucléation [54]. La Figure 2.7 présente des expériences d'impact de gouttes surfondues sur une paroi sous-refroidie, dont la nature du matériau la constituant est modifiée. Le but recherché est d'étudier l'effet de l'angle de contact sur le taux de solidification d'une goutte surfondue à une température de -18 °C impactant une paroi à une température de -15 °C. L'angle de contact varie de 60° (symbole gris) à 130° (symbole rouge) pour laquelle le taux de solidification est nulle. L'intérêt de cette expérience est de mettre en avant un nouveau matériau nano-texturé, le matériaux Janus (en rouge sur la Figure 2.7). Lorsque la goutte est en régime de rebond, ce matériau permet de réduire considérablement les temps d'étalement et de contraction des gouttes surfondues impactant sur la paroi. Il en résulte une goutte en régime de rebond, qui ne gèle pas.

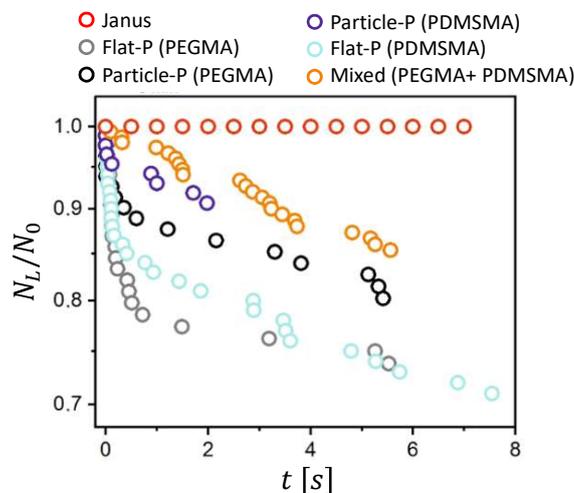


FIGURE 2.7 – Évolution temporelle du nombre de goutte liquide impactant une surface solide constituée de matériaux différents pour une température de -16 °C [54].

Dans le domaine des sports d'hiver, l'objectif est différent. Le but est de trouver des agent nucléateurs qui, une fois dissous dans l'eau, permettront de favoriser le phénomène de nucléation. L'élément glaçogène le plus utilisé est la bactérie *Pseudomonas syringae* [13] [71]. Cette bactérie permet d'augmenter la probabilité de nucléation de l'eau pour des degrés de surfusion faible. La Figure 2.8 représente des expériences menées sur des gouttes déposées sur une surface sous-refroidie en faisant varier la concentration de *Pseudomonas syringae*. L'objectif ici est de mettre en évidence l'influence de la bactérie sur la température de nucléation de l'eau. L'ajout de la molécule permet de passer d'une température de nucléation de -19 °C à une température de nucléation de $-2,3$ °C. Cette molécule est par exemple très utilisée pour la génération de neige artificielle.

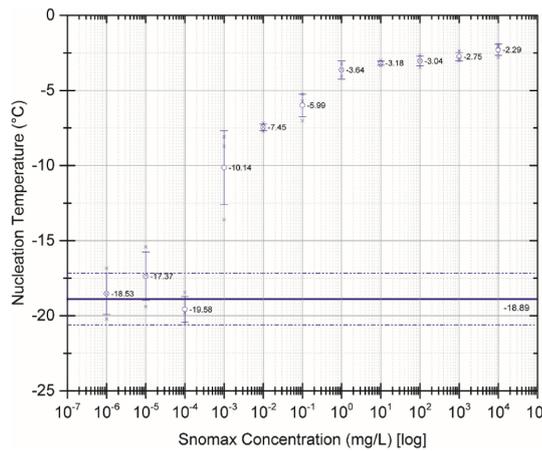


FIGURE 2.8 – Température de nucléation de l’eau en fonction de la concentration de Snomax (*Pseudomonas syringae*) [13]

2.1.3 La solidification de l’eau

Le phénomène de nucléation est un phénomène irréversible qui se poursuit par la solidification du liquide. La solidification complète du liquide peut débuter dès lors qu’un cristal de glace de rayon supérieur au rayon critique apparaît dans le liquide. Deux types de solidifications différentes peuvent être distinguées : la recalescence et la solidification planaire. La recalescence se caractérise par la solidification d’un liquide surfondu qui conduit à une déstabilisation du front de glace. Ce mode de solidification est caractérisé par une remontée brutale de la température jusqu’à la température de solidification du liquide et par une solidification partielle du liquide. La solidification planaire d’un liquide intervient lorsque la solidification se déroule à la température de solidification du liquide. Ce mode de changement de phase se caractérise par un front de solidification plan et stable. Ces deux types de solidification se déroulent généralement simultanément : la Figure 2.9 présente une expérience menée sur la solidification d’une goutte sessile [31] sur un substrat solide à une température de -15 °C . Cette expérience permet de distinguer les deux phases de solidification : la phase de recalescence s’étalant sur 2 ms et la solidification planaire s’étalant sur 300 ms. Dans le cas de la solidification planaire, des modèles permettant la détermination de l’évolution du front de solidification au cours du temps existent et seront présentés ultérieurement.

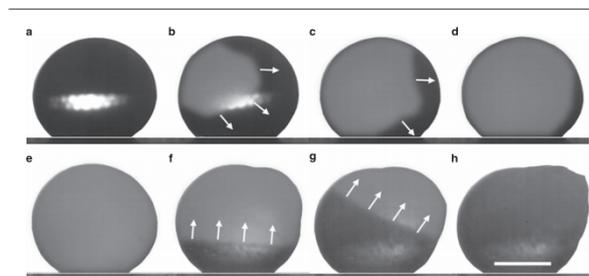


FIGURE 2.9 – Solidification d’une goutte sessile a-d) phase de recalescence. e-h) front de solidification plan. [31]

2.1.3.1 La recalescence

Dans le cas de la solidification de métaux, le phénomène de recalescence, caractérisé par l'apparition de dendrites solide dans le milieu solide est connu depuis plusieurs décennies. En effet, la forme des dendrites peut avoir une forte influence sur les propriétés mécaniques du matériaux [41]. Le changement de phase d'un corps pur se déroule à la température de solidification de ce dernier. Dans le cas de l'eau surfondue, le liquide doit tout d'abord remonter à sa température de solidification. Le nombre de Stefan, représentant le rapport entre la chaleur latente et la chaleur sensible dans un système à changement de phase liquide/solide, est en général introduit. En supposant que le liquide s'élève instantanément à sa température de solidification, le nombre de Stefan (St) représentera aussi la fraction solide formée pendant la phase de recalescence. La fraction solide (χ_S) formée lors de la phase de recalescence est donc donnée par :

$$\chi_S = \frac{C_{pL} \rho_L (T_{sol} - T)}{\rho_S L} = \frac{C_{pL} \rho_L \Delta T}{\rho_S L} = St \frac{\rho_L}{\rho_S} \quad (2.25)$$

Cette formulation du problème a été utilisée dans de nombreux codes numériques afin d'estimer la fraction de glace présente dans le matériau suite à la phase de recalescence [17] [72] [24] [59] [16]. Afin de valider ce modèle, Hindmarsh et al. [29] ont réalisé des mesures d'Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire (IRMN) appliquées à des gouttes surfondues. L'avantage de l'IRMN est de pouvoir relier directement la fraction de glace dans le matériau au signal IRMN. La Figure 2.10 présente la fraction solide formée après la phase de recalescence pour différents degrés de surfusion de l'eau. Une comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats théoriques obtenus à l'aide de l'équation 2.25 est également présentée. Le modèle permet une bonne estimation de la fraction de

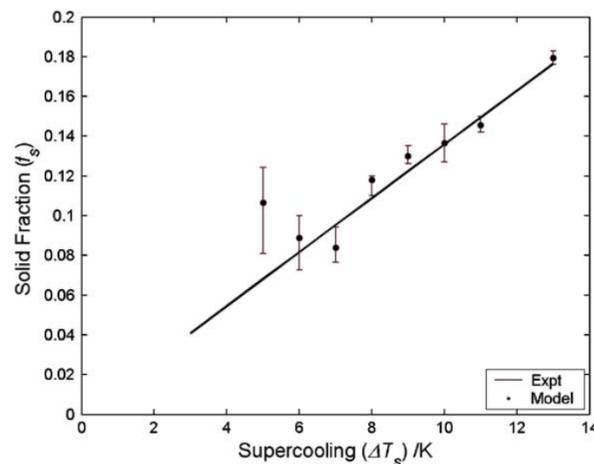


FIGURE 2.10 – Évolution de la fraction de glace en fonction du degré de surfusion avant recalescence [29].

glace pour des degrés de surfusion supérieur à 6 °C (c'est à dire pour des températures d'eau inférieure à -6 °C). Notons par ailleurs que pour des degrés de surfusion de 10 °C, une fraction de glace proche de 14% est prédite par la théorie. Dans la troposphère, les gouttes peuvent se trouver à des températures jusque -40 °C, ce qui correspondrait, par extrapolation des données précédentes, à une fraction de glace d'environ 48% après la phase de recalescence.

De récents travaux menés par Schremb et al. ont permis de mettre en évidence les différents modes de solidification. Par exemple, la Figure 2.11 A) présente les 5 modes de

solidification de l'eau en fonction du degré de surfusion [52]. Cette étude a été menée sur des gouttes d'eau déposées dans une cellule de Hele-Shaw qui est refroidie progressivement. Les vitesses v_f de front de solidification mesurées sont présentées à la Figure 2.11

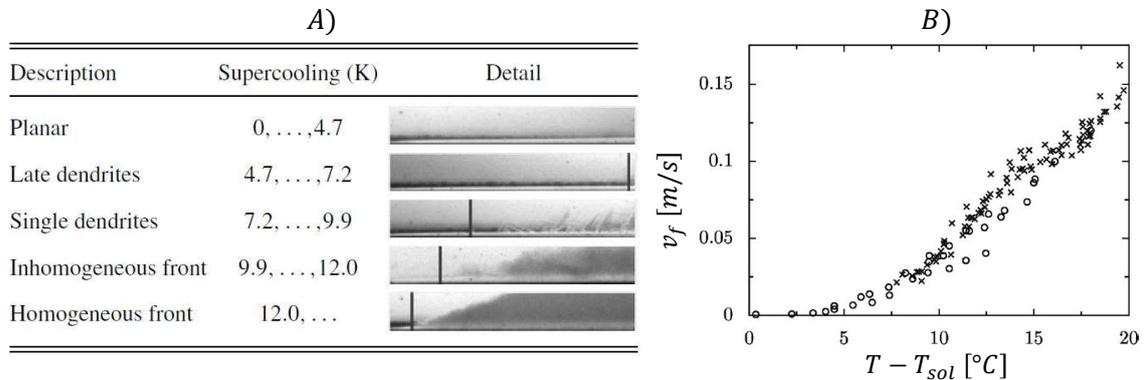


FIGURE 2.11 – A) différents modes de solidification de l'eau en fonction du degré de surfusion et B) évolution de la vitesse du front de recalescence en fonction du degré de surfusion du liquide [52].

B). Pour de faibles degrés de surfusion ($\Delta T < 4.7$ °C), le front de solidification est plan et stable. Le front de solidification se déplace de manière normale à la surface avec une vitesse, proche de $0,001$ $m.s^{-1}$. Pour des degrés de surfusion compris entre $4,7$ °C et $7,2$ °C, le front de solidification est instable et la propagation de dendrites à des vitesses plus importantes que précédemment ($v_f = 0,025$ $m.s^{-1}$) est constatée. Pour des degrés de surfusion encore plus grands ($7,2$ °C $< \Delta T < 9,9$ °C), un nombre plus important de dendrites apparaissent dans le milieu liquide. Ces dendrites se déplacent à des vitesses de l'ordre de $0,04$ $m.s^{-1}$. Dans le cas de degrés de surfusion compris entre $9,9$ °C et 12 °C, il est possible d'observer l'apparition d'un réseau de dendrites dans le milieu. Dans ce cas, l'orientation des dendrites est aléatoire, ce qui conduit à une distribution hétérogène de la glace dans le liquide. La vitesse de déplacement de ce front hétérogène est de l'ordre de $0,055$ $m.s^{-1}$. Enfin, pour des degrés de surfusion supérieurs à 12 °C, les dendrites sont toutes parallèles entre elles, ce qui permet la formation d'une couche de glace homogène dans l'espace après la phase de recalescence. L'ensemble des dendrites évoluent à une vitesse supérieure à $v_f > 0,08$ $m.s^{-1}$.

2.1.3.2 Le modèle de Stefan

Le problème de Stefan est un modèle mathématique utilisé pour résoudre des problèmes de changement de phase avec une interface mobile. Il est donc possible d'appliquer ce modèle dans le cas de la solidification de l'eau [1]. Faisons dans un premier temps l'hypothèse que la masse volumique de la phase liquide est égale à celle de la phase solide ($\rho_L = \rho_S$). Deux types de problèmes de Stefan peuvent être rencontrés et résolus : le problème de Stefan à une phase et celui à deux phases. Nous présenterons ici ces deux problèmes.

Problème de Stefan à une phase

Le problème de Stefan à une phase est utilisé lorsque le champ thermique n'est résolu que dans une seule phase (phase liquide), la température de la seconde étant considérée constante et égale à la température de solidification. Ici, nous ne résoudrons donc l'équation de la chaleur que de la phase liquide et nous considérerons que la phase solide est homogène et à une température constante égale à T_{sol} (Figure 2.12).

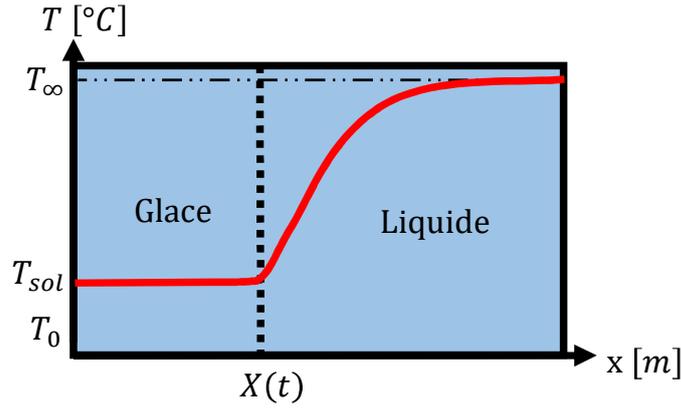


FIGURE 2.12 – Champ de température dans la glace et le liquide dans le cas du problème de Stefan à une phase.

Considérons un problème 1D composé d'un milieu semi-infinie $T_{sol} \leq x \leq \infty$ initialement liquide à une température T_∞ . Une température constante T_∞ est imposée en $x = +\infty$ et une température $T_0 \leq T_{sol}$ est imposée en $x = 0$ à $t = 0$. Notons L la chaleur latente de changement d'état, $X(t)$ la position de l'interface liquide/solide à l'instante t . Le problème consiste à trouver l'expression de $T(x, t)$ et $X(t)$ tel que [1] :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}, \quad x > X(t), \quad t > 0 \text{ (zone liquide)} \quad (2.26)$$

avec D_L la diffusivité thermique de la phase liquide. Le front de solidification est supposé se propager à la température de solidification du liquide :

$$T(X(t), t) = T_{sol} \quad t \geq 0 \quad (2.27)$$

De plus, nous supposons que la glace se trouve à sa température de solidification :

$$T(x, t) = T_{sol} \quad x \leq X(t) \quad (2.28)$$

La condition de Stefan à l'interface liquide/glace s'écrit à l'aide de la conservation du flux conductif avec le flux de changement de phase :

$$-\rho L \frac{\partial X}{\partial t} = k_S \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{X(t)^-}, \quad t > 0 \quad (2.29)$$

avec k_S la conductivité thermique de la glace. Le milieu étant initialement liquide, il est possible d'écrire que :

$$X(t=0) = 0 \quad (2.30)$$

La température en $x = 0$ est imposée et vaut :

$$T(0, t) = T_0 \leq T_{sol} \quad (2.31)$$

Ce problème se ramène à la résolution de l'équation transcendante en ζ suivante [1] :

$$e^{(\zeta^2)} \operatorname{erfc}(\zeta) = \frac{St_L}{\zeta \sqrt{\pi}} \quad (2.32)$$

avec St_L le nombre de Stefan de la phase liquide :

$$St_L = \frac{C_{pL} (T_{sol} - T_\infty)}{L} \quad (2.33)$$

La position de l'interface liquide/solide au cours du temps est donc :

$$X(t) = 2 \zeta \sqrt{D_S t} \quad (2.34)$$

avec D_S la diffusivité thermique de la phase solide. La vitesse du front de solidification v_f s'obtient donc par dérivation de la position de l'interface en fonction du temps.

$$v_f = \frac{dX(t)}{dt} = \zeta \sqrt{\frac{D_S}{t}} \quad (2.35)$$

Ainsi, la vitesse du front de solidification est infinie à $t = 0$ et décroît avec le temps. De la même manière, il est possible d'obtenir la température de la phase liquide par :

$$T_L(x, t) = T_0 + (T_{sol} - T_0) \frac{\operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{D_L t}}\right)}{\operatorname{erfc}(\zeta)} \quad (2.36)$$

Cette équation n'étant valable que pour $x > X(t)$ et $t > 0$. Le problème de Stefan à une phase ne résout donc que la température de la phase liquide, comme indiqué précédemment. Intéressons-nous maintenant au cas du problème de Stefan à deux phases.

Problème de Stefan à deux phases

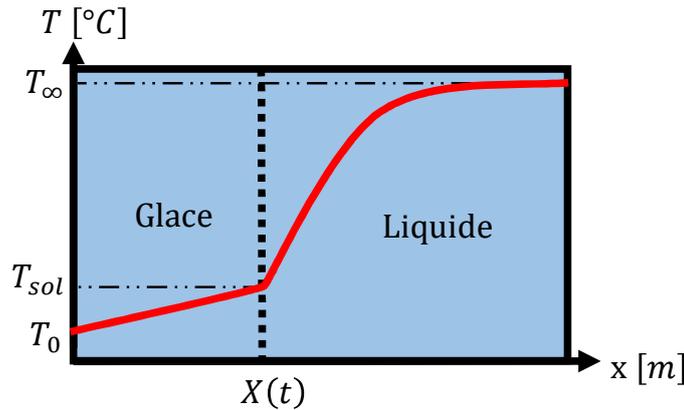


FIGURE 2.13 – Champ de température dans la glace et le liquide dans le cas du problème de Stefan à deux phases.

Dans le cas du problème de Stefan à deux phases, la chaleur latente de changement de phase est dissipée dans les phases liquide et solide. La température de la phase solide varie donc avec le temps. De la même manière que précédemment, on considère un milieu semi-infini $0 \leq x \leq \infty$ liquide à l'instant initial. À $t = 0$, une température $T_0 < T_{sol}$ est imposée en $x = 0$ et une température $T_\infty > T_{sol}$ en $x = +\infty$ (Figure 2.13). Nous considérerons, comme précédemment, que les masses volumiques des phases liquide et solide sont égales. Le problème mathématique à résoudre est le suivant [1] :

Dans la phase liquide :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}, \quad x > X(t), \quad t > 0 \quad (2.37)$$

Dans la phase solide :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_S \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}, \quad 0 < x < X(t), \quad t > 0 \quad (2.38)$$

Condition de Stefan :

$$-\rho L \frac{\partial X}{\partial t} = -k_S \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{X(t)^-} + k_L \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{X(t)^+}, \quad t > 0 \quad (2.39)$$

Condition initiales :

$$T(x, 0) = T_\infty > T_{sol}, \quad x > 0 \quad \text{et} \quad X(0) = 0 \quad (2.40)$$

Conditions aux limites :

$$T(0, t) = T_0 \leq T_{sol}, \quad T(\infty, t) = T_\infty \quad (2.41)$$

Comme précédemment, ce problème peut se ramener à une équation transcendante en ζ de la forme :

$$\frac{St_S}{e^{(\zeta^2)} \operatorname{erf}(\zeta)} + \frac{St_L}{v e^{(v^2 \zeta^2)} \operatorname{erfc}(v \zeta)} = \zeta \sqrt{\pi} \quad (2.42)$$

Avec $v = \sqrt{\frac{D_S}{D_L}}$ la racine carrée du rapport des diffusivités thermiques des phase solide et liquide et St_I le nombre de Stefan de la phase solide définit ci-dessous :

$$St_S = \frac{C_{pS} (T_{sol} - T_0)}{L} \quad (2.43)$$

De la même manière que précédemment, il est possible de déterminer la position de l'interface liquide/solide au cours du temps.

$$X(t) = 2 \zeta \sqrt{D_S t} \quad (2.44)$$

Par dérivation de l'équation 2.44 par rapport au temps, une expression de la vitesse du front de solidification peut être obtenue :

$$v_f = \frac{dX(t)}{dt} = \zeta \sqrt{\frac{D_S}{t}} \quad (2.45)$$

La distribution de température dans les phase liquide et solide peuvent s'obtenir comme suit :

$$T_S(x, t) = T_0 + (T_{sol} - T_0) \frac{\operatorname{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{\zeta_s t}}\right)}{\operatorname{erf}(\zeta)}, \quad 0 < x < X(t) \quad t > 0 \quad (2.46)$$

$$T_L(x, t) = T_\infty + (T_{sol} - T_\infty) \frac{\operatorname{erfc}\left(\frac{x}{2\sqrt{\zeta_l t}}\right)}{\operatorname{erfc}(v \zeta)}, \quad x > X(t) \quad t > 0 \quad (2.47)$$

Notons également que les équations résolues ici sont valables pour le cas de la solidification d'un liquide à une température égale à la température de solidification ainsi que pour des masses volumiques des phases liquide et solide égales. Dans le cas de la surfusion, les équations précédentes restent valables, mais il est nécessaire d'introduire une condition supplémentaire pour amorcer le début de la solidification à un instant t donnée [1].

2.1.3.3 Effet de la différence de densité

La modélisation du front de solidification par le problème de Stefan est basée selon l'hypothèse d'égalité entre les masses volumiques des deux phases. En réalité, la masse volumique de la phase liquide est supérieure à celle de la phase solide. Il en résulte une dilatation volumique lors de la solidification. Cette augmentation de volume est de l'ordre de 9%. La Figure 2.14 présente l'évolution de la hauteur d'une goutte en fonction du rayon pour une expérience de solidification menée sur une goutte de volume initial de 20 μL à une température de 20 $^{\circ}\text{C}$ et déposée sur une paroi à une température de $-18,4^{\circ}\text{C}$. Une augmentation du volume de 9% est observée entre l'instant initial (goutte liquide) et l'instant où la solidification est complète ($t=11,7$ s). Sur la Figure 2.9 (h), il est pos-

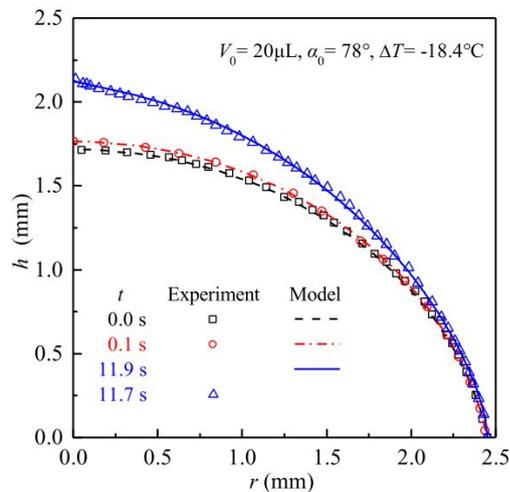


FIGURE 2.14 – Augmentation de volume d'une goutte après solidification. [74]

sible d'observer l'apparition d'une singularité à la fin de la solidification de la goutte. La forme finale d'une goutte qui gèle sur une surface sous-refroidie a fait l'objet de nombreux travaux de recherche. Dans certains cas, une goutte d'eau déposée sur une plaque sous-refroidie gèle et une "pointe" au sommet de la goutte apparaît comme l'illustre la figure 2.15 (A,B,C). Ce phénomène est tout à fait fascinant puisque la pointe apparaît dans la partie supérieure de la goutte, zone correspondant à la fin de la phase de solidification. De plus, la tension superficielle du liquide tend généralement à lisser tout type de singularités sur des interfaces. La formation de la pointe est en fait due à la dilatation volumique de l'eau lors de la solidification. En modélisant le front de solidification par un front planaire, il est possible de reproduire la forme pointue de la goutte en fin de solidification [3] [56]. Cependant, ces théories ne prédisent une singularité que lorsque le rapport entre les densités solide et liquide est inférieur à 0,75. Dans le cas de l'eau, le rapport de densité est de 0,92. Cette théorie ne permet donc pas d'expliquer l'apparition de goutte conique dans le cas particulier de l'eau. Afin de résoudre ce problème, Marin et al [39] ont proposé une explication du phénomène basée sur la géométrie du front de solidification : il a été montré expérimentalement, et théoriquement, que le front de solidification développe une forme sphérique qui se termine perpendiculairement à l'interface solide/air. La Figure 2.15 D) représente une expérience de solidification d'une goutte observée dans une cellule de Hele-Shaw : il a été possible de mettre en évidence le caractère sphérique du front de solidification. À l'aide de cette expérience, il est possible d'observer que le front présente une forme convexe au début de la solidification, tandis qu'aux derniers instants, la courbure est inversée vers une géométrie concave. Introduisons ici différents angles :

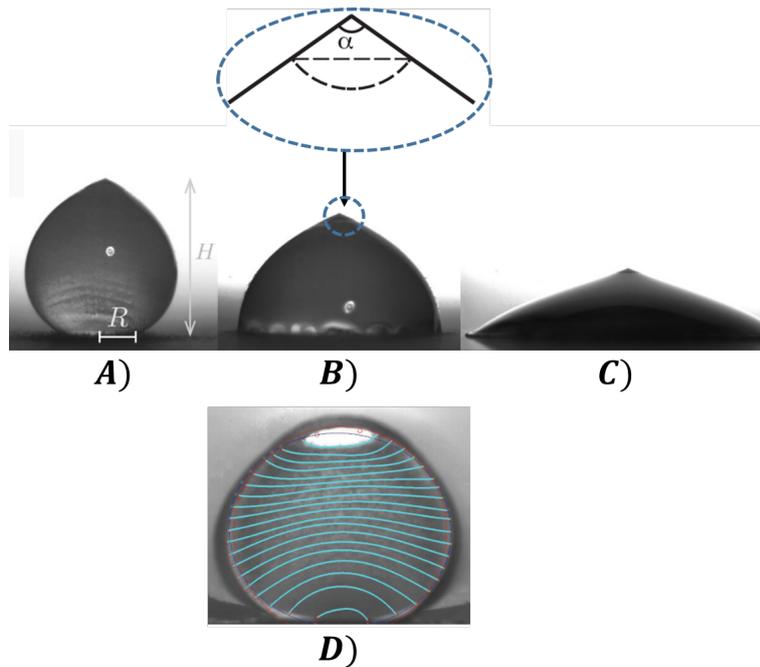


FIGURE 2.15 – Observation de la "pointe" en fin de phase de solidification avec un angle de cône α . L'expérience a été menée pour différents rapports d'aspect H/R et différentes températures de surface T_0 . Cas A) $\alpha = 147^\circ, T_0 = -34,4^\circ\text{C}$ et $H/R = 4,96$. Cas B) $\alpha = 141^\circ, T_0 = -44,1^\circ\text{C}$ et $H/R = 1,16$. Cas C) $\alpha = 139^\circ, T_0 = -20,8^\circ\text{C}$ et $H/R = 0,46$. D) correspond au front de glace dans une goutte observée dans une cellule de Hele-Shaw [39].

soit γ l'angle entre le front de solidification et le bord de la goutte (Figure 2.16) et α l'angle du cône en fin de solidification (Figure 2.15 B)). Des calculs géométriques permettent de

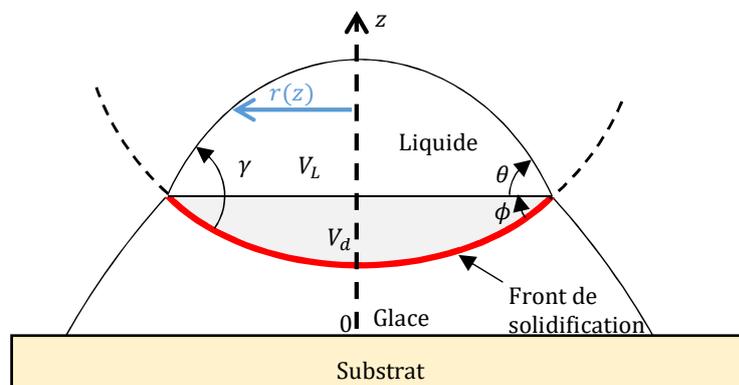


FIGURE 2.16 – Schéma indiquant les différentes grandeurs intervenant durant la solidification d'une goutte d'eau

prédire l'angle de la pointe et sa formation pour tout rapport de densité. Cette théorie est basée sur l'hypothèse selon laquelle la pointe est formée par un mécanisme quasi-statique ainsi que par un front de solidification sphérique. En utilisant la conservation de la masse, il est possible d'écrire que :

$$\frac{d}{dz}(V_L + \psi V_S) = 0 \quad (2.48)$$

avec $V_{L/S}$ les volumes des parties liquide et solide, ψ le rapport de densité entre les phases liquide et solide. Le volume total de liquide peut-être décomposé en une calotte sphé-

rique d'angle θ et un volume inférieur V_d (Figure 2.16). Les volumes liquide et solide sont donc :

$$V_L = r^3 f(\theta) + V_d, \quad V_S = -V_d + \int_0^z dz' \pi r(z')^2 \quad (2.49)$$

avec $r(z)$ le rayon local et $\theta(z)$ l'angle de la goutte gelée. La géométrie d'une calotte sphérique permet d'établir :

$$f(\theta) = \frac{\pi}{3} \left(\frac{2 - 3\cos(\theta) + \cos^3(\theta)}{\sin^3(\theta)} \right) \quad (2.50)$$

Afin de fermer le problème, une expression de V_d est nécessaire. Pour cela, il est possible d'utiliser le fait que le front développe une forme sphérique avec un angle inférieur $\phi = \gamma - \theta$ de telle sorte que le volume inférieur est :

$$V_d = r^3 f(\gamma - \theta) \quad (2.51)$$

Il est ainsi possible en utilisant les équations précédentes de déterminer une équation pour $r(z)$. Au niveau de la singularité, θ suit la loi :

$$f(\gamma - \theta) + f(\theta) = \psi \left[f(\gamma - \theta) + \frac{\pi}{3} \tan(\theta) \right] \quad (2.52)$$

Connaissant l'angle θ , il est possible, pour tout rapport de densité, de prédire l'angle α de la pointe par :

$$\alpha = \pi - 2\theta \quad (2.53)$$

Afin de prédire l'angle α de la pointe, la connaissance des angles θ ou γ est primordiale. Dans le cas de gouttes et de fronts de solidification sphériques, il est impossible de déterminer α par les méthodes usuelles d'ombroscopie. La Figure 2.17 présente le résultat de mesure de l'angle γ dans le cas d'une expérience réalisée en cellule de Hele-Shaw. L'utilisation d'une cellule de Hele-Shaw permet de mesurer de manière directe l'angle γ au cours du temps. D'après ces expériences, un angle γ approximativement égal à 90° est

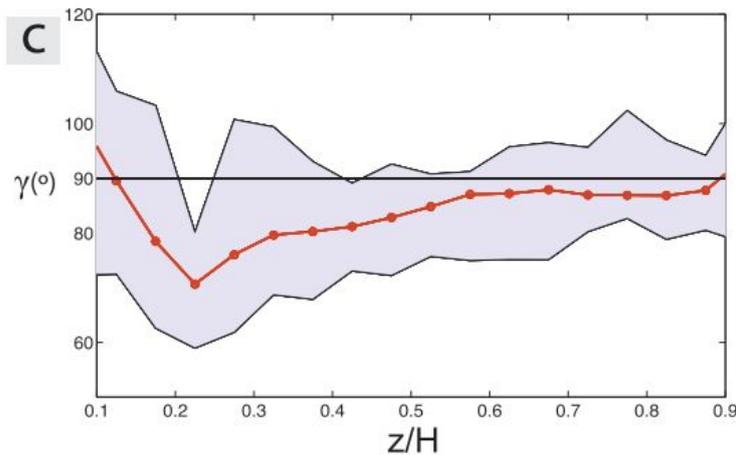


FIGURE 2.17 – Évolution de l'angle de contact à l'interface air/liquide/glace en fonction de la hauteur relative [39].

obtenu. À ce stade, l'idée est de fixer la valeur de γ . Le résultat central de cette analyse est que, combinée avec le résultat selon lequel $\gamma = 90^\circ$, l'équation 2.52 donne une prédiction de l'angle de la pointe des gouttes gelées selon une valeur unique de $\alpha = 131^\circ$. Marin et al. [39] ont trouvé que cet angle vaut $139 \pm 8^\circ$ dans le cas d'une goutte déposée

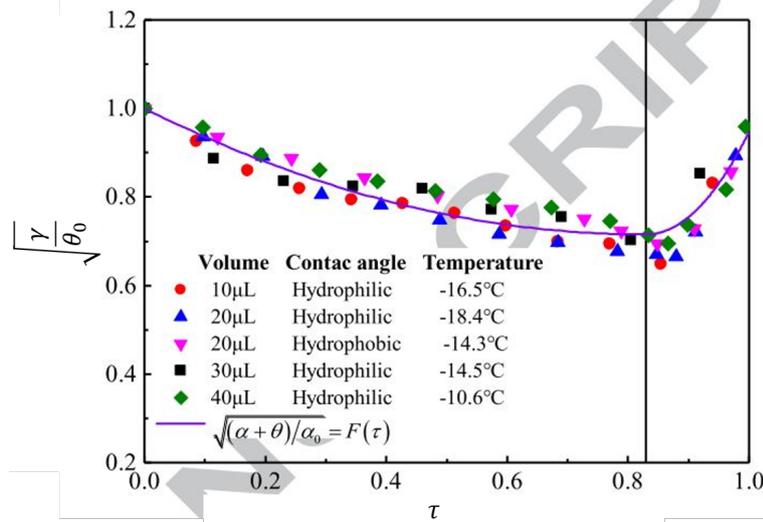


FIGURE 2.18 – Évolution de la racine carré l'angle de contact γ ($\gamma = \alpha + \theta$) en fonction du temps normalisé. L'ajustement des résultats expérimentaux par l'équation 2.54 est ajouté [74].

sur une surface sous-refroidie. Rappelons ici que cette théorie est basée sur l'hypothèse d'une valeur d'angle γ constante égale à 90° . La théorie prédit donc une valeur d'angle α égale à 131° quelles que soient les conditions de solidification. Récemment les travaux menés par Zhang et al. [74] ont eu pour objectif de modéliser la déformation d'une goutte durant sa solidification. Cette modélisation, contrairement aux travaux précédents, est basée sur une variation de l'angle γ au niveau de l'interface triphasique. Il est nécessaire, afin de modéliser l'évolution de la surface de la goutte, de déterminer au préalable une loi de l'évolution de γ au cours du temps. Zhang et al. [74] propose une loi de ce type. Afin de déterminer, l'évolution de la surface libre de la goutte, une loi d'évolution de γ est proposée et validée par différentes expériences (Figure 2.18) :

$$\sqrt{(\gamma)/\theta_0} = \begin{cases} 0.4133(\tau - 0.83)^2 + 0.7153, & \tau < 0.83 \\ 0.4133(\tau - 0.83)^2 + 0.7153, & \tau \geq 0.83 \end{cases} \quad (2.54)$$

La loi de variation de l'angle de contact à l'interface liquide/glace/air dépend donc du temps de solidification adimensionnel τ (rapport entre le temps et le temps de fin de solidification) et de l'angle de contact initial θ_0 entre la goutte et la surface sous-refroidie. Notons que les mesures d'angle ne sont pas directes : en effet, comme le montre la Figure

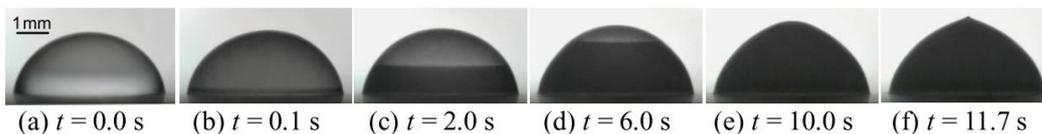


FIGURE 2.19 – Processus de solidification d'une goutte d'eau de $20 \mu\text{L}$ déposée sur une surface sous-refroidie a $-18,4^{\circ}\text{C}$. Visualisation de la solidification par ombroscopie [74].

2.19, seules des mesures d'évolution du front de glace le long de la surface de manière directe sont possibles par ombroscopie. L'utilisation de la loi de variation de γ permet donc une modélisation complète de la forme d'une goutte durant le processus de solidification. La Figure 2.14 présente une comparaison entre résultats expérimentaux et modélisation de la solidification d'une goutte de $20 \mu\text{L}$ déposée sur une surface à $-18,4^{\circ}\text{C}$ formant un angle de contact de 78° avec cette dernière. Le modèle permet une bonne estimation de

l'évolution de la surface air/goutte au cours du temps et il prédit donc avec une bonne précision de α .

La différence de densité entre les phases liquides et solides peut entraîner, durant la solidification, des mouvements internes de types convectifs importants du liquide et peut, dans certains cas, intensifier les transferts de masse et de chaleur [1].

2.1.4 Impact de gouttes sur un substrat solide

Le comportement d'une goutte lors de son impact avec une paroi solide est un domaine très étudié dans la littérature, que ce soit pour un impact isotherme, sur une surface chauffée ou sur une paroi sous-refroidie. Commençons par décrire les mécanismes intervenant lors de l'impact d'une goutte sur une paroi en condition isotherme. Pour cela, introduisons tout d'abord deux nombres adimensionnels :

$$Re = \frac{\rho v d}{\mu}, \quad We = \frac{\rho v^2 d}{\sigma} \quad (2.55)$$

avec v la vitesse de la goutte d sont diamètre, ρ et μ les masse volumique et viscosité cinématique du liquide et σ la tension superficielle. Le nombre de Reynolds (Re) représente le rapport entre les forces d'inertie et les forces de dissipation visqueuse tandis que le nombre de Weber (We) exprime le rapport entre l'énergie cinétique incidente de la goutte et les forces de cohésion de la goutte exprimée à travers σ . Afin de comprendre le processus de givrage, il est nécessaire d'étudier le processus d'impact de goutte dans le cas de paroi dont la température est inférieure à 0°C . En effet, en conditions réelles, les gouttes impactent sur les surfaces de l'aéronef à des températures inférieures à 0°C et à hautes vitesses ($\geq 100\text{m.s}^{-1}$). Nous commencerons par nous intéresser au processus d'impact d'une goutte sur parois isothermes, puis sur parois sous-refroidies afin de mettre en lumière les différences pouvant exister entre ces deux situations.

2.1.4.1 Impact d'une goutte sur une paroi isotherme

Les différentes étapes d'impact d'une goutte sur paroi à une température supérieure à celle de solidification du liquide sont résumées sur la Figure 2.20. Lorsque la goutte entre

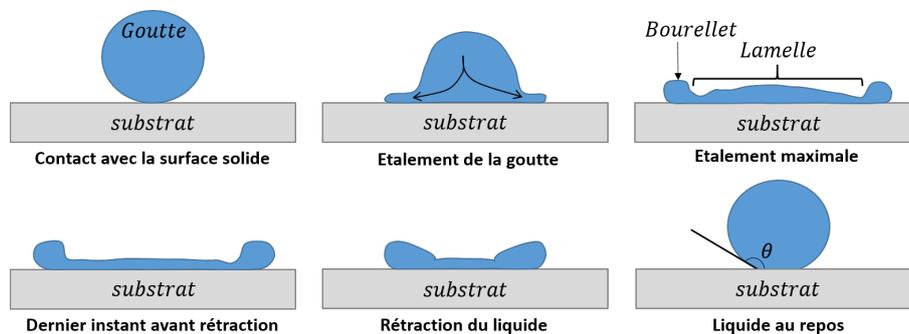


FIGURE 2.20 – Schéma des différentes phases d'impact d'une goutte sur une paroi solide (cas isotherme).

en contact avec le substrat solide à l'instant initial ($t = 0$ s), le point de contact subit une décélération brusque jusqu'à une vitesse nulle. En conséquence, une forte augmentation de la pression au niveau du point de contact provoque une onde de pression qui se propage à travers la goutte liquide. Pendant cette période, le sommet de la goutte avance

sans aucune perturbation sur sa vitesse initiale (phase cinématique). Ensuite, la viscosité du liquide entraîne une décélération de l'ensemble de la masse liquide. L'inertie de l'impact entraîne ensuite une propagation radiale rapide d'un film mince liquide (appelé "lamelle"). En raison des forces capillaires agissant sur le bord de la goutte, un bord prononcé se forme autour de la lamelle appelé "bourrelet". Lorsque la somme de l'énergie de surface de la goutte déformée et de l'énergie dissipée par le frottement visqueux pendant l'étalement est égale à l'énergie cinétique initiale de la goutte, l'étalement de la goutte atteint son maximum. Le processus qui suit l'étalement dépend fortement de la mouillabilité de la surface. La mouillabilité dépend de la morphologie et de la structure de la surface et peut être caractérisée par l'angle de contact défini au niveau de la ligne de contact triphasique (comme indiqué sur la dernière image de la Figure 2.20). Si une goutte impacte sur une surface mouillante ($\theta < 90^\circ$), alors la phase de rétraction sera très courte et la surface mouillée résiduelle sera grande. Dans le cas d'une surface hydrophobe ($\theta > 90^\circ$), la phase de rétraction est longue et la surface mouillée résiduelle sera faible. Dans certains cas, l'impact peut finir par une phase de rebond de la goutte sur la surface conduisant ainsi à une surface mouillée résiduelle nulle. En fonction des conditions d'impact et de la morphologie de la surface, divers phénomènes peuvent se produire, notamment des phénomènes de splashing (éclatement) ou l'apparition de digitations sur le bord de la goutte.

Il est possible de modéliser la phase d'étalement de la goutte pour des impacts avec un nombre de $Re > 25$ et de $We > 2.5$ [48]. On considère que dans ces configurations, la phase d'étalement est dominée par l'inertie du liquide. La hauteur de la lamelle (h_{lam}) au centre ($r = 0$) peut être modélisée en fonction du diamètre initial de la goutte d_g et de sa vitesse d'impact v_g :

$$h_{lam}(t, r = 0) = d_g - v_g t \quad (2.56)$$

Cette équation n'est valable que pour $t < 0.7 \left(\frac{d_g}{v_g} \right)$. Pour des temps plus longs, il est possible de déterminer la vitesse radiale d'étalement ainsi que la hauteur de la lamelle au point d'impact par :

$$v_r(t, r) = r \left(\frac{d_g}{v_g} \tau + t \right)^{-1} \quad h_{lam}(t, r = 0) = \eta d_g \left(\frac{v_g}{d_g} t + \tau \right)^{-2} \quad (2.57)$$

avec $\tau = 0,25$ et $\eta = 0.39$ obtenus à l'aide de données expérimentales [48]. Lorsque $t \rightarrow +\infty$, il est possible de déterminer l'épaisseur résiduelle de la lamelle :

$$h_{lam}(t + \infty, r = 0) = 0,79 d_g Re^{-\frac{2}{5}} \quad (2.58)$$

La connaissance de la surface mouillée lors de l'impact d'une goutte sur une paroi solide intéresse plusieurs secteurs applicatifs dont le secteur de l'aéronautique. Il est possible de déterminer ce paramètre par :

$$A_{moui,max} = d_g \left(0,87 Re^{1/5} - 0,4 Re^{2/5} Re^{-1/2} \right) \quad (2.59)$$

2.1.4.2 Impact sur une paroi sous-refroidie

Lorsque la température du substrat est inférieure à 0°C , il est nécessaire de prendre en compte les transferts thermiques entre la goutte et le substrat et il est possible que la goutte se solidifie dès l'impact. Lors de l'impact, la température à l'interface liquide/substrat devient instantanément égale à la température de contact. Cette température de contact T_c dépend de la différence de température entre le liquide et la paroi ainsi que de leurs

effusivités ($e = \sqrt{k \rho C p}$) respectives. Si e_L et e_P désignent, respectivement l'effusivité du liquide et du substrat solide, la température de contact est :

$$T_c = \frac{T_g e_L + T_P e_P}{e_P + e_L} \quad (2.60)$$

avec T_g la température de la goutte avant impact et T_P la température du substrat. L'apparition de cette température est accompagnée par le développement d'une couche limite thermique dans le liquide. En négligeant le transfert de chaleur par convection dans le liquide, l'évolution temporelle de l'épaisseur de la couche limite thermique, h_{th} , peut être estimée par :

$$h_{th} \approx \sqrt{e t} \quad (2.61)$$

Dans le cas où la température de contact T_c est inférieure à la température de solidification du liquide, le phénomène de nucléation peut apparaître. Nous allons tout d'abord considérer la dynamique d'impact d'une goutte sur paroi sous-refroidie sans solidification.

Impact sans solidification

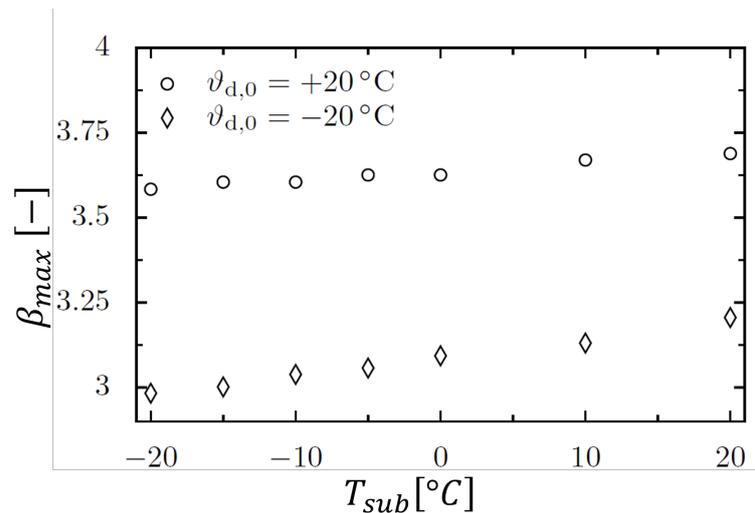


FIGURE 2.21 – Influence de la température de surface initiale sur le facteur d'étalement maximal lors de l'impact d'une goutte de 2 mm de diamètre à une vitesse de $3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ [52] et pour une température initiale de la goutte de 20 °C et -20 °C.

Dans le cas d'un impact de goutte sur une paroi sous-refroidie sans solidification, deux cas différents peuvent être distingués : l'impact d'une goutte surfondue ($T < 0\text{ °C}$) sur une paroi sous-refroidie et l'impact d'une goutte chaude ($T > 0\text{ °C}$) sur une paroi sous-refroidie. L'unique différence entre ces deux cas, en absence de solidification à l'impact, repose sur la différence de viscosité qui est liée à la température du liquide. Notons que dans le second cas, la température du liquide impactant diminue jusqu'à devenir surfondu durant la phase d'étalement. La viscosité de l'eau augmentant, lorsque la température diminue, il s'en suivra une augmentation de l'énergie dissipée par les contraintes visqueuses. Cependant la dynamique d'étalement étant plus rapide que les transferts thermiques, l'augmentation de la viscosité est sans effet sur l'étalement et donc sur la surface mouillée. Il en résulte ainsi une phase d'étalement universelle, qui dépend très peu de la température de la surface. La Figure 2.21 représente l'évolution du diamètre d'étalement maximale ($\beta_{max} = d_{max}/d_g$) dans le cas de l'impact d'une goutte de diamètre de 2

mm à une vitesse de 3 m.s^{-1} pour différentes températures de surface et deux températures initiales de goutte. Le facteur d'étalement maximal diminue d'environ 3% lorsque la température de surface diminue de $40 \text{ }^\circ\text{C}$ et que la température de goutte est de $+20 \text{ }^\circ\text{C}$. Dans les mêmes conditions, pour une température de goutte de $-20 \text{ }^\circ\text{C}$, une décroissance de l'ordre de 7% est observée. Cette influence est néanmoins très faible en comparaison à celle provenant de la différence de température initiale du liquide. En effet, pour une même température de surface, il est possible d'observer une diminution de l'ordre de 20% pour une température initiale de liquide variant entre $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ et $20 \text{ }^\circ\text{C}$.

La Figure 2.22 A) présente l'évolution de la surface mouillée obtenue par ombroscopie en vue de dessus, en fonction du temps pour un impact de goutte sur une paroi d'aluminium à une température de $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ et deux températures de goutte, l'une correspondant à une goutte non-surfondue, l'autre surfondue. Il peut être observé, que quel que soit la température initiale de la goutte, l'étalement maximal est atteint à $t = 2,25 \text{ ms}$. Cependant les surfaces mouillées sont respectivement de $146,05 \text{ mm}^2$ et $194,98 \text{ mm}^2$ dans le cas d'une goutte surfondue et non-surfondue, différence qui peut être expliquée par une augmentation de la viscosité du liquide. Pour des conditions d'impacts similaires, Schremb et al. [51], ont observé l'évolution du diamètre mouillé en fonction du temps pour deux températures de substrat différentes et une température de goutte de $14,3 \text{ }^\circ\text{C}$. Les impacts sont réalisés sur une surface en aluminium, avec une incidence d'impact de 30° et une vitesse d'impact de goutte de $4,09 \text{ m.s}^{-1}$. Les résultats sont présentés en Figure 2.22 B). Le diamètre maximal est atteint au même instant, quelle que soit la température du substrat. Néanmoins, une différence notable est observée durant la phase de rétraction. En effet, la viscosité du liquide étant plus importante dans le cas d'un impact sur une paroi sous-refroidie, la phase de rétraction est alors plus longue que pour un impact sur une paroi à une température plus importante. La température pariétale joue donc un rôle

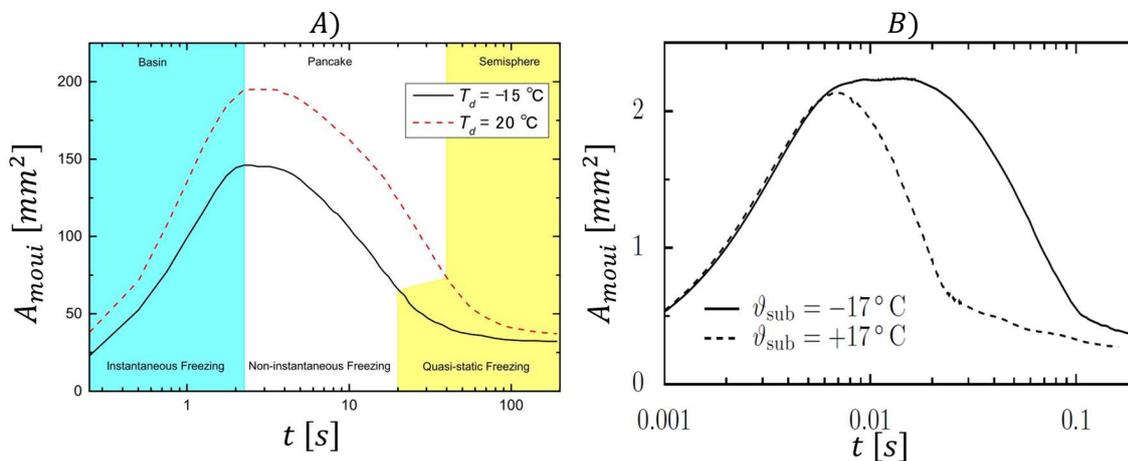


FIGURE 2.22 – A) évolution de la surface mouillée en fonction du temps lors de l'impact d'une goutte sur une paroi à une température de $-20 \text{ }^\circ\text{C}$ [66]. B) évolution de la surface mouillée en fonction du temps lors de l'impact d'une goutte à une température de $14,3 \text{ }^\circ\text{C}$ pour deux températures de paroi différentes [51].

très important sur la dynamique d'étalement d'une goutte sur une paroi sous-refroidie. La modélisation du phénomène d'impact dans le cas d'une goutte impactant une surface sous-refroidie sans solidification est la même que celle d'un impact sur une paroi à une température supérieure à celle de solidification du liquide. Lors de l'impact d'une goutte sur une paroi sous-refroidie, les transferts thermiques entre la goutte et la paroi peuvent diminuer la température de la goutte. Si la température de la goutte devient inférieure à sa

température de solidification, la nucléation peut apparaître dans le liquide et le processus de solidification peut s'amorcer.

Impact avec solidification

La dynamique d'impact conduisant à la solidification est totalement modifiée. En effet, la solidification fige la forme et la surface d'étalement de la goutte. Deux cas d'impact avec solidification peuvent être distingués : l'impact d'une goutte sur une paroi préalablement recouverte d'une couche de glace et l'impact d'une goutte sur une paroi sèche. Le phénomène de solidification, dans ce dernier cas, intervenant durant la phase d'étalement la goutte.

Impact d'une goutte sur une paroi sèche

Lors de l'impact d'une goutte dont la température est initialement positive sur une paroi sèche sous-refroidie, la solidification peut intervenir lorsque la température de la goutte passe en dessous de sa température de solidification, ceci en lien avec le caractère stochastique du phénomène de nucléation. Ainsi, la dynamique d'impact peut dépendre de la formation de glace, susceptible de figer la forme de la goutte. La Figure 2.23 A) présente une vue de dessus de l'impact d'une goutte de température initiale de 20 °C sur une paroi sous-refroidie à une température de -23 °C. Dans cet exemple, le premier site de nucléation est observé 4 ms après l'impact et la surface de la goutte est bloquée au maximum d'étalement de cette dernière. Dans le cas d'une goutte surfondue à une température initiale de -14,8 °C (Figure 2.23 B)) impactant une surface à une température de -24,3 °C le premier site de nucléation apparaît 0,75 ms après le début de l'impact. Dans ce cas, il est possible d'observer, à $t = 3,5$ ms, la présence de différents sites de nucléation répartis aléatoirement dans le liquide. L'instant à partir duquel la nucléation apparaît est une variable stochastique dépendant de différents paramètres tels que :

- La température du liquide et celle du substrat : en effet, la diminution de diminution de la température du liquide se caractérise par une probabilité de nucléation plus importante comme le montre la différence de comportement entre les résultats des Figure 2.23 A) et B).
- Le nombre de Weber : une augmentation du nombre de We se caractérise par une augmentation du diamètre d'étalement de la goutte, qui se traduit par une augmentation de la surface mouillée et ainsi à un accroissement de la probabilité de nucléation.

Comme montré précédemment sur la Figure 2.3 La probabilité de solidification augmente avec le temps quel que soit la température du substrat. L'augmentation de la température de surface se caractérise par une augmentation du flux échangé entre la paroi et la goutte, ce qui conduit à un refroidissement plus important de la goutte. Les travaux menés par Wang et al. [66] ont porté sur la détermination de la forme de la goutte après solidification en fonction de l'instant d'apparition de la nucléation. ces impact ont été réalisés pour une goutte à une température initiale de 20 °C impactant un substrat solide à une température de -24 °C pour un Weber d'impact de 141,85. Trois instants différents correspondant à l'apparition du phénomène de nucléation peuvent être distingués (Figure 2.24) :

1. $t < 30$ ms : lorsque le processus de nucléation se déroule pour un instant inférieur à 30 ms, la goutte reste figée à son étalement maximale. Dans ce cas, le front de solidification se propage du bord vers le centre de la goutte (Figure 2.24 (a)).

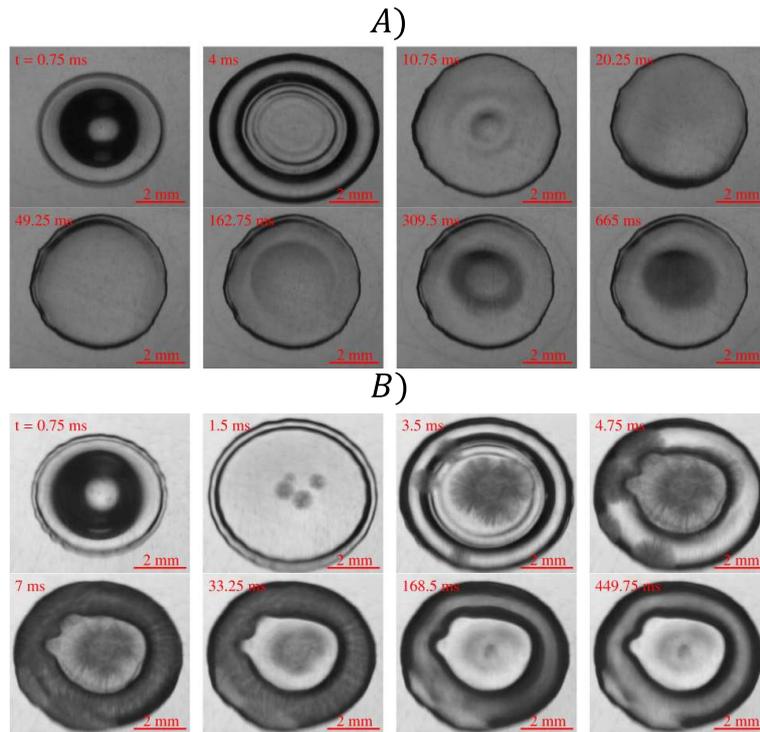


FIGURE 2.23 – Impact d’une goutte à une température initiale de A) 20 °C et B) –14,8 °C sur une surface sous-refroidie à une température de A) –23 °C et B) –24,3 °C [66].

2. $30\text{ ms} < t < 600\text{ ms}$: Lorsque la nucléation intervient après 30 ms, la goutte est au repos d’un point de vue hydrodynamique. Ainsi, une faible épaisseur de la goutte est surfondue du fait du transfert thermique entre la goutte et la paroi. La nucléation se caractérise par la propagation de dendrites à la surface de la goutte qui disparaissent graduellement avec le temps. Le front de solidification se propage ensuite du bas vers le haut de goutte, avec un front sphérique (Figure 2.24 (b)).
3. $t > 600\text{ ms}$: Dans le cas où la nucléation intervient après 600 ms, l’ensemble de la goutte est surfondue. Dans ce cas, les dendrites se propagent dans l’ensemble de la goutte et le front de solidification planaire se déplace ensuite dans un milieu mixte (mélange glace/liquide Figure 2.24 (c)).

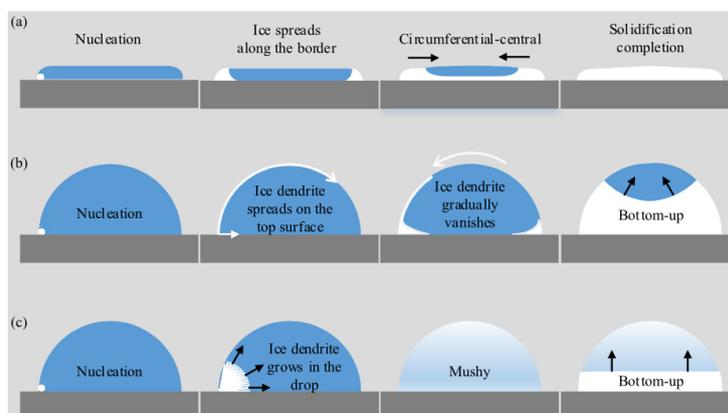


FIGURE 2.24 – Représentation des différents mode de solidification d’une goutte à une température initiale supérieur à la température de solidification du liquide impactant une surface sous-refroidie [66]

Les récents travaux de Thiévenaz et al. [60] ont porté sur l'étude de la solidification en phase de rétraction de gouttes impactant une surface sous-refroidie en régime de rétraction. Ces travaux ont été menés pour des nombre de Weber supérieur à 160. La Figure 2.25 présente une séquence d'images de l'impact d'une goutte de 3.8 mm de diamètre à une température initiale de 19 °C à une vitesse de $2,6 \text{ m.s}^{-1}$ qui impacte une surface à une température de -9 °C . Contrairement au cas présenté sur la Figure 2.23 [66], il existe ici une phase de rétraction d'un film liquide subsistant sur la couche de glace. Cette rétraction se caractérise ainsi par un profil de glace en forme "d'œuf sur le plat". L'impact se décompose comme suit :

- (a-c) l'étalement rapide de la goutte sur la surface se termine par l'apparition d'une très fine couche de glace sur laquelle subsiste une couche d'eau liquide.
- (d-e) une période de repos durant laquelle la couche d'eau est presque statique, la couche de glace se développant par échange thermique entre la goutte et la paroi. L'angle de contact au niveau de la ligne triple diminue durant cette phase.
- (f-g) lorsque l'angle de contact atteint un seuil bas (environ 12° [60]), le film d'eau se rétracte sur la couche de glace jusqu'à ce qu'il atteigne un état d'équilibre.
- (h) la dernière phase consiste en une solidification du liquide restant, conduisant à un profil de glace final.

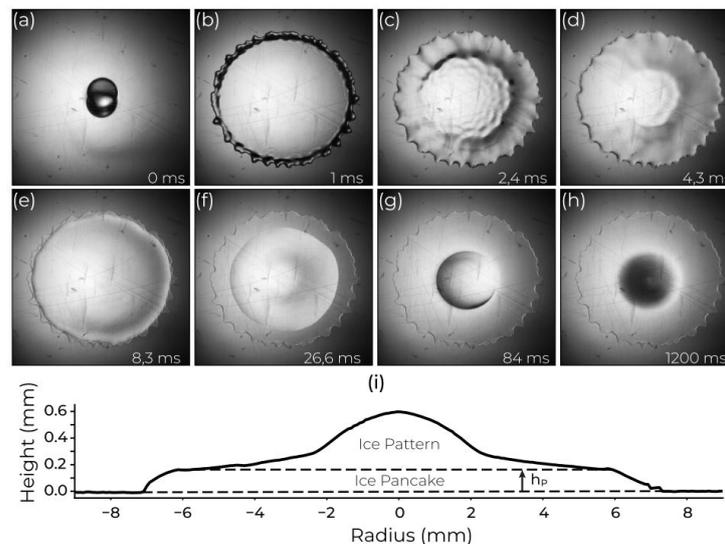


FIGURE 2.25 – (a)-(h) Impact d'une goutte de 3,8 mm diamètre à température ambiante sur une surface de température -9 °C et pour une vitesse d'impact de 2.6 m.s^{-1} . (i) Profil de hauteur de glace de la goutte en fin de solidification [60]

Cette forme particulière de solidification est donc essentiellement due à l'existence d'une phase de rétraction d'un film liquide sur une fine couche de glace. L'existence de différents modes de solidification, et donc de différentes formes de goutte finale, est essentiellement liée au caractère stochastique du phénomène de nucléation. Il convient donc, pour l'étude d'impact de gouttes sur une paroi sous-refroidie, de réaliser un grand nombre d'expériences afin d'obtenir un échantillon représentatif du phénomène étudié. L'étude de l'impact d'une goutte sur une paroi préalablement givrée permet de s'affranchir de ce caractère stochastique.

Impact sur une paroi couverte d'une couche de glace

Il a été montré dans la section 2.1.2 que la présence de glace sur la surface d'impact favorisait fortement le phénomène de nucléation. Lors de l'impact d'une goutte sur une paroi couverte d'une couche de glace, l'existence préalable d'une interface liquide/glace permet une solidification quasi-instantanée de la goutte sans passer par l'étape intermédiaire de surfusion. Si la température de contact est inférieure à la température de solidification du liquide, le changement d'état peut être initié immédiatement après le contact. La formation de la nouvelle couche de glace ne commence pas sur un seul site de nucléation mais sur toute la couche de glace initiale, c'est-à-dire sur la ligne de contact triphasique mobile de la goutte. Cette ligne est caractérisée par le fait que le liquide s'étale progressivement sur le substrat. Par conséquent, l'expansion radiale de la couche de glace nouvellement formée et l'étalement de la goutte sont intrinsèquement liées. Ainsi, le rayon de la couche de glace est égal au rayon d'étalement de la goutte à chaque instant. Par conséquent, contrairement à l'impact d'une goutte sur un substrat sous-refroidi sec, l'étalement radial de la couche de glace lors de l'impact sur une surface de glace dépend uniquement de l'étalement de la goutte. L'étalement ne dépend qu'indirectement des températures initiales et des propriétés thermiques. Les interactions mutuelles possibles entre l'écoulement du fluide et la solidification lors de l'impact sont multiples :

1. La section d'écoulement dans la lamelle diminue avec l'épaisseur de la couche de glace, ce qui peut ralentir l'amincissement de la lamelle.
2. La solidification peut dissiper de l'énergie cinétique en décélérant les molécules d'eau du fait de leur fixation sur l'interface solide-liquide.
3. Une contrainte de cisaillement élevée dans la couche limite de la goutte en étalement peut entraîner la rupture des dendrites, et donc une diminution du taux de croissance du nuage de dendrites.
4. Le flux de liquide tangentielle à l'interface solide/liquide peut augmenter le taux de solidification en améliorant la mobilité des molécules qui viendront ensuite se fixer à l'interface solide/liquide.

Contrairement au cas précédent (paroi sèche), la solidification n'apparaît pas de manière, mais d'une manière spatialement homogène. Cette différence permet alors d'obtenir une parfaite reproductibilité des expériences. Dans la suite de ce travail, nous envisagerons également ce type d'impact.

2.2 Diagnostics non-intrusifs appliqués à la caractérisation du givrage

Comme nous l'avons vu précédemment le phénomène de nucléation est fortement dépendant de son milieu. L'utilisation de techniques intrusives (utilisation de thermocouples par exemple) est donc fortement déconseillée. Par ailleurs, nous avons vu que la caractérisation de gouttes surfondues évoluant dans une soufflerie givrante devient incontournable dans un but de certification (Chapitre 1). Cette caractérisation doit permettre d'accéder à la température et à la vitesse des gouttes surfondues, mais aussi à leur état (i.e. liquide, solide ou mixte). Enfin, dans la section 2.1.2, nous avons vu que le phénomène de nucléation dépendait fortement du degré de surfusion du liquide. Ce constat renforce donc l'intérêt de mesurer la température des gouttes. Sera présenté ici un état de l'art des techniques des mesures optiques capable de déterminer la température et la composition (fraction liquide/solide) de gouttes surfondues.

2.2.1 Mesure de température

Commençons par nous intéresser aux techniques de mesure permettant de mesurer la température de gouttes surfondues. Pour chaque technique, nous présenterons les principes de base puis les principales applications mettant en jeux des gouttes surfondues.

2.2.1.1 Thermographie infrarouge

La thermographie infrarouge est basée selon le principe que tout corps à une température supérieure au zéro absolu émet un rayonnement électromagnétique. Dans la grande majorité des applications de la thermographie infrarouge à un liquide, le rayonnement infrarouge est majoritairement absorbé par le liquide. Cela conduit donc généralement à une mesure de température très proche de la surface. Dans le cas de l'eau, l'utilisation d'une caméra sensible dans le proche infrarouge ($1.5 \mu m < \lambda < 5.5 \mu m$) permet une mesure de température surfacique avec une profondeur de pénétration de $3 \mu m$. La mesure infrarouge est fortement dépendante de l'émissivité du matériau à caractériser et ainsi, en l'absence d'information sur le matériau, une calibration in situ peut-être réalisée pour permettre une mesure quantitative de température. L'intensité du signal infrarouge (I_{ir}) est proportionnelle à la puissance quatrième de la température :

$$I_{ir} \propto T^4 \quad (2.62)$$

Le rayonnement d'un corps noir suit la loi de Wien qui montre une dépendance en température de la longueur d'onde d'émission maximale du corps noir. En effet, le proche infrarouge ($\lambda < 5 \mu m$) sera utilisé pour la gamme des hautes températures tandis que pour les faibles températures, le lointain infrarouge ($\lambda > 7 \mu m$) est utilisé pour une optimisation du signal. La thermographie infrarouge peut ainsi être utilisée pour la mesure de température de gouttes surfondues [38] [12] mais avec un flux photonique faible. La Figure 2.26 présente des mesure de températures par thermographie infrarouge d'une goutte initialement à une température de $-3 \text{ }^\circ\text{C}$ impactant une surface à une température de $5 \text{ }^\circ\text{C}$. Il est intéressant de noter que la technique permet l'observation de l'échauffement de surface durant le processus d'impact. La recalescence se caractérise par une remontée brutale de la température du milieu jusqu'à celle de solidification du liquide. Ceci permet d'envisager l'utilisation de la thermographie afin de détecter la solidification de l'eau. La Figure 2.27 présente la visualisation du refroidissement de gouttes déposées sur une surface sous-refroidie. La surface étant soumise à une rampe de température, il est possible d'observer la solidification progressive des gouttes au cours du temps. Sur la seconde image, une goutte à une température de $0 \text{ }^\circ\text{C}$ peut être observée tandis que l'ensemble des autres gouttes se trouvent à une température de $-10 \text{ }^\circ\text{C}$. Cela signifie que la goutte qui se trouve à $0 \text{ }^\circ\text{C}$ est passée de l'état liquide à l'état solide après la phase de recalescence. L'utilisation de la thermographie infrarouge est donc très intéressante pour la caractérisation de la température de surface de goutte surfondue. Lors de la solidification de l'eau, il est possible que l'émissivité du milieu change au cours du temps, cette modification pouvant engendrer d'importantes erreurs de mesure. La principale limite de la technique est le caractère surfacique de la mesure de température et en particulier, dans le cas de mesures en soufflerie givrante, il est souvent plus intéressant d'obtenir des informations sur la température volumique moyenne de la goutte.

2.2.1.2 Technique d'Arc-En-Ciel (AEC)

La réfractométrie d'arc-en-ciel est une technique de mesure d'indice de réfraction d'un milieu qui peut aussi donner des informations sur la taille d'une goutte. Connaissant

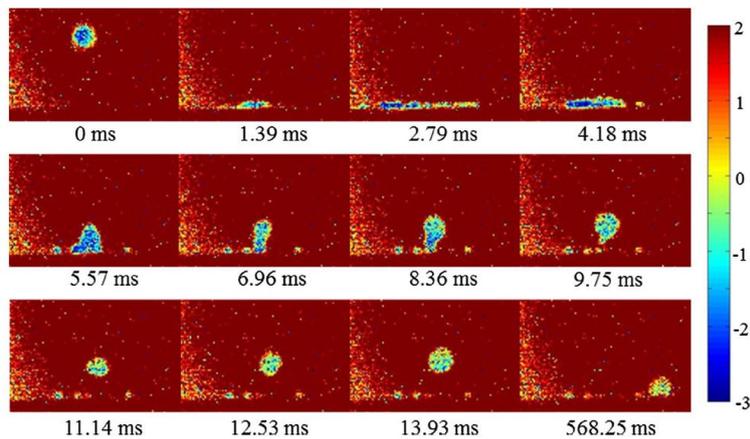


FIGURE 2.26 – Imagerie infrarouge de l'impact et du rebond total d'une goutte surfondue à une température initiale de $-3\text{ }^{\circ}\text{C}$ sur une surface à $+5\text{ }^{\circ}\text{C}$. La goutte a un diamètre de $1,5\text{ mm}$ et une vitesse d'impact de $3,4\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ [38]

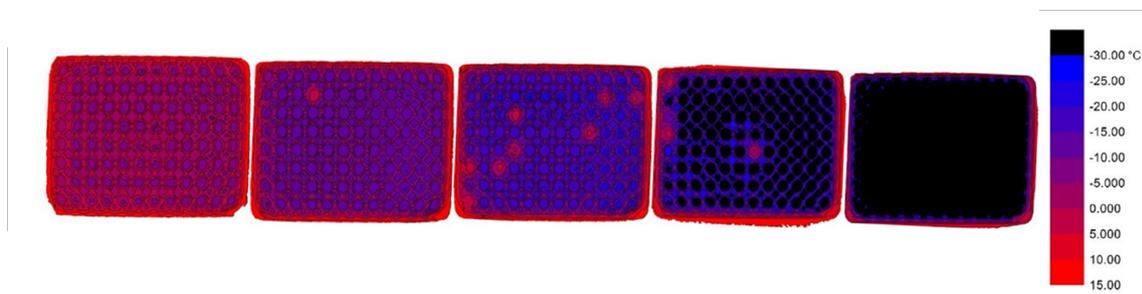


FIGURE 2.27 – Séquence d'images acquises par thermographie infrarouge de gouttes déposées sur une surface soumise à une rampe de refroidissement. L'image la plus à gauche montre le début d'une expérience avec toutes les gouttes liquides, et lorsque la surface se refroidit (vers la droite), de plus en plus de gouttes sont gelées. La solidification est détectée lorsque la goutte se réchauffe à $0\text{ }^{\circ}\text{C}$. [22].

la dépendance en température de l'indice de réfraction (n) d'un liquide, il est également possible d'en déterminer sa température. La technique se décline en deux méthodes : la réfractométrie d'arc-en-ciel standard, applicable à une goutte individuelle et la réfractométrie d'arc-en-ciel globale qui peut s'appliquer à un nuage de gouttes .

Réfractométrie d'arc-en-ciel standard

Lorsqu'un laser éclaire une goutte supposée sphérique, la lumière incidente est diffusée suivant différents modes correspondant aux interactions multiples (réflexion, réfraction, diffraction) à l'interface air/liquide de la goutte. La diffusion de la lumière est caractérisée par différents ordres p correspondant au nombre d'interaction entre un rayon lumineux et l'interface liquide/air. Dans la technique d'arc-en-ciel, les rayons lumineux tels que $p = 2$ sont considérés. L'accumulation des rayons dans cette région de l'espace conduit à la formation d'interférences sous la forme d'un arc-en-ciel dit primaire (Figure 2.28). L'inversion de la figure d'arc-en-ciel permet d'obtenir le diamètre de la goutte et l'indice de réfraction [30]. La complexité de la mesure, mais aussi sa fiabilité, réside justement dans le programme d'inversion [64] [69] [18]. La Figure 2.29 présente l'évolution de l'indice de réfraction de l'eau en fonction de la température. Une ambiguïté sur la température de la goutte existe car la variation de l'indice de réfraction de l'eau n'est pas bi-

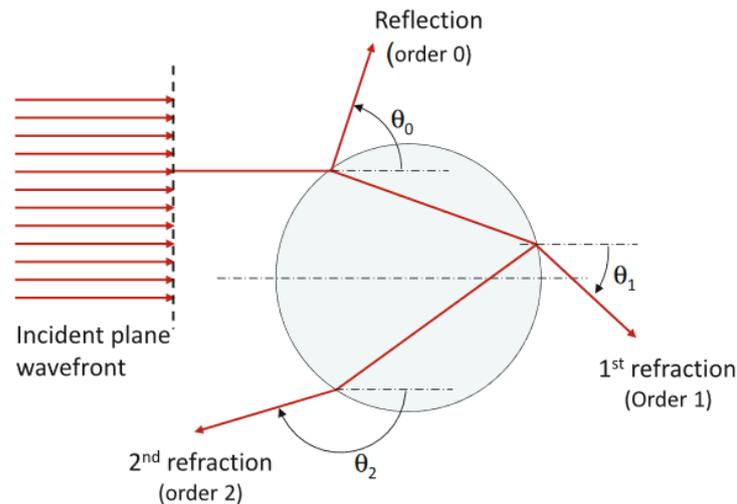


FIGURE 2.28 – Interaction de la lumière avec une goutte sphérique [36]

jective avec la température, notamment au voisinage de 0 °C. De plus, dans la gamme de température [-20 °C; +20 °C], la sensibilité de l'indice de réfraction à la température est très faible, une variation de température de -20 °C à +20 °C correspond à une variation de l'ordre de 0,2% de l'indice de réfraction, ce qui réduit fortement la précision de la mesure. Il faut ajouter que la technique est fortement sensible à la sphéricité de la goutte ainsi qu'aux gradients d'indices de réfraction qui peuvent être présents dans la goutte [21] [49]. Un défaut de sphéricité de 1% engendre une erreur de mesure sur la température de ± 40 °C [36]. La technique d'arc-en-ciel globale permet de s'affranchir des problèmes liés à la sphéricité.

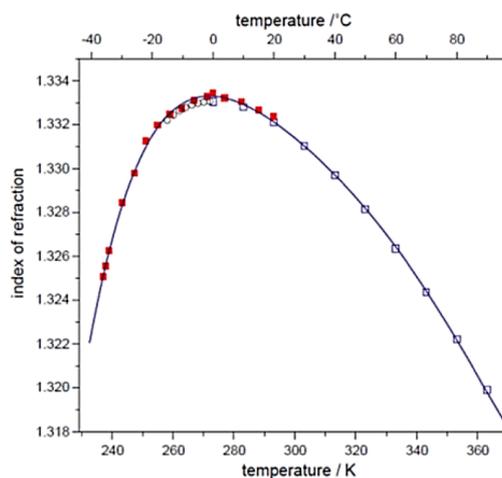


FIGURE 2.29 – Indice de réfraction de l'eau en fonction de la température. [50]

Réfractométrie d'arc-en-ciel globale

Cette technique est une extension de la techniques précédente appliquée aux sprays [63]. La grande différence est de ne plus travailler sur le signal d'une goutte individuelle mais sur celui résultant d'un ensemble de goutte (au moins 1000). L'hypothèse de base de cette mesure réside dans la variation aléatoire des écarts à la sphéricité d'une goutte qui globalement se compensent. Avec cette technique de mesure, l'erreur sur la température

peut-être réduite à ± 4 °C. De récents travaux ont été menés pour mesurer la température de gouttes surfondues évoluant dans une soufflerie givrante par réfractométrie d'arc-en-ciel globale [50], notamment sur des gouttes de diamètres compris entre 20 μm et 40 μm . L'influence de la vitesse de l'air sur la température a été étudiée, ce qui a permis de montrer qu'une augmentation de la vitesse de l'air entraînait une augmentation de la température des gouttes du fait d'une différence de temps de vol des gouttes dans la soufflerie givrante. De plus, la capacité de la technique à détecter la présence de cristaux de glace a été démontrée [50].

Néanmoins, l'application en soufflerie sur de grosses gouttes (*SLD*), peut conduire à des mesures erronées du fait d'écart à la sphéricité corrélées à la vitesse principale de l'écoulement.

2.2.1.3 La spectroscopie Raman

La spectroscopie Raman est une technique très utilisée pour la détermination de la composition chimique d'un milieu ou pour parfois la mesure de température d'un fluide. Le signal Raman résulte de la diffusion non-élastique de photons sur le nuage d'électrons de la molécule à étudier [55], le caractère inélastique conduisant à un décalage spectral du rayonnement diffusé. Le décalage Raman dépend principalement de la nature de la molécule tandis que la variation de l'intensité Raman dépend de la densité des molécules dans le volume de mesure ou encore de la température [61]. L'intensité du signal Raman est très faible, en comparaison par exemple avec une intensité de fluorescence, ce qui nécessite l'utilisation de lasers de fortes puissances ou fortement focalisés. Le signal Raman dépend directement de la section d'absorption de la molécule. Dans la majorité des cas elle ne dépasse pas les 10^{-30} cm^2 , alors que pour la fluorescence elle est de dix ordres de grandeurs supérieures. La dépendance en température du signal Raman a été largement utilisée pour la thermométrie et la mesure de composition chimique dans les gaz [65] ou la détermination de la composition chimique de gouttes [11] [10] [58] [43]. La Figure 2.30 A) représente l'évolution de l'intensité de spectres Raman pour différentes température d'eau. La majorité des expériences menées sur l'eau utilise la bande spectrale relative à la liaison hydrogène car il s'agit de la bande la plus intense [43]. Le nombre de liaisons hydrogène formées par les molécules d'eau diminuant lorsque la température augmente, cette propriété permet de réaliser des mesures de température de l'eau. L'erreur de mesure réalisée par cette technique est de l'ordre de ± 1 °C. Dans le cas de l'eau surfonduée,

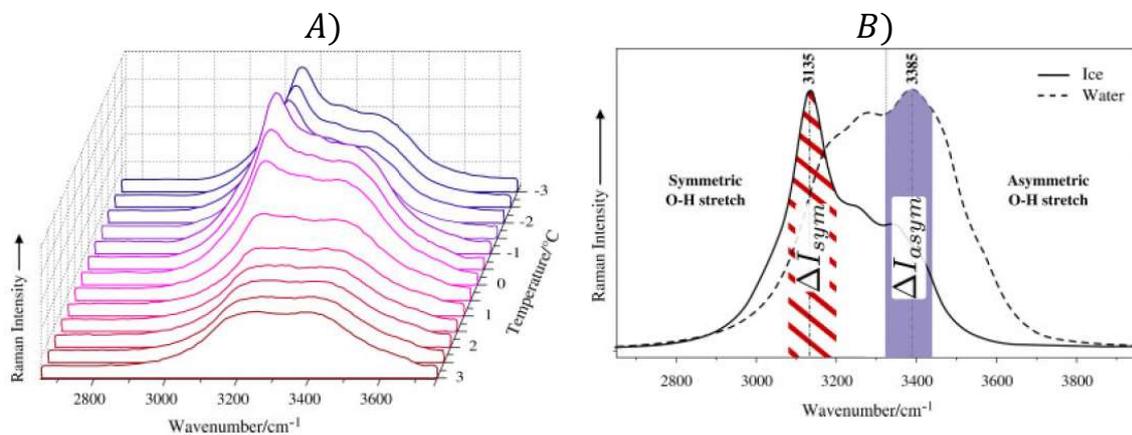


FIGURE 2.30 – A) intensité de spectres Raman en fonction de la température de l'eau. B) influence de la solidification sur le spectre Raman. [15]

la technique Raman a été utilisée pour des mesures de températures négatives [15] [73]. Entre $+3\text{ °C}$ et -3 °C la variation du signal sur la bande spectrale de la liaison OH (autour de 3200 cm^{-1}) met en évidence la faisabilité d'une mesure en température négative. La spectroscopie Raman est très sensible aux liaisons moléculaires et est donc sensible au changement de phase de l'eau. Ce phénomène très étudié dans le cas de l'ébullition de l'eau a été étendu au cas du processus de solidification. La Figure 2.30 B) présente l'évolution du spectre Raman de l'eau en phase liquide ainsi qu'en phase solide. Une forte variation du signal Raman autour de la bande OH est observée lors du changement de phase de l'eau. Ainsi, l'utilisation d'un rapport entre les intensités mesurées sur deux bandes permet de déterminer l'état de l'eau. La Figure 2.31 représente l'évolution du rap-

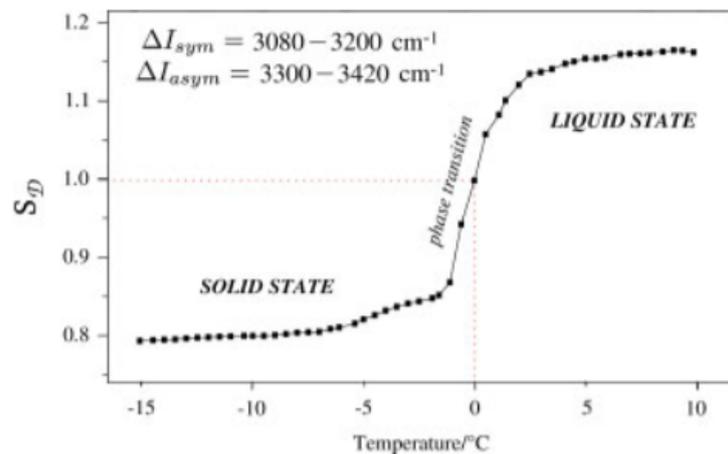


FIGURE 2.31 – Rapport du signal Raman mesuré sur deux bandes spectrales distinctes en fonction de la température de l'eau [15]

port entre les intensités mesurées sur deux bandes spectrales distinctes en fonction de la température du milieu. On constate que le rapport varie brutalement lors du changement de phase de l'eau pour atteindre une valeur quasi-constante à partir de -7 °C environ. La variation du rapport autour de 0 °C indique le début de la solidification de l'eau et donc la présence d'une phase solide dans le volume de mesure considéré. La mesure par spectroscopie Raman est donc une technique susceptible de caractériser l'eau surfondue mais la littérature ne mentionne pas l'application de la technique à des gouttes surfondues en écoulement. La principale difficulté de mise en œuvre de ce type de mesure réside dans la faiblesse de l'intensité du signal émis, ce qui nécessite donc des temps d'acquisition élevés. Néanmoins, la spectroscopie Raman permet la mesure de grandeurs volumiques, contrairement à la thermographie infrarouge.

2.2.2 Caractérisation du changement de phase

De la même manière que pour le cas des techniques permettant la mesure de température, nous commencerons par présenter les principes de bases des techniques permettant la discrimination de l'état d'un milieu (liquide ou solide) et nous finirons par présenter les applications les plus importantes pour la caractérisation de gouttes surfondues.

2.2.2.1 Technique d'imagerie interférométrique en défaut de mise au point (ILIDS)

L'ILIDS (Interferometric Laser Imaging for Droplet Sizing) est une technique d'imagerie en défaut de mise au point permettant la mesure de taille de particules en écoule-

ment. La technique consiste à enregistrer sur un capteur CCD (caméra) les interférences induites par les rayons réfléchis et réfractés à l'intérieur d'une goutte en utilisant un système optique de défaut de mise au point. Cette technique a été initialement utilisée pour la caractérisation de particules sphériques pour des diamètres dans la gamme [50 μm - 500 μm]. Le principe de la technique de mesure, introduite pour la première fois par König et al. [33], est présenté sur la Figure 2.32. Elle consiste en l'analyse des interférences et permet d'en déduire la taille de la particule à partir d'une relation linéaire entre le diamètre d de la particule au nombre de franges d'interférence. La technique a été validée

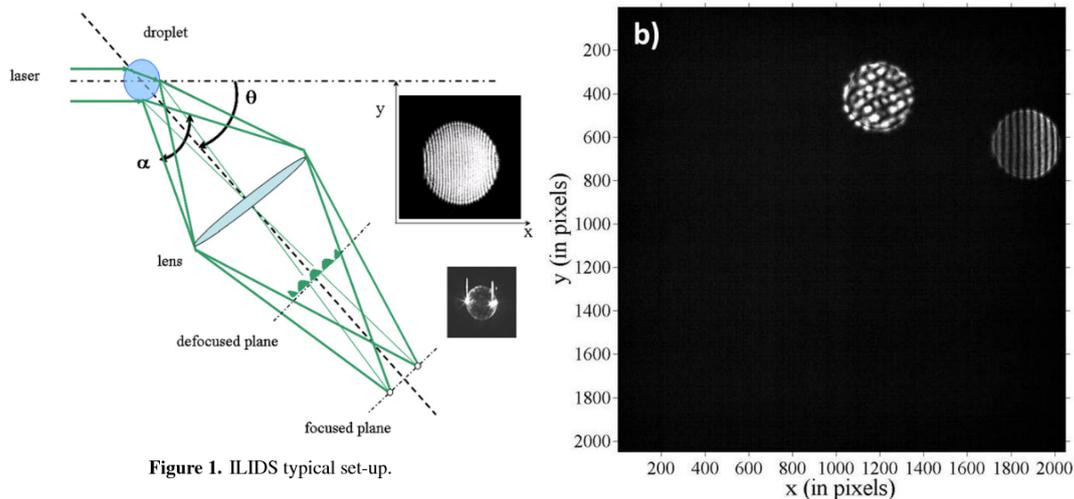


Figure 1. ILIDS typical set-up.

FIGURE 2.32 – Gauche : principe optique de la technique de mesure ILIDS. Droite : exemple d'image en défaut de mise au point d'une goutte d'eau liquide et gelée [44]

avec succès en conditions aéropoortées [46]. De récents travaux menés par Brunel et al. [42] [8] ont permis d'étendre l'utilisation de l'ILIDS pour la mesure de taille de particules rugueuses, telles-que des gouttes d'eau contenant des cristaux de glace. La Figure 2.32 (droite) présente l'image d'une goutte en cours de solidification, contenant des cristaux de glace goutte de gauche). Dans le cas d'une goutte liquide des franges d'interférences sont observées en défaut de mise au point, alors que dans le cas de gouttes en cours de solidification, des speckles sont observés, caractéristiques des phénomènes d'interférences locales induit par des particules rugueuses. Il est possible, à partir d'une autocorrélation 2D de l'image en défaut de mise au point, d'estimer la forme du cristal générant la figure de speckle observée. Comme différentes formes de particules rugueuses peuvent générer une même figure de speckles. Afin de réduire le nombre de forme permettant de générer d'une même image un dispositif permettant la mesure simultanée de deux vues différentes d'une même particule a été mis en place (Figure 2.33) [9].

2.2.2.2 Spectroscopie par Imagerie de Résonance Nucléaire (IRMN)

La spectroscopie RMN est une technique exploitant les propriétés magnétiques d'un atome. Lorsqu'un atome possédant un spin nucléaire est placé dans un champ magnétique, ce dernier peut absorber ce rayonnement et le restituer après un temps appelé temps de relaxation. Nous allons ici nous intéresser seulement à la spectroscopie RMN du proton ^1H . L'imagerie par spectroscopie de résonance magnétique nucléaire (IRMN) est une extension de la technique de spectroscopie pour obtenir une image résolue dans l'espace. Dans le cas de la solidification de l'eau, le principe de la mesure est basé sur le fait que le temps de relaxation de la phase solide est très court (quelques μs) devant celui de

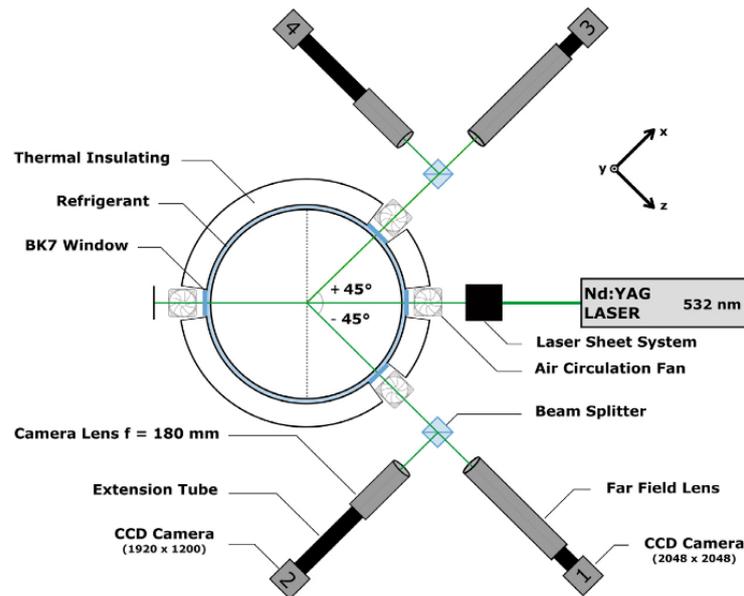


FIGURE 2.33 – Montage ILIDS permettant l'imagerie en défaut de mise au point selon deux vue d'une particule de glace [9].

la phase liquide (quelques secondes). Le signal correspondant à un protons 1H de la glace disparaîtra donc très rapidement tandis que celui de l'eau liquide persistera plusieurs secondes. L'application d'un gradient de champ magnétique (codant ainsi la position dans l'espace) dans le dispositif RMN permettra d'identifier dans l'espace les protons issus de la phase solide de ceux de la phase liquide. La décroissance temporelle du signal RMN permet d'obtenir des informations sur le processus de solidification de l'eau et donc de déterminer la fraction de glace dans le volume de mesure considéré. La difficulté porte donc sur le choix du temps d'écho (temps à partir duquel la mesure est prise) permettant de filtrer le signal résultant exclusivement de la phase liquide. Ce principe a été largement utilisé pour étudier la solidification de fluides opaques [7], transparents [28] [26] [29] [27] [25] ou encore la solidification de l'eau présente dans des fleurs [47] et des légumes [32]. Dans le cas de l'eau, la Figure 2.34 représente l'évolution du signal RMN en fonction du temps pour une goutte en phase de recalescence. Il existe une phase durant laquelle le signal est stable en fonction du temps ($2 s < t < 15 s$), correspondant à la présence d'une phase liquide stable. S'en suit une chute brutale du signal ($t = 15 s$) d'environ 15 % de sa valeur initiale essentiellement corrélée à la phase de recalescence du liquide. Pour finir, une dernière phase pour $t > 15 s$ est caractérisée par une décroissance du signal, synonyme d'une diminution du nombre de protons présents dans la phase liquide. L'étude de cette décroissance au cours du temps permet donc une mesure précise de l'évolution de la fraction de glace présente dans le volume de mesure.

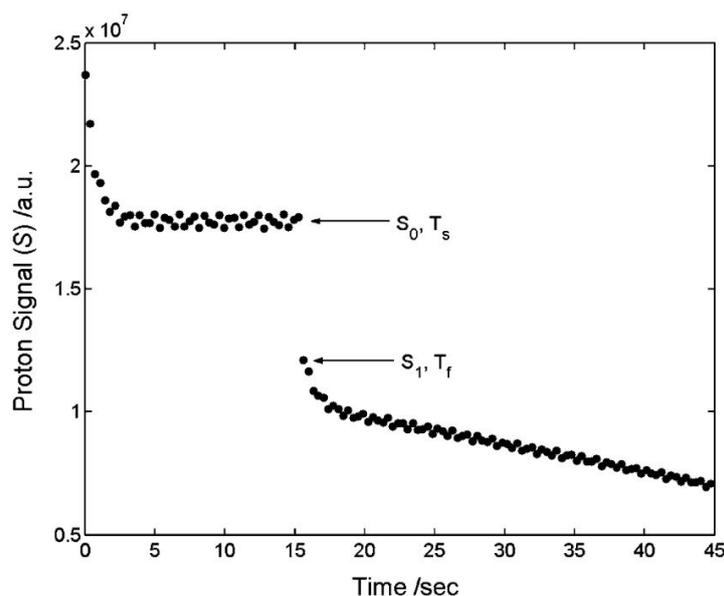


FIGURE 2.34 – Évolution du signal RMN du proton, enregistré dans un volume de $4\mu\text{L}$ à une température initiale de $-10\text{ }^\circ\text{C}$ [28].

2.3 Références

- [1] ALEXIADES, V. et A. D. SOLOMON. 1993, *Mathematical modeling of melting and freezing process*. [12](#), [16](#), [23](#), [24](#), [25](#), [26](#), [31](#)
- [2] ALIOTTA, F., P. V. GIAQUINTA, R. C. PONTERIO, S. PRESTIPINO, F. SAIJA, G. SALVATO et C. VASI. 2014, «Supercooled water escaping from metastability», *Scientific Reports*, vol. 4, doi :10.1038/srep07230, p. 1–5, ISSN 20452322. [12](#)
- [3] ANDERSON, D., M. G. WORSTER et S. H. DAVIS. 1996, «The case for a dynamic contact angle in containerless solidification», *Journal of crystal growth*, vol. 163, n° 3, p. 329–338. [27](#)
- [4] ANGELL, C. 1983, «Supercooled water», *Annual Review of Physical Chemistry*, vol. 34, n° 1, p. 593–630. [12](#)
- [5] ANGELL, C., J. SHUPPERT et J. TUCKER. 1973, «Anomalous properties of supercooled water. heat capacity, expansivity, and proton magnetic resonance chemical shift from 0 to -38%», *The Journal of Physical Chemistry*, vol. 77, n° 26, p. 3092–3099. [12](#)
- [6] BARLOW, T. W. et A. D. HAYMET. 1995, «ALTA : An automated lag-time apparatus for studying the nucleation of supercooled liquids», *Review of Scientific Instruments*, vol. 66, n° 4, doi :10.1063/1.1145586, p. 2996–3007, ISSN 00346748. [16](#)
- [7] BORISOV, B., E. CHARNAYA, T. LOESER, D. MICHEL, C. TIEN, C.-S. WUR et Y. A. KUMZEROV. 1999, «Nuclear magnetic resonance, resistance and acoustic studies of the melting-freezing phase transition of gallium in vycor glass», *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 11, n° 50, p. 10 259. [45](#)
- [8] BRUNEL, M., B. DELESTRE et M. TALBI. 2019, «3D-reconstructions for the estimation of ice particle's volume using a two-views interferometric out-of-focus imaging

- set-up», *Review of Scientific Instruments*, vol. 90, n° 5, doi :10.1063/1.5085279, ISSN 10897623. URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.5085279>. 44
- [9] BRUNEL, M., M. TALBI, S. COETMELLE, G. GREHAN, Y. WU et J. JACQUOT-KIELAR. 2019, «Interferometric out-of-focus imaging of freezing droplets», *Optics Communications*, vol. 433, n° September 2018, doi :10.1016/j.optcom.2018.09.075, p. 173–182, ISSN 00304018. URL <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2018.09.075>. XV, 44, 45
- [10] BUEHLER, M. F., T. M. ALLEN et E. J. DAVIS. 1991, «Microparticle raman spectroscopy of multicomponent aerosols», *Journal of colloid and interface science*, vol. 146, n° 1, p. 79–89. 42
- [11] CARLS, J. C., G. MONCIVAIS et J. R. BROCK. 1990, «Time-resolved raman spectroscopy from reacting optically levitated microdroplets», *Applied optics*, vol. 29, n° 19, p. 2913–2918. 42
- [12] CHAUDHARY, G. et R. LI. 2014, «Freezing of water droplets on solid surfaces : An experimental and numerical study», *Experimental Thermal and Fluid Science*, vol. 57, doi :10.1016/j.expthermflusci.2014.04.007, p. 86–93, ISSN 08941777. 39
- [13] DESNOS, H., A. BAUDOT, M. TEIXEIRA, G. LOUIS, L. COMMINS, S. BUFF et P. BRUYÈRE. 2018, «Ice induction in DSC experiments with Snomax®», *Thermochimica Acta*, vol. 667, n° July, doi :10.1016/j.tca.2018.07.022, p. 193–206, ISSN 00406031. XIII, 16, 19, 20, 21
- [14] DUFT, D. et T. LEISNER. 2004, «Laboratory evidence for volume-dominated nucleation of ice in supercooled water microdroplets», *Atmos. Chem. Phys.*, p. 4. XIII, 18
- [15] DURIČKOVIĆ, I., R. CLAVERIE, P. BOURSON, M. MARCHETTI, J.-M. CHASSOT et M. D. FONTANA. 2011, «Water–ice phase transition probed by {Raman} spectroscopy», *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 42, n° 6, doi :10.1002/jrs.2841, p. 1408–1412, ISSN 1097-4555. URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/jrs.2841>. XV, 42, 43
- [16] FEUILLEBOIS, F., A. LASEK, P. CREISMEAS, F. PIGEONNEAU et A. SZANIAWSKI. 1995, «Freezing of a subcooled liquid droplet», *Journal of colloid and interface science*, vol. 169, n° 1, p. 90–102. 22
- [17] GENT, R., N. DART et J. CANSDALE. 2000, «Aircraft icing», *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 358, n° 1776, p. 2873–2911. 22
- [18] GOUESBET, G. et G. GRÉHAN. 2011, *Generalized lorenz-mie theories*, vol. 31, Springer. 40
- [19] GOY, C., M. A. POTENZA, S. DEDERA, M. TOMUT, E. GUILLERM, A. KALININ, K.-O. VOSS, A. SCHOTTELIUS, N. PETRIDIS, A. PROSVETOV et collab.. 2018, «Shrinking of rapidly evaporating water microdroplets reveals their extreme supercooling», *Physical review letters*, vol. 120, n° 1, p. 015 501. 12
- [20] GRAEBER, G., V. DOLDER, T. M. SCHUTZIUS et D. POULIKAKOS. 2018, «Cascade Freezing of Supercooled Water Droplet Collectives», *ACS Nano*, vol. 12, n° 11, doi : 10.1021/acsnano.8b05921, p. 11 274–11 281, ISSN 1936086X. 17

- [21] HAN, Y., L. MÉÈS, K. REN, G. GOUESBET, S. WU et G. GRÉHAN. 2002, «Scattering of light by spheroids : the far field case», *Optics communications*, vol. 210, n° 1-2, p. 1–9. [41](#)
- [22] HARRISON, A. D., T. F. WHALE, R. RUTLEDGE, S. LAMB, M. D. TARN, G. C. PORTER, M. P. ADAMS, J. B. MCQUAID, G. J. MORRIS et B. J. MURRAY. 2018, «An instrument for quantifying heterogeneous ice nucleation in multiwell plates using infrared emissions to detect freezing», *Atmospheric Measurement Techniques*, vol. 11, n° 10, doi : 10.5194/amt-11-5629-2018, p. 5629–5641, ISSN 18678548. [XV, 40](#)
- [23] HENEGHAN, A. F., P. W. WILSON et A. D. J. HAYMET. 2002, «Heterogeneous nucleation of supercooled water, and the effect of an added catalyst», *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 99, n° 15, doi :10.1073/pnas.152253399, p. 9631–9634, ISSN 0027-8424. [16](#)
- [24] HINDMARSH, J., A. RUSSELL et X. CHEN. 2003, «Experimental and numerical analysis of the temperature transition of a suspended freezing water droplet», *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 46, n° 7, p. 1199–1213. [22](#)
- [25] HINDMARSH, J. P., C. BUCKLEY, A. B. RUSSELL, X. D. CHEN, L. F. GLADDEN, D. I. WILSON et M. L. JOHNS. 2004, «Imaging droplet freezing using MRI», *Chemical Engineering Science*, vol. 59, n° 10, doi :10.1016/j.ces.2003.12.031, p. 2113–2122, ISSN 00092509. [45](#)
- [26] HINDMARSH, J. P., A. B. RUSSELL et X. D. CHEN. 2005, «Measuring dendritic growth in undercooled sucrose solution droplets», *Journal of Crystal Growth*, vol. 285, n° 1-2, doi :10.1016/j.jcrysgro.2005.08.017, p. 236–248, ISSN 00220248. URL <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0022024805009462>. [45](#)
- [27] HINDMARSH, J. P., A. J. SEDERMAN, L. F. GLADDEN, D. I. WILSON et M. L. JOHNS. 2005, «Rapid measurement of dispersion and velocity in freezing drops using magnetic resonance methods», *ExperHindmarsh, J. P., Sederman, A. J., Gladden, L. F., Wilson, D. I., & Johns, M. L. (2005). Rapid measurement of dispersion and velocity in freezing drops using magnetic resonance methods. Experiments in Fluids, 38(6), 750–758. https://doi.org/10.1007/s, vol. 38, n° 6, doi :10.1007/s00348-005-0957-9, p. 750–758, ISSN 07234864. [45](#)*
- [28] HINDMARSH, J. P., D. I. WILSON et M. L. JOHNS. 2005, «Using magnetic resonance to validate predictions of the solid fraction formed during recalescence of freezing drops», *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 48, n° 5, doi : 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.09.028, p. 1017–1021, ISSN 00179310. URL <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0017931004004430>. [XV, 45, 46](#)
- [29] HINDMARSH, J. P., D. I. WILSON, M. L. JOHNS, A. B. RUSSELL et X. D. CHEN. 2005, «NMR verification of single droplet freezing models», *AIChE Journal*, vol. 51, n° 10, doi :10.1002/aic.10521, p. 2640–2648, ISSN 00011541. [XIII, 22, 45](#)
- [30] HULST, H. C. et H. C. VAN DE HULST. 1981, *Light scattering by small particles*, Courier Corporation. [40](#)
- [31] JUNG, S., M. K. TIWARI, N. V. DOAN et D. POULIKAKOS. 2012, «Mechanism of supercooled droplet freezing on surfaces», *Nature Communications*, vol. 3, doi : 10.1038/ncomms1630, p. 615–618, ISSN 20411723. URL <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms1630>. [XIII, 21](#)

- [32] KERR, W. L., R. J. KAUTEN, M. J. MCCARTHY et D. S. REID. 1998, «Monitoring the formation of ice during food freezing by magnetic resonance imaging», *LWT-Food Science and Technology*, vol. 31, n° 3, p. 215–220. 45
- [33] KÖNIG, G., K. ANDERS et A. FROHN. 1986, «A new light-scattering technique to measure the diameter of periodically generated moving droplets», *Journal of aerosol science*, vol. 17, n° 2, p. 157–167. 44
- [34] KOOP, T. 2004, «Homogeneous ice nucleation in water and aqueous solutions», *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, vol. 218, n° 11, doi :10.1524/zpch.218.11.1231.50812, p. 1231–1258, ISSN 09429352. 16
- [35] KUHN, T., M. E. EARLE, A. F. KHALIZOV et J. J. SLOAN. 2011, «Size dependence of volume and surface nucleation rates for homogeneous freezing of supercooled water droplets», *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 11, n° 6, doi :10.5194/acp-11-2853-2011, p. 2853–2861, ISSN 16807316. 16
- [36] LEMOINE, F. et G. CASTANET. 2013, «Temperature and chemical composition of droplets by optical measurement techniques : a state-of-the-art review», *Experiments in fluids*, vol. 54, n° 7, p. 1572. XV, 41
- [37] LI, H. 2013, «Drop Impact on Dry Surfaces with Phase Change», *PhD thesis*, p. 296. URL <http://tuprints.ulb.tu-darmstadt.de/id/eprint/3550{%}%5CnDieses>. 12
- [38] LI, H., I. V. ROISMAN et C. TROPEA. 2015, «Influence of solidification on the impact of supercooled water drops onto cold surfaces», *Experiments in Fluids*, vol. 56, n° 6, doi :10.1007/s00348-015-1999-2, p. 1–13, ISSN 07234864. XIV, 39, 40
- [39] MARÍN, A. G., O. R. ENRÍQUEZ, P. BRUNET, P. COLINET et J. H. SNOEIJER. 2014, «Universality of tip singularity formation in freezing water drops», *Physical Review Letters*, vol. 113, n° 5, doi :10.1103/PhysRevLett.113.054301, p. 1–5, ISSN 10797114. XIV, 27, 28, 29
- [40] MARUYAMA, S., K. WAKABAYASHI et M. OGUNI. 2004, «Thermal properties of supercooled water confined within silica gel pores», dans *AIP Conference Proceedings*, vol. 708, American Institute of Physics, p. 675–676. 12
- [41] MEYRICK, G. et G. W. POWELL. 2003, «Phase Transformations in Metals and Alloys», *Annual Review of Materials Science*, vol. 3, n° 1, doi :10.1146/annurev.ms.03.080173.001551, p. 327–362, ISSN 0084-6600. 12, 13, 14, 22
- [42] MOHAMMADI, M., M. TEMBELY et A. DOLATABADI. 2017, «Supercooled Water Droplet Impacting Superhydrophobic Surfaces in the Presence of Cold Air Flow», *Applied Sciences*, vol. 7, n° 2, doi :10.3390/app7020130, p. 130. 12, 44
- [43] MÜLLER, T., G. GRÜNEFELD et V. BEUSHAUSEN. 2000, «High-precision measurement of the temperature of methanol and ethanol droplets using spontaneous raman scattering», *Applied Physics B*, vol. 70, n° 1, p. 155–158. 42
- [44] OPTIQUE, S. et J. J. KIELAR. 2016, «THÈSE interférométrique pour les applications aéroportées Présentée et soutenue par», . XV, 44

- [45] PAGE, A. J. et R. P. SEAR. 2009, «Crystallization controlled by the geometry of a surface», *Journal of the American Chemical Society*, vol. 131, n° 48, doi :10.1021/ja9085512, p. 17 550–17 551, ISSN 00027863. [12](#)
- [46] PORCHERON, E., P. LEMAITRE, A. QUÉREL, J. V. BEECK, R. VETRANO, M. BRUNEL et G. GREHAN. 2012, «Mesure aéroportée ILIDS de la taille des gouttes dans les nuages : le projet ALIDS du réseau EUFAR 2 Optimisation des paramètres du montage ILIDS à l' aide de», , n° 1, p. 18–21. [44](#)
- [47] PRICE, W. S., H. IDE, Y. ARATA et M. ISHIKAWA. 1997, «Visualisation of freezing behaviours in flower bud tissues of cold-hardy rhododendron japonicum by nuclear magnetic resonance micro-imaging», *Functional Plant Biology*, vol. 24, n° 5, p. 599–605. [45](#)
- [48] ROISMAN, I. V. 2009, «Inertia dominated drop collisions. ii. an analytical solution of the navier–stokes equations for a spreading viscous film», *Physics of Fluids*, vol. 21, n° 5, p. 052 104. [32](#)
- [49] SAENGKAEW, S., G. GODARD, J. BLAISOT et G. GRÉHAN. 2009, «Experimental analysis of global rainbow technique : sensitivity of temperature and size distribution measurements to non-spherical droplets», *Experiments in fluids*, vol. 47, n° 4-5, p. 839. [41](#)
- [50] SAENGKAEW, S., G. GODARD et G. GREHAN. 2018, «Global Rainbow Technique : Temperature evolution measurements of super-cold droplets», *ICLASS 2018, 14 th Triennial International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Chicago, IL, USA, July 22-26, 2018*, p. 1–7. [XV](#), [41](#), [42](#)
- [51] SCHREMB, M. 2018, «Dissertation : Hydrodynamics and Thermodynamics of Ice Accretion through Impact of Supercooled Large Droplets : Experiments, Simulations and Theory», *Http ://Tuprints.Ulb.Tu-Darmstadt.De/Id/Eprint/7398*, vol. 17. [XIII](#), [XIV](#), [12](#), [14](#), [18](#), [19](#), [34](#)
- [52] SCHREMB, M., I. V. ROISMAN, S. JAKIRLIC et C. TROPEA. 2016, «Freezing Behavior of Supercooled Water Drops Impacting onto a Cold», *27Th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray System*, , n° September, p. 4–7. [XIV](#), [23](#), [33](#)
- [53] SCHREMB, M., T. WEBERT et C. TROPEA. 2017, «Experimental Investigation of Supercooled Water Drops Impacting onto a Smooth Ice Surface : Interaction of Fluid Flow and Phase Change», *Proceedings of the 9th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics*, , n° June. [12](#)
- [54] SCHWARZER, M., T. OTTO, M. SCHREMB, C. MARSCHELKE, H. T. TEE, F. R. WURM, I. V. ROISMAN, C. TROPEA et A. SYNYSKA. 2019, «Supercooled Water Drops Do Not Freeze during Impact on Hybrid Janus Particle-Based Surfaces», *Chemistry of Materials*, vol. 31, n° 1, doi :10.1021/acs.chemmater.8b03183, p. 112–123, ISSN 15205002. [XIII](#), [20](#)
- [55] SCHWEIGER, G. 1990, «Raman scattering on single aerosol particles and on flowing aerosols : a review», *Journal of aerosol science*, vol. 21, n° 4, p. 483–509. [42](#)
- [56] SNOEIJER, J. H. et P. BRUNET. 2012, «Pointy ice-drops : How water freezes into a singular shape», *American journal of physics*, vol. 80, n° 9, p. 764–771. [27](#)

- [57] SPEEDY, R. J. 1987, «Thermodynamic properties of supercooled water at 1 atm», *Journal of Physical Chemistry*, vol. 91, n° 12, p. 3354–3358. 12
- [58] STOWERS, M. et S. FRIEDLANDER. 2002, «Chemical characterization of flowing polydisperse aerosols by raman spectroscopy», *Aerosol Science & Technology*, vol. 36, n° 1, p. 48–61. 42
- [59] STRUB, M., O. JABBOUR, F. STRUB et J. BÉDÉCARRATS. 2003, «Experimental study and modelling of the crystallization of a water droplet», *International journal of refrigeration*, vol. 26, n° 1, p. 59–68. 22
- [60] THIÉVENAZ, V., T. SEÓN et C. JOSSE RAND. 2019, «Solidification dynamics of an impacted drop», *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 874, n° Jones 1996, doi :10.1017/jfm.2019.459, p. 756–773, ISSN 14697645. XIV, 37
- [61] TROPEA, C. et A. L. YARIN. 2007, *Springer handbook of experimental fluid mechanics*, Springer Science & Business Media. 42
- [62] VALI, G. 2014, «Interpretation of freezing nucleation experiments : Singular and stochastic; Sites and surfaces», *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 14, n° 11, doi : 10.5194/acp-14-5271-2014, p. 5271–5294, ISSN 16807324. 16
- [63] VAN BEECK, J., D. GIANNOULIS, L. ZIMMER et M. RIETHMULLER. 1999, «Global rainbow thermometry for droplet-temperature measurement», *Optics letters*, vol. 24, n° 23, p. 1696–1698. 41
- [64] VAN BEECK, J. et M. RIETHMULLER. 1996, «Simultaneous determination of temperature and size of droplets from the rainbow using airy theory», dans *Developments in Laser Techniques and Applications to Fluid Mechanics*, Springer, p. 330–339. 40
- [65] VEHRING, R., H. MORITZ, D. NIEKAMP, G. SCHWEIGER et P. HEINRICH. 1995, «Linear raman spectroscopy on droplet chains : a new experimental method for the analysis of fast transport processes and reactions on microparticles», *Applied spectroscopy*, vol. 49, n° 9, p. 1215–1224. 42
- [66] WANG, L., W. KONG, F. WANG et H. LIU. 2019, «Effect of nucleation time on freezing morphology and type of a water droplet impacting onto cold substrate», *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 130, doi :10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.10.142, p. 831–842, ISSN 00179310. URL <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.10.142>. XIII, XIV, 15, 16, 34, 35, 36, 37
- [67] WARD, P. J. et P. J. DEMOTT. 1989, «Preliminary experimental evaluation of Snomax (TM) snow inducer, nucleus *Pseudomonas syringae*, as an artificial ice for weather modification», *The Journal of Weather Modification*, vol. 21, n° 1, p. 9–13, ISSN 0739-1781. URL <http://www.weathermodification.org/publications/index.php/JWM/article/view/351>{%}0A<http://www.weathermodification.org/publications/index.php/JWM/article/viewArticle/351>. 19
- [68] WHALE, T. F., B. J. MURRAY, D. O'SULLIVAN, T. W. WILSON, N. UMO, K. J. BAUSTIAN, J. D. ATKINSON, D. WORKNEH et G. MORRIS. 2015, «A technique for quantifying heterogeneous ice nucleation in microlitre supercooled water droplets», *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, vol. 8. 19

- [69] WILMS, J. et B. WEIGAND. 2006, «Mass transfer in evaporating binary mixture droplets», dans *International conference on liquid atomization and spray systems ICLASS, Kyoto, Japan*. 40
- [70] WILSON, P. W., A. F. HENEGHAN et A. D. HAYMET. 2003, «Ice nucleation in nature : Supercooling point (SCP) measurements and the role of heterogeneous nucleation», *Cryobiology*, vol. 46, n° 1, doi :10.1016/S0011-2240(02)00182-7, p. 88–98, ISSN 00112240. 16
- [71] WOOD, S. E., M. B. BAKER et B. D. SWANSON. 2002, «Instrument for studies of homogeneous and heterogeneous ice nucleation in free-falling supercooled water droplets», *Review of Scientific Instruments*, vol. 73, n° 11, doi :10.1063/1.1511796, p. 3988–3996, ISSN 0034-6748. 19, 20
- [72] XIAO, J. et S. CHAUDHURI. 2012, «Design of anti-icing coatings using supercooled droplets as nano-to-microscale probes», *Langmuir*, vol. 28, n° 9, p. 4434–4446. 22
- [73] XUE, X., Z. Z. HE et J. LIU. 2013, «Detection of water-ice phase transition based on Raman spectrum», *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 44, n° 7, doi :10.1002/jrs.4310, p. 1045–1048, ISSN 03770486. 43
- [74] ZHANG, C. et H. LIU. 2016, «Effect of drop size on the impact thermodynamics for supercooled large droplet in aircraft icing», *Physics of Fluids*, vol. 28, n° 6, doi :10.1063/1.4953411, p. 62 107, ISSN 1070-6631, 1089-7666. URL <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.4953411>. XIV, 27, 30

Chapitre 3

Caractérisation de gouttes surfondues par fluorescence induite par laser

Sommaire

3.1 Thermométrie par Fluorescence Induite par Laser	55
3.1.1 Le phénomène de fluorescence	55
3.1.2 Modèle à deux niveaux	56
3.1.3 Absorption et réabsorption	59
3.1.4 Dépendance en température d'un colorant fluorescent dissout dans un liquide	60
3.2 Développement d'une chaîne LIF pour la caractérisation d'eau à température négative	61
3.2.1 Caractérisation des traceurs fluorescents	61
3.2.2 Technique à un seul colorant et une couleur - LIF1c1d	63
3.2.3 Technique à un seul colorant et deux couleurs - LIF2c1d	64
3.2.4 Méthode à deux couleurs et deux colorants - LIF2c2d	64
3.2.5 Mélange développée pour l'eau surfondue	66
3.2.6 Montage optique de la chaîne LIF2c2d	68
3.3 Calibration en température	70
3.4 Étude du signal LIF en milieu diphasique (liquide/glace)	72
3.5 Calibration du rapport R_{31} en fonction de la fraction de glace dans un mélange d'eau liquide/glace	75
3.5.1 Étude de la variation de volume de l'eau en cours de solidification par LIF	75
3.5.1.1 Caractérisation de la fraction de glace par spectrométrie Raman	78
3.5.2 Mesures de la fraction de glace par Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire (IRMN)	80
3.5.2.1 Principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire	80
3.5.2.2 Dispositif de mesure par IRMN	82
3.5.3 Calibration du signal de fluorescence à l'aide des mesures IRMN . .	85
3.6 Influence des traceurs sur les propriétés physiques de l'eau en surfusion 86	86
3.6.1 Influence sur les propriétés physiques de l'eau	86
3.6.2 Influence des traceurs sur la température de solidification de l'eau en situation de surfusion	87

3.7 Effet de la taille des gouttes sur le signal de fluorescence	90
3.8 Conclusion du chapitre	93
3.9 Références	93

3.1 Thermométrie par Fluorescence Induite par Laser

Il a été montré dans la section 2.2 que très peu de techniques de mesure non-intrusives sont susceptibles d'être utilisées pour la caractérisation de l'eau surfondue. Ainsi, le développement d'une technique de mesure non-intrusive, permettant la caractérisation des transferts de masse et de chaleurs dans un fluide surfondu, reste donc un véritable challenge pour les expérimentateurs. En effet, pour permettre la caractérisation de la température de gouttes surfondues, la technique de mesure choisie doit répondre à différents critères :

1. Un temps de réponse court devant les transferts de masse et de chaleurs étudiés. Si de plus on souhaite s'intéresser à des conditions aéronautiques (vitesse de goutte pouvant atteindre 200 m.s^{-1}), la technique doit disposer d'un temps de réponse court.
2. Une bonne sensibilité en température sur la gamme ciblée, ici $[-40 \text{ °C}; +20 \text{ °C}]$.
3. Une sensibilité de la technique au changement de phase qui pourrait, en plus de la mesure de température, permettre une discrimination entre la phase liquide et la phase solide.
4. Une technique la plus faiblement intrusive possible.

Afin de répondre à ces différents critères, nous verrons que la Fluorescence Induite par Laser (LIF) semble une technique particulièrement bien appropriée. Pour cela, les principales caractéristiques du phénomène de fluorescence seront présentées. Puis, seront abordées les différentes étapes de développement d'une nouvelle chaîne de mesure par LIF pour la mesure de températures inférieure à 0 °C appliquée à des gouttes d'eau. Nous estimerons ensuite le potentiel de la technique pour la mesure de la fraction de glace, en comparant et étalonnant les mesures obtenues par LIF avec des mesures réalisées en spectroscopie Raman et par Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire.

3.1.1 Le phénomène de fluorescence

Avant de s'intéresser à la mesure de température par LIF, nous allons décrire de manière détaillée le phénomène de fluorescence. La fluorescence correspond à l'émission spontanée de photons lors du retour à l'état fondamental de molécules se trouvant dans un état préalablement excité. La molécule peut être placée dans un état excité de différentes manières : réactions chimiques, décharges ioniques, absorption d'un rayonnement électromagnétique... Dans le cas de la LIF, l'excitation provient de l'absorption du rayonnement lumineux issu d'un faisceau laser. L'utilisation d'un laser permet de par son caractère monochromatique, d'accorder au mieux sa longueur d'onde sur une raie d'absorption du spectre de la molécule et de plus possède une densité de flux lumineux très élevée. La fluorescence est par nature polychromatique du fait des multiples états vibrationnels des molécules. Elle est affectée d'un décalage spectral de type Stokes, vers le rouge, par rapport à la longueur d'onde incidente. Il s'agit d'une conséquence du principe de Franck Condon (Figure 3.1). En effet, dès lors que la molécule est placée dans son état excité, en général de type singulet, une relaxation vibrationnelle non radiative a lieu permettant une transition de la molécule vers un état de plus basse énergie, correspondant à une configuration géométrique stable. Notons que le temps d'absorption d'un photon par une molécule est de l'ordre de la femtoseconde alors que la durée de vie d'un état excité de fluorescence est de l'ordre de quelques nanosecondes. C'est ce qui explique l'état de déséquilibre rencontré lorsqu'une molécule parvient à l'état excité. Les différents modes

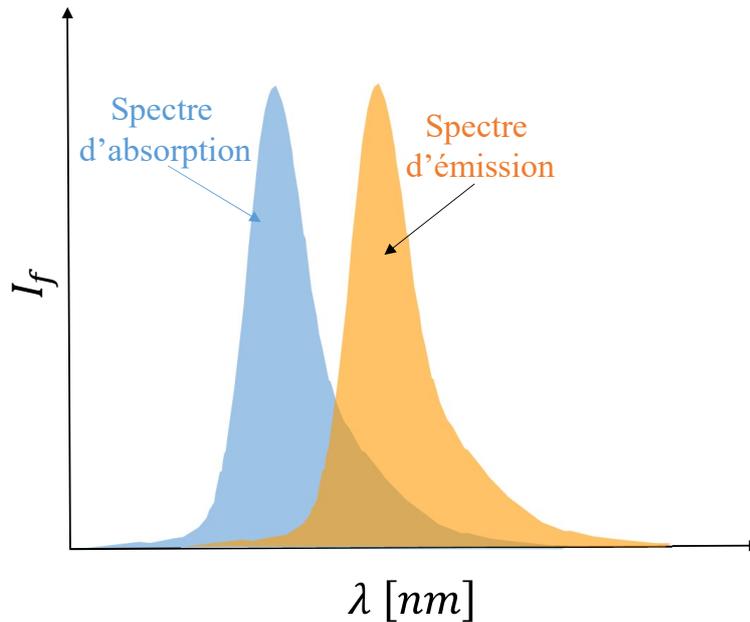


FIGURE 3.1 – Schéma des spectres d'absorption et d'émission d'une molécule fluorescente.

de désexcitation d'une molécule, résumés dans le diagramme de Jablonsky (Figure 3.2), sont :

- L'émission spontanée de photons (fluorescence) correspondant à la désexcitation vers l'état fondamentale par une émission d'un rayonnement électromagnétique.
- Les conversions internes (CI) correspondant aux transferts résonnant entre les niveaux de l'état excité d'énergie comparable.
- La désexcitation collisionnelle (quenching) due aux collisions inélastiques entre les molécules. Deux types de quenching peuvent être invoqués : le quenching dû aux collisions avec les molécules composant la phase porteuse (et dans laquelle sont dispersées les molécules fluorescentes) et aux collisions entre les molécules fluorescentes elles-mêmes lorsque leurs concentrations est élevée en particulier (self-quenching).
- Les conversions inter-systèmes (CIS), correspondant au passage à un état intermédiaire de type triplet, métastable, qui se désexcite ensuite soit par quenching ou par émission spontanée. Cette dernière est plus connue sous le nom de phosphorescence. La phosphorescence est caractérisée par une durée de vie relativement longue pouvant aller de la milliseconde à plusieurs minutes, voire quelques heures.

Notons que la durée de vie de l'état excité étant de quelques nanosecondes, dans le cas de la fluorescence [19], il devrait être possible de caractériser des phénomènes rapides en analysant le signal de fluorescence [8] [14].

3.1.2 Modèle à deux niveaux

Afin de décrire le phénomène de fluorescence, plaçons nous dans le cas de molécules dissoutes dans un liquide en concentration très minoritaire. Considérons un système à deux niveaux d'énergie : l'état fondamental et l'état excité (notés respectivement 1 et 2, Figure 3.3) [16]. Notons N_1 et N_2 les populations de molécules dans l'état fondamental et l'état excité à un instant t . La répartition de molécules dans les deux niveaux d'énergie

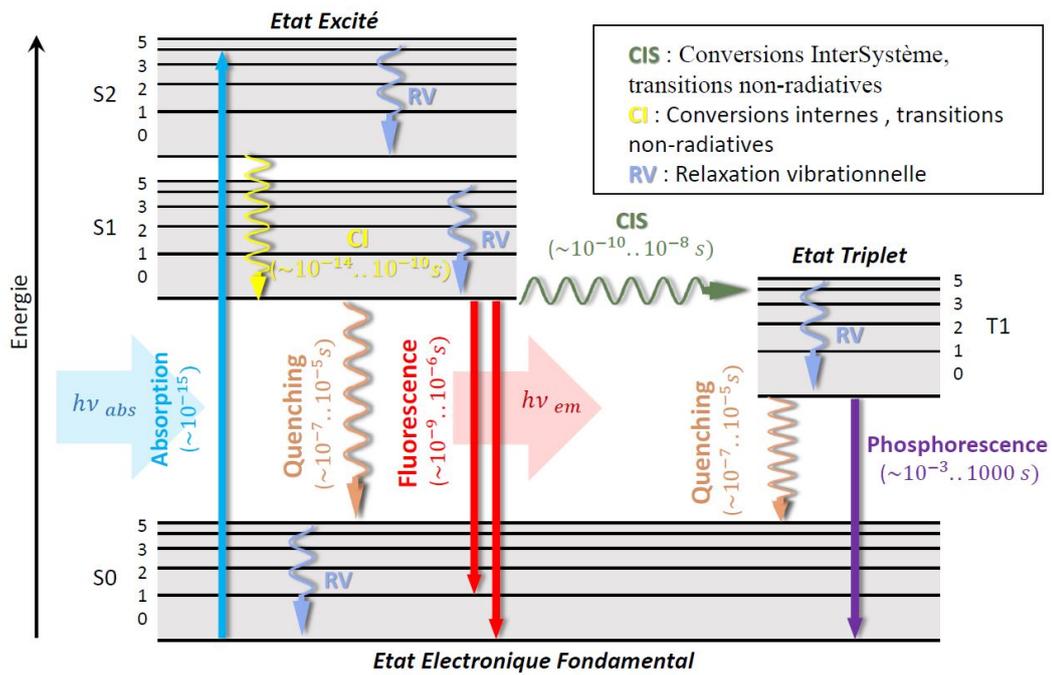


FIGURE 3.2 – Diagramme de Jablonsky résumant les différents phénomènes photophysiques se produisant lors de l'excitation d'une molécules photo-active par un rayonnement électromagnétique.

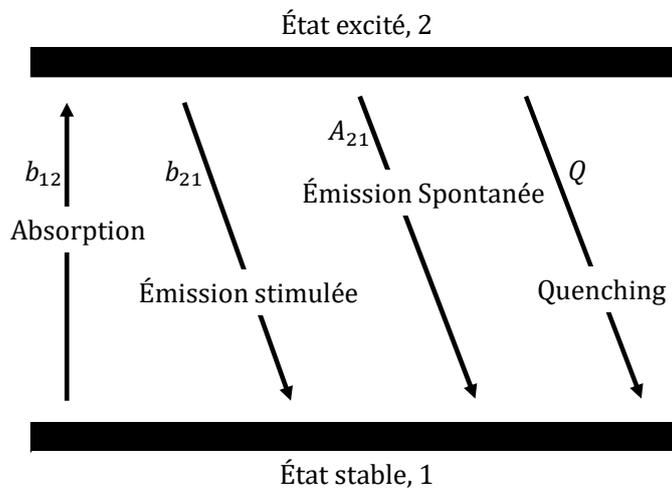


FIGURE 3.3 – Diagramme d'énergie d'une molécule à deux niveaux représentant les différents échanges photophysiques entre ceux-ci.

peut être déterminée à partir d'un bilan de population :

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} = N_1 b_{12} - N_2 (b_{21} + A_{21} + Q) \quad (3.1)$$

b_{12} représente le taux de transition de l'état fondamental vers l'état excité. b_{21} , A_{21} et Q représentent les taux de désexcitation de l'état 2 vers 1 par émission spontanée et par désexcitation collisionnelle. Le taux de désactivation par émission stimulé étant généralement très faible devant les autres modes de désexcitation, il est possible de négliger ce mode de transfert. L'absorption est en générale proportionnelle au flux de photons excitateurs (en régime linéaire). Ainsi, les coefficients b_{21} et b_{12} dépendent de l'irradiance spectrale du

laser I_{laser} ($W.m^{-2}$) à la fréquence des transitions :

$$b_{12} = \frac{B_{12} I_{\lambda}}{C_{\lambda}}, \quad b_{21} = \frac{B_{21} I_{\lambda}}{C_{\lambda}} \quad (3.2)$$

avec $B_{12} = B_{21}$ les coefficients d'Einstein pour l'absorption et l'émission stimulée. C_{λ} représente un facteur de conversion ayant les mêmes unités que I_{laser} . À l'instant initial, l'ensemble des molécules se trouve dans l'état fondamental, ce qui correspond à $N_1 = N_1^0$ et $N_2 = 0$ la population des états à $t = 0$. A tout instant t , il y a conservation du nombre de molécules :

$$N_1 + N_2 = N_1^0 \quad (3.3)$$

Il est donc possible de modéliser l'évolution de la population dans l'état excité 1 par l'équation cinétique :

$$\frac{dN_2}{dt} = b_{12} N_1^0 - N_2 \frac{1}{\tau}, \quad \tau = (b_{12} + A_{21} + Q)^{-1} \quad (3.4)$$

τ représente la durée de vie de l'état excité qui est de l'ordre de la nanoseconde. En considérant, que la durée d'excitation est grande devant τ (valable pour la grande majorité des types d'excitation laser même impulsionnelles), il est possible d'estimer la population dans l'état 2 par :

$$N_2 = \frac{B_{12}}{A_{21} + Q} \frac{I_{f,\lambda}}{\left(1 + \frac{I_{laser}}{I_{sat}}\right)} N_1^0 \quad (3.5)$$

avec $I_{sat} = \frac{A_{21} + Q}{B_{12} + B_{21}} C_{\lambda}$ l'intensité de la saturation de la fluorescence. En régime permanent ($t \gg \tau$), l'intensité de fluorescence à la longueur d'onde λ ($I_{f\lambda}$) s'exprime par :

$$I_{f\lambda} \propto A_{21} N_2 = B_{12} \phi(\lambda) \frac{I_{\lambda}}{\left(1 + \frac{I_{\lambda}}{I_{sat}}\right)} N_1^0 \quad (3.6)$$

$\phi(\lambda)$ représente le rendement quantique de fluorescence d'une molécule ($\phi(\lambda) = A_{21} / (A_{21} + Q_{21})$). Le signal de fluorescence collecté dans un volume V_c et détecté par un photodétecteur peut être exprimé par :

$$I_{f\lambda} = K_{opt} \frac{\Omega}{4\pi} \epsilon \phi(\lambda) \frac{I_{\lambda}}{\left(1 + \frac{I_{\lambda}}{I_{sat}}\right)} V_c c_0 \quad (3.7)$$

K_{opt} représente l'efficacité de transmission des optiques de collection et des détecteurs à une longueur d'onde donnée, Ω est l'angle solide de collection, c_0 est la concentration molaire en molécules fluorescentes et ϵ le coefficient d'absorption molaire des molécules fluorescentes à la longueur d'onde du laser. Trois régimes de fluorescence peuvent donc être distingués (Figure 3.4) :

- Pour $I_{\lambda} \ll I_{sat}$, le signal de fluorescence est proportionnel avec l'intensité laser incidente (régime linéaire).
- Pour I_{λ} de l'ordre de I_{sat} , le régime est partiellement saturé et l'intensité de fluorescence n'est plus linéaire avec l'excitation laser.
- Pour $I_{\lambda} > I_{sat}$, Le régime est dit saturé, ce qui signifie que le signal de fluorescence ne dépend plus de l'intensité excitatrice.

La dépendance en température du signal de fluorescence provient de deux facteurs présent dans l'équation 3.7 :

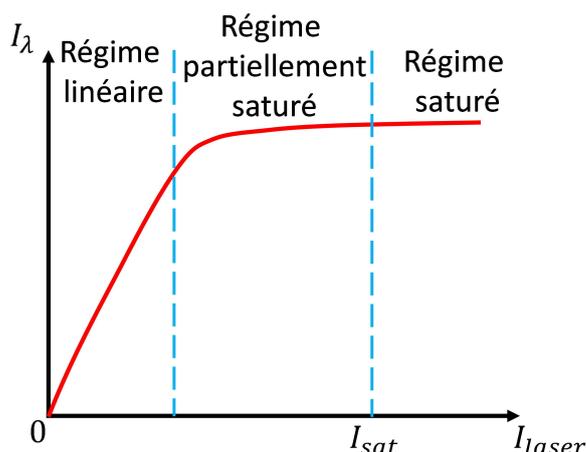


FIGURE 3.4 – Différents régimes de la fluorescence : évolution de l'intensité de fluorescence en fonction de l'intensité de l'excitation laser.

1. La variation du rendement quantique de fluorescence avec la température, du fait des phénomènes de quenching collisionnel qui tendent à réduire l'intensité de fluorescence lorsque la température du milieu augmente.
2. La variation du coefficient d'absorption molaire avec la température du milieu, qui est directement liée à la variation de la section efficace d'absorption de la molécule avec la température.

Dans la suite, nous considérerons que le signal de fluorescence est en régime linéaire puisqu'une source laser continue, de puissance modérée, sera utilisée.

3.1.3 Absorption et réabsorption

Afin de réaliser des mesures de fluorescence en régime linéaire, d'importantes précautions sont à prendre. En effet, l'intensité du signal de fluorescence collecté peut être atténué par deux facteurs : i- absorption de l'intensité laser et ii- réabsorption du signal de fluorescence par le milieuensemencé en molécules fluorescentes. La première est liée à l'absorption de l'intensité laser sur un chemin optique l_1 , la seconde correspond à la réabsorption du signal de fluorescence, sur le chemin optique de collection du signal l_2 (Figure 3.5). La relation entre l'intensité incidente I_0 et l'intensité au point de mesure I_{0m} après un chemin optique l_1 dans le milieu absorbant dont la concentration en molécules absorbantes est c_0 est donné par la loi de Beer-Lambert :

$$I_{0m} = I_0 e^{(-l_1 \epsilon(\lambda_{laser}) c_0)} \quad (3.8)$$

Comme les spectres d'émission et d'absorption de la fluorescence se chevauchent, une partie du signal de fluorescence émis au point de mesure peut être réabsorbée sur le chemin optique l_2 :

$$I_f(\lambda) = K_{opt} c_0 V_c \phi(\lambda) I_{0m} e^{(-l_2 \epsilon(\lambda) c_0)} \quad (3.9)$$

Sous certaines conditions, l'équation précédente peut être simplifiée. Notamment quand les phénomènes d'absorption de l'intensité incidente ou de réabsorption peuvent être négligés. Par exemple, dans le cas du kiton red pour une concentration de $5 \times 10^{-6} mol.L^{-1}$, ces phénomènes peuvent être négligés pour des chemins optiques inférieurs au millimètre.

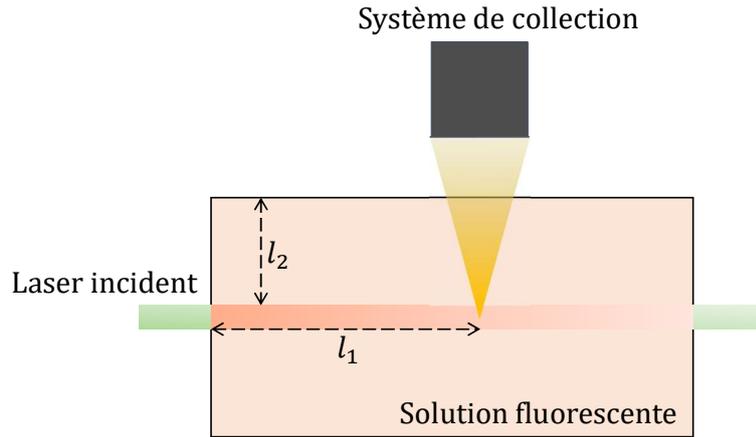


FIGURE 3.5 – Schéma du principe d'absorption et de réabsorption du signal de fluorescence

3.1.4 Dépendance en température d'un colorant fluorescent dissout dans un liquide

La thermodépendance est une propriété intrinsèque du colorant fluorescent (fluorophore) utilisé et du solvant dans lequel il est dissout. Du fait des sensibilités potentielles du coefficient d'absorption (section efficace) et du rendement quantique de fluorescence, l'intensité de fluorescence peut augmenter ou diminuer avec la température ou encore ne pas y être du tout sensible. Afin de quantifier la variation de signal de fluorescence avec la température, Chaze et al. [7] ont introduit un coefficient de sensibilité s . Ce paramètre est indépendant de la gamme de température et uniquement dépendant de la longueur d'onde et de la molécule fluorescente utilisée. Soit I_f le signal de fluorescence intégré sur tout le spectre d'émission, alors s s'écrit :

$$s = \frac{1}{I_f} \frac{dI_f}{dT} \quad (3.10)$$

Notons, que s ne dépend pas de la température mais est dépendant de la longueur d'onde considérée ($s(\lambda)$). Le signal de fluorescence $I_{f,\lambda}$, à une longueur d'onde λ donnée et collectée par un dispositif optique, peut s'écrire dans les cas des phénomènes d'absorption et de réabsorption négligeables :

$$I_{f,\lambda} = K_{opt,\lambda} c_0 V_c I_0 e^{(s(\lambda) T)} \quad (3.11)$$

avec I_0 l'excitation laser local, c_0 la concentration en traceur fluorescent, V_c le volume de collection et $K_{opt,\lambda}$ une constante dépendant du traceur et de la chaîne optique de détection à une longueur d'onde donnée. La connaissance des paramètres $K_{opt,\lambda}$ et V_c peut s'avérer difficile. Dans la pratique, il est nécessaire d'utiliser un signal de référence $I_{f,\lambda,ref}$ à une température connue T_0 pour permettre une mesure de température par LIF :

$$\frac{I_{f,\lambda}}{I_{f,\lambda,ref}} = e^{(T-T_0)} \quad (3.12)$$

Cette prise de référence permet donc, dans certain cas, une mesure direct de la température du milieu. Notons aussi que dans la pratique le signal de fluorescence est détectée sur une bande spectral d'une largeur de plusieurs nanomètres. Le terme "couleur" dans la suite se référera à l'intégration du signal de fluorescence sur une bande spectral.

3.2 Développement d'une chaîne LIF pour la caractérisation d'eau à température négative

Dans le cadre de l'utilisation de la LIF pour la mesure de température, l'objectif principal est d'identifier des traceurs fluorescents ayant une sensibilité en température la plus élevée possible. Il existe dans la littérature un très grand nombre d'études sur la thermosensibilité des traceurs fluorescents en solution aqueuse [9] [7]. L'ensemble de ces études avait pour objectif l'utilisation de la LIF pour la mesure de température positive [12] [13] [14] [5] [2] [5] [8] [7] [20] [18], c'est à dire dans des situations mettant en jeu des gouttes en évaporation évoluant dans une atmosphère surchauffée ou dans une situation d'impact sur des parois à hautes températures. Cependant, à notre connaissance, aucune étude visant à la caractérisation de traceurs fluorescents pour son application à des gouttes surfondues n'a été menée jusqu'à présent. Dans ces travaux, l'excitation laser des colorants sera réalisée à l'aide d'une source laser continue dont la longueur d'onde correspond à celle du laser Nd-Yag doublée ($\lambda = 532\text{nm}$) et ayant une distribution d'énergie gaussienne. Dans une première étape, il faut donc sélectionner des traceurs susceptibles d'absorber ce rayonnement laser. Puis, dans une seconde étape, l'étude de la thermosensibilité de ces traceurs doit être réalisée afin de choisir le traceur optimal pour des mesures à températures négatives.

3.2.1 Caractérisation des traceurs fluorescents

Afin de caractériser en température des traceurs fluorescents, la première étape consiste à mesurer leurs spectres d'absorption en solution dans l'eau. Une étude non-exhaustive de quelques colorants a été réalisée par Chaze et al. [6] à l'aide d'un spectromètre d'absorption (Varian Cary 500 UV-Vis NIR). Ces spectres, représentés sur la Figure 3.6, sont normalisés par rapport à leur maximum d'absorption. Ils permettent une caractérisation de l'efficacité d'absorption vis-à-vis du rayonnement laser à 532 nm par rapport à la position du pic d'absorption. L'utilisation de la Rhodamine 6G permet l'obtention du meilleur rendement car son maximum d'absorption se trouve très proche de 532 nm. Au contraire, l'utilisation de la fluorescéine conduit à une faible efficacité (maximum d'absorption centré autour de 480 nm). La caractérisation de l'émission de fluorescence en fonction de la température a ensuite été réalisée pour certains traceurs en vue de leurs utilisations pour de l'eau surfondue. Pour cela un dispositif présenté sur la Figure 3.7 a été conçu : il s'agit d'une cuve aux faces transparentes, de dimension $4 \times 4\text{ cm}$ insérée entre deux échangeurs dans lequel un fluide caloporteur s'écoule (Julabo Thermal HL80). Le contrôle en température du fluide caloporteur est assuré par un groupe froid (Lauda ®) permettant d'atteindre des températures d'eau jusque -15 °C . Ainsi, le dispositif est muni de trois accès optiques : deux en face à face pour le passage du faisceau laser et un troisième à angle droit pour la mesure du signal de fluorescence. Un thermocouple (type K, diamètre 0,1 mm) est placé dans la cuve pour mesurer la température du fluide. Le faisceau laser est placé au plus près de la paroi de la cuve pour minimiser la réabsorption (longueur l_2 Figure 3.12). L'étude a été réalisée pour quatre traceurs différents : la rhodamine B, le kiton red, la rhodamine 560 et l'éosine Y (Eo), tous absorbant la longueur d'onde de 532 nm. Afin de mesurer le spectre de fluorescence, le signal est collecté perpendiculairement au faisceau laser, sur toute l'ouverture numérique d'une fibre optique reliée à un mini-spectromètre à réseau (StellarNet Inc. Black-Comet). Les spectres d'émission à différentes températures normalisés par le maximum d'émission sont présentés sur la Figure 3.8. Trois types de comportements peuvent être observés :

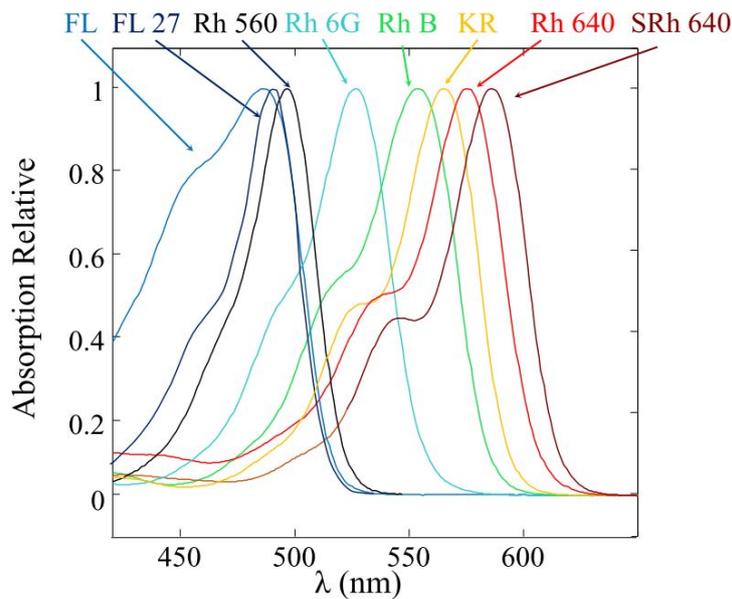


FIGURE 3.6 – Spectres d’absorption normalisés de différents colorants en solution aqueuse. FL : Fluorescein dissodium, FL 27 : Fluorescein 27, Rh560 : Rhodamine 560, Rh6G : Rhodamine 6G, RhB : Rhodamine B, KR : Kitonred, Rh640 : Rhodamine 640, SRh640, Sulforhodamine 640. [6]

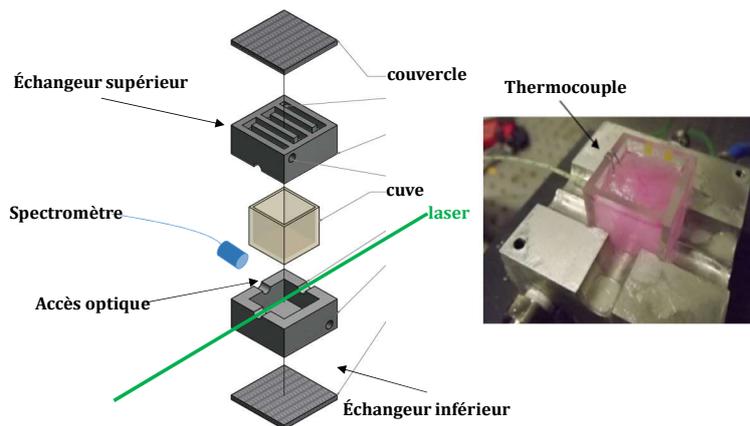


FIGURE 3.7 – Dispositif de refroidissement et d’étude du signal de fluorescence de l’eau contenu dans une cuve.

- L’intensité de fluorescence augmente avec la température (rhodamine 560).
- L’intensité de fluorescence augmente lorsque la température décroît (kiton red, rhodamine B).
- L’intensité ne varie pas ou très peu avec la température (éosine).

Pour chaque traceur, sont ajoutée sur la Figure 3.8 l’évolution de la sensibilité (s , équation 3.11) en fonctions de la longueur d’onde. Certains traceurs, comme la rhodamine B ou le kiton red, sont intéressants pour mesurer des températures dans la gamme $[+10; -10]$ °C car leurs sensibilités en température global est de l’ordre de $-2,4 \text{ \%/}^\circ\text{C}$. Ces deux traceurs ont été largement employés pour la mesure de température de goutte en évaporation[14]. Au contraire la rhodamine 560 varie très peu avec la température $+0,8 \text{ \%/}^\circ\text{C}$.

Afin de mesurer la température d’un liquide par LIF, différentes méthodes peuvent être envisagées :

1. Technique à un seul colorant (1d) et une couleur (1c) appelée LIF1c1d.

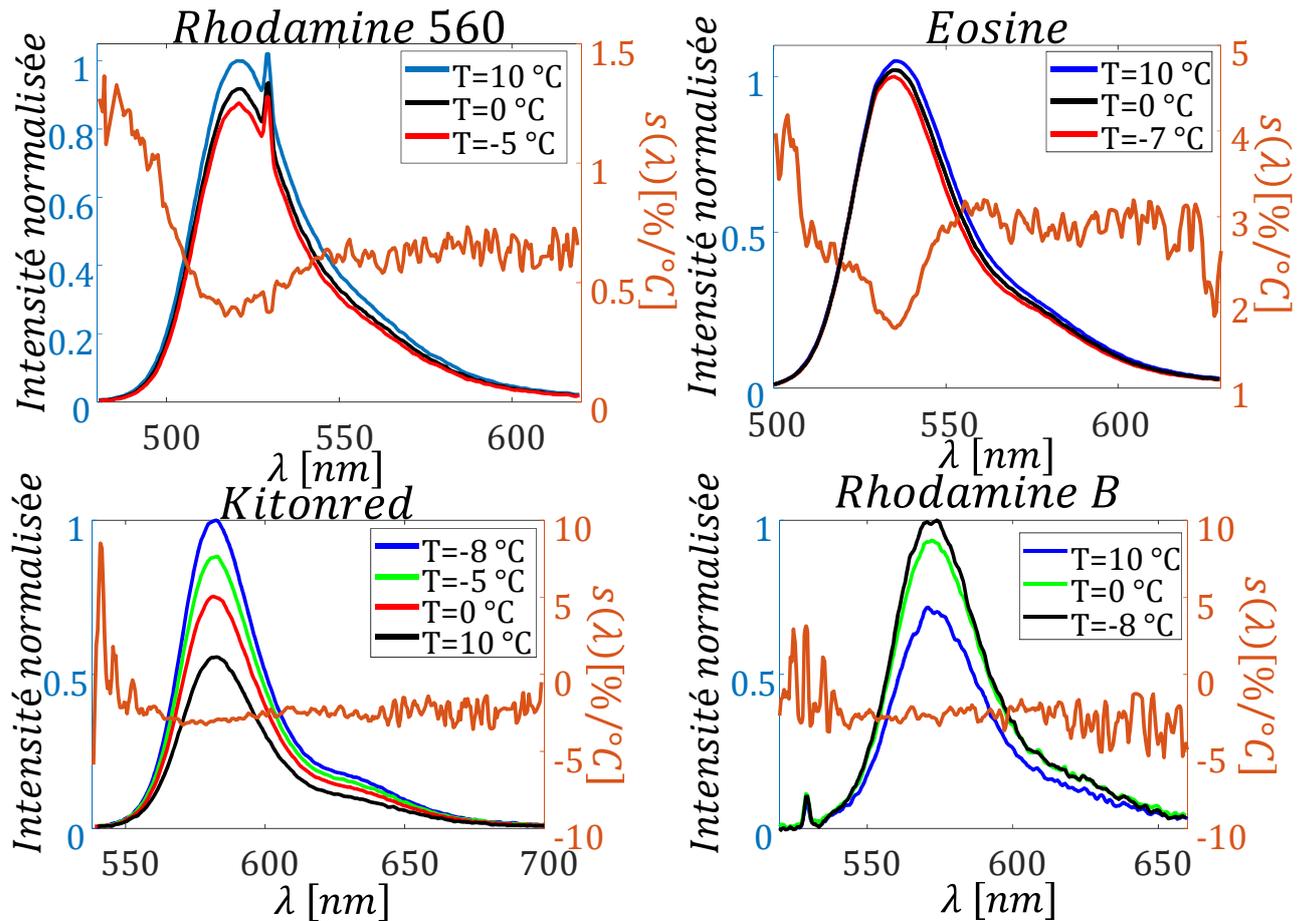


FIGURE 3.8 – Spectres normalisés par rapport au maximum d'émission à différentes températures pour la rhodamine 560, l'éosine Y, Le kiton red et la rhodamine B. L'axe de droite représente l'évolution de la sensibilité en fonction de la longueur d'onde.

2. Technique à un seul colorant (1d) et deux couleurs (2c) appelée LIF2c1d.
3. Technique à un deux colorants (2d) et deux couleurs (2c) appelée LIF2c2d.

3.2.2 Technique à un seul colorant et une couleur - LIF1c1d

D'après l'équation 3.11, le signal de fluorescence est dépendant de nombreux paramètres. En maintenant constante la concentration, en s'assurant d'un volume de mesure et d'une intensité d'excitation laser invariables, une mesure de température est tout à fait possible [17]. À l'inverse, en maintenant constant l'ensemble des paramètres exceptée la concentration, une mesure de ce dernier paramètre est possible. Cependant, ce type de mesure présente un certain nombres d'inconvénients :

- L'ensemble des paramètres de l'équation 3.11 doivent être contrôlé et maintenu constant durant l'expérience.
- L'application de cette technique aux écoulement diphasique lorsqu'une interface du type liquide/gaz déformable est présente est impossible car le volume de collection ne peut plus être maintenu constant.

3.2.3 Technique à un seul colorant et deux couleurs - LIF2c1d

Cette technique a été initialement développée par Lavieille et al. [15]. Le principe de cette technique consiste à mesurer simultanément le signal de fluorescence sur deux bandes spectrales distinctes, présentant des sensibilités en température différentes. Comme le montre la Figure 3.8, la sensibilité en température est dépendante de la longueur d'onde. Ainsi, le rapport des intensités de fluorescence collectées sur chacune des bandes spectrales, judicieusement choisies, sera indépendant des paramètres non maîtrisés. L'équation 3.11, dans le cas de l'intégration du signal de fluorescence sur une bande spectrale i , s'écrit :

$$I_{f,i} = K_{opt,i} c_0 V_c I_0 e^{(s_i T)} \quad (3.13)$$

L'indice i désigne la bande spectrale de détection ($i = 1, 2$). Le calcul du rapport R_{12} entre les intensités de fluorescence collectées respectivement sur les bandes spectrales 1 et 2 s'écrit :

$$R_{12} = \frac{I_{f,1}}{I_{f,2}} = \frac{K_{opt,1} c_0 V_c I_0 e^{(s_1 T)}}{K_{opt,2} c_0 V_c I_0 e^{(s_2 T)}} \quad (3.14)$$

Le calcul du rapport entre les intensités de fluorescence mesurées sur chacune des bandes spectrales permet d'éliminer la dépendance à l'intensité laser, à la concentration en traceur fluorescent ainsi qu'au volume de collection :

$$R_{12} = \frac{I_{f,1}}{I_{f,2}} = \frac{K_{opt,1}}{K_{opt,2}} e^{(s_1 - s_2) T} \quad (3.15)$$

Afin de déterminer le rapport $K_{opt,1}/K_{opt,2}$, et d'établir une relation directe entre le rapport de fluorescence et la température, une mesure de référence où la température est connue par un autre moyen (thermocouple) du rapport de fluorescence $R_{12,0}$ à une température T_0 est effectuée. On obtient alors un rapport de fluorescence normalisé :

$$\frac{R_{12}}{R_{12,0}} = e^{(s_1 - s_2)(T - T_0)} \quad (3.16)$$

La sensibilité différentielle $s_1 - s_2$ doit être préalablement calibrée dans des conditions contrôlées et maîtrisées, comme dans une cuve régulée en température. Cette technique de LIF2c1d a été largement utilisée pour la mesure de température de gouttes d'éthanol en évaporation [3], en combustion [4] ou pour la mesure de température de gouttes d'eau dans les sprays [14]. L'avantage majeur de cette technique est de n'utiliser qu'un seul colorant fluorescent. Bien que cette technique a l'avantage d'être insensible à un grand nombre de paramètres, différents désavantages peuvent être énumérés :

1. La sensibilité en température du rapport de fluorescence reste relativement modeste. De l'ordre de 1 %/°C pour les traceurs étudiés dissous dans l'eau, inférieur à 1 %/°C.
2. En outre, l'intensité du signal de fluorescence sur la bande spectrale la plus courte (gauche du spectre d'émission) est relativement faible devant celui de la seconde bande spectrale choisies (droite du spectre d'émission).

3.2.4 Méthode à deux couleurs et deux colorants - LIF2c2d

Cette technique consiste àensemencer le fluide avec un couple de traceurs fluorescents dont leurs sensibilités en température sont différentes. Par exemple, l'utilisation d'un traceur sensible et d'un autre non-sensible à la température est préconisée [21] [22].

La différence de sensibilité en température entre les deux espèces permet en général d'accroître la sensibilité de la technique LIF2c2d par rapport à celle de LIF2c1d. Les spectres de fluorescence de chacun des colorants doivent être suffisamment séparés pour permettre la collection de leur signal de fluorescence de manière la plus indépendante possible. Cependant, différentes précautions doivent être prises lors de l'utilisation de deux traceurs fluorescents. La première est de s'assurer qu'aucune interaction photophysique n'existe entre les colorants tel que le FRET (Fluorescence Resonant Energy Transfer). Des erreurs de mesure peuvent provenir du fait du recouvrement des spectres d'émission et d'absorption des colorants, appelé conflits spectraux. Les différents types de conflits spectraux pouvant exister, résumés sur la Figure 3.9, sont :

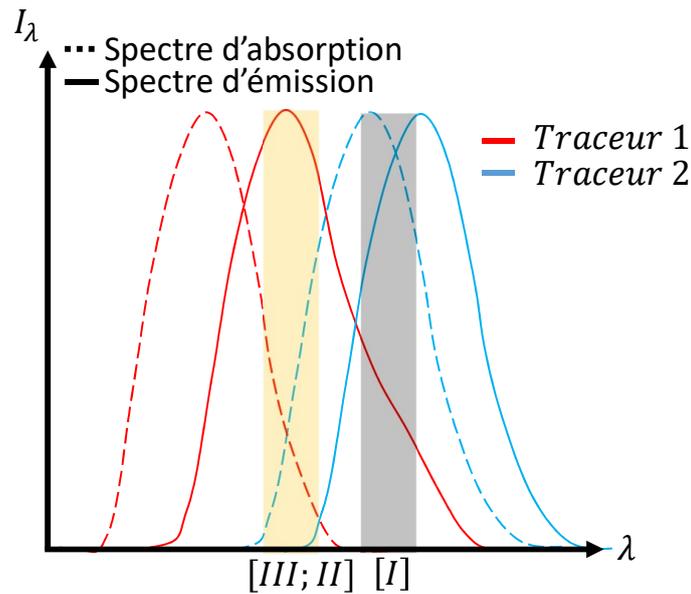


FIGURE 3.9 – Illustrations des trois types de conflits spectraux.

1. **Conflit spectral de type I** : il y a chevauchement de l'émission des deux traceurs sur une même bande spectrale. Afin de réduire les erreurs de ce type de conflit, il faut choisir un meilleur couple ou modifier judicieusement les bandes spectrales de détection.
2. **Conflit spectral de type II** : ce conflit prend place lorsqu'il y a réabsorption de l'émission d'un colorant par le second. Afin de minimiser les erreurs de mesure pour ce type de conflit, plusieurs solutions peuvent être préconisées : i- minimiser le produit entre chemin optique et concentration du traceur absorbant afin de rendre négligeable le terme de réabsorption (équation 3.9), ou ii- travailler à chemin optique constant.
3. **Conflit spectral de type III** : dans ce cas, il y a chevauchement du spectre d'émission du colorant 1 et du spectre d'absorption du colorant 2, mais en plus la section efficace du colorant 2 est sensible à la température. Dans ce cas, il est impératif de minimiser le produit entre le chemin optique et la concentration du colorant absorbant.

Dans le cas de la technique de LIF2c2d, le signal sur une bande spectral 1 peut s'écrire :

$$I_{f,1} = K_1 c_1 V_c I_0 e^{s_1 T} \quad (3.17)$$

avec c_1 la concentration du traceur 1. Le signal sur une bande spectrale 2 s'écrit :

$$I_{f,2} = K_2 c_2 V_c I_0 e^{s_2 T} \quad (3.18)$$

Le rapport de fluorescence R_{12} est donc, dans le cas de la technique LIF2c2d, dépendant du rapport des concentrations :

$$R_{12} = \frac{K_1 C_1}{K_2 C_2} e^{(s_1 - s_2)T} \quad (3.19)$$

Comme dans la technique de LIF2c1d, il est nécessaire de prendre une référence du rapport de fluorescence mesuré sur les deux bandes spectrales à une température T_0 connue :

$$\frac{R_{12}}{R_{12,0}} = e^{(s_1 - s_2)(T - T_0)} \quad (3.20)$$

Afin de maximiser la sensibilité en température, nous avons fait le choix, pour le cas de l'eau surfondue, d'utiliser cette dernière méthode de LIF2c2d.

3.2.5 Mélange développée pour l'eau surfondue

Afin de mettre en œuvre la technique de LIF2c2d, l'étude préliminaire de différents traceurs (Figure 3.8) nous a orienté vers l'utilisation d'un mélange composé de rhodamine 560 et de kiton red. Ces deux traceurs répondent en effet à différents critères intéressants :

1. Solubilité dans l'eau.
2. Tous deux absorbent le rayonnement laser à 532 nm.
3. La rhodamine 560 possède un spectre d'émission centré autour de 525 nm et le kiton red autour de 580 nm. Les émissions de fluorescence des deux espèces sont donc bien séparées, ce qui permet de prévenir le conflit spectral de type I.
4. Les espèces possèdent des sensibilités en température qui évoluent en sens inverse (Figure 3.8). L'intensité de la rhodamine 560 augmente avec la température tandis que celle du kiton red diminue.

La Figure 3.10 présente les spectres d'absorption et d'émission des deux traceurs sélectionnés. Des zones de conflits spectraux de type II autour de la bande spectrale [540 nm -

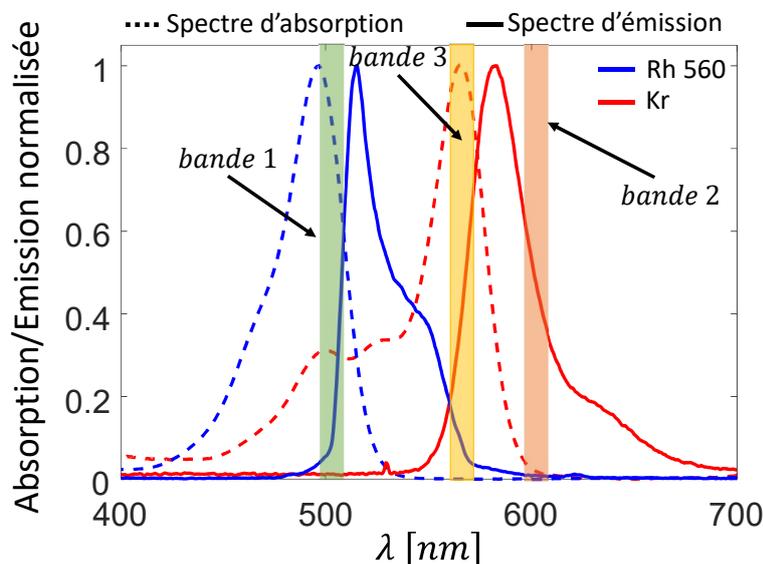


FIGURE 3.10 – Spectres d'absorption et d'émission de la rhodamine 560 et du kiton red à température ambiante. Chaque spectre est normalisé par son maximum.

560 nm] peuvent être observées. Ainsi, pour minimiser ce conflit, il sera nécessaire de négliger les effets d'absorption et de réabsorption du signal de fluorescence, par un choix adéquate des concentrations respectives des deux traceurs fluorescents. Ce point sera justifié par la suite pour les bandes spectrales choisies. Ainsi, les concentrations choisies sont :

1. rhodamine 560 : $c_{Rh560} = 5 \times 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$.
2. kiton red : $c_{Kr} = 5 \times 10^{-7} \text{ mol.L}^{-1}$.

Afin de choisir les bandes spectrales pour réaliser une mesure de température, une étude du spectre de fluorescence du mélange rhodamine 560/kiton red, obtenu à différentes températures du milieu, a été menée. La Figure 3.11 présente les résultats pour trois températures différentes, notamment pour des températures négatives. Le pic d'émission à 532 nm correspond à la diffusion du laser. Comme vu précédemment, la sensibilité en température de la rhodamine 560 est de l'ordre de +0,8 %/°C et celle du kiton red est de l'ordre de -2,4 %/°C. Sur la Figure 3.11, est ajoutée l'évolution de la sensibilité en tem-

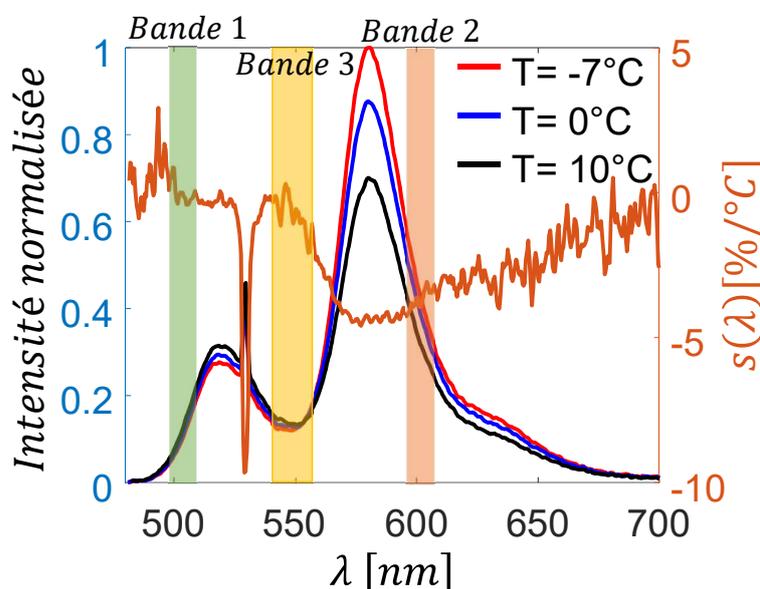


FIGURE 3.11 – Spectres du mélange Rh560/Kr pour différentes températures normalisés par la température la plus basse et évolution de la sensibilité en température.

pérature en fonction de la longueur d'onde et permet de choisir les bandes spectrales optimisant la sensibilité résultante en température. Deux extrema de sensibilité sont observés, l'un au voisinage de 500 nm et l'autre de 600 nm, ce qui a conduit au choix des bandes spectrales suivant :

- **Bande spectrale 1** : [496 nm; 517 nm]
- **Bande spectrale 2** : [595 nm; 615 nm]

Les bandes spectrales choisies pour la mesure de température ont été représentées sur les Figure 3.10 et 3.11. L'ajout d'une troisième bande spectrale sera discuté dans la suite. Ces bandes ont été choisies pour obtenir une différence de sensibilités importantes entre les bandes spectrales tout en diminuant les conflits spectraux. Pour la bande spectrale 2, aucun conflit spectral n'est présent. Cependant, le signal de la bande spectrale 1 est susceptible d'être absorbé par la rhodamine 560 et le kiton red (Figure 3.10). Les concentrations ont été choisies de telle sorte à ce que les phénomènes d'absorption et de réabsorption soit négligeable dans le cas d'une goutte. Dans le cas des gouttes qui seront mise en jeux

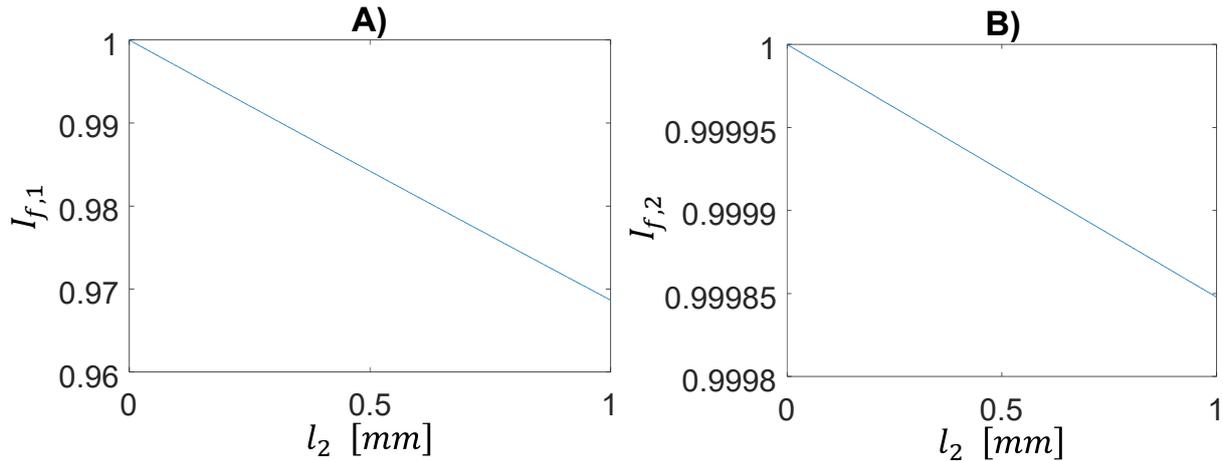


FIGURE 3.12 – Évolution du signal de fluorescence en fonction du chemin optique sur les bandes spectral 1 et 2 (réabsorption), pour une concentration $c_{Rh560} = 5 * 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ et $c_{Kr} = 5 * 10^{-7} \text{ mol.L}^{-1}$.

dans le cadre de ce travail, les trajets optiques seront généralement inférieurs à $500 \mu\text{m}$. En considérant que les phénomènes d'absorption et de réabsorption suivent une loi de type Beer Lambert, il est nécessaire de connaître les coefficients d'absorption de chaque espèce sur les bandes spectrales choisies pour ainsi estimer l'atténuation du signal de fluorescence sur chacune des bandes spectrales ($\epsilon_{Kr}(\lambda = 600 \text{ nm}) = 3,37 * 10^5 \text{ L/mol/m}$ et $\epsilon_{Rh560}(\lambda = 500 \text{ nm}) = 8,8 * 10^6 \text{ L/mol/m}$). La Figure 3.12 représente l'évolution du signal de fluorescence en fonction du chemin optique l_2 pour les deux bandes spectrales. Comme attendu, le signal de fluorescence sur la bande spectrale 2 est très peu dépendant du chemin optique avec une atténuation de 0,01% sur un chemin optique l_2 de 1 mm. Le signal provenant de la bande spectrale 1 est très atténué sur le chemin optique l_2 puisque le signal diminue de 3% sur 1 mm. Ainsi, dans le cas de gouttes de $500 \mu\text{m}$, la réabsorption conduit à une erreur de 1,5% sur le rapport de fluorescence, soit $0,5 \text{ }^\circ\text{C}$ sur la température. L'erreur réelle est en général bien moins élevée car un chemin optique de $500 \mu\text{m}$ correspond à un majorant. En fait, le rayon moyen des gouttes qui vont être rencontrées sera de l'ordre de $200 \mu\text{m}$, conduisant à une erreur de $0,2 \text{ }^\circ\text{C}$ sur la température.

3.2.6 Montage optique de la chaîne LIF2c2d

Nous décrirons ici l'ensemble des composants de la chaîne de mesure utilisée pour la méthode de LIF à deux couleurs et deux colorants. Deux types de méthode peuvent être mise en œuvre : les méthodes ponctuelles (LIF) ou les bidimensionnelles avec excitation par un plan laser (PLIF). Cette seconde méthode nécessite l'utilisation de deux caméras (une par bande spectrale) afin de réaliser des mesures résolues dans l'espace [8]. Les mesures de température seront réalisées ici par une méthode ponctuelle. Celle-ci nécessite de déposer, dans une zone précise de l'écoulement, une énergie laser et de collecter le signal sur une zone limitée du domaine excité. Dans le cas de l'étude en cuve, le volume de mesure est formé par pincement du faisceaux laser (Nd-Yag doublée $\lambda = 532 \text{ nm}$) d'un diamètre de $1,8 \text{ mm}$ par une lentille de focale de 200 mm formant ainsi un beamwaist d'environ $100 \mu\text{m}$. Le signal de fluorescence est collecté par une sonde de collection composée de deux lentilles achromatiques, dont la distance focale f_1 de la lentille frontale est interchangeable (Figure 3.13). Ce doublet, connecté à une fibre optique multimode de diamètre $70 \mu\text{m}$, forme l'image du cœur de la fibre sur le volume d'excitation laser avec

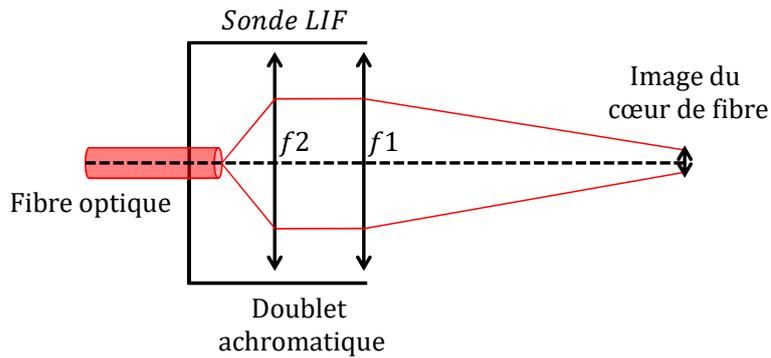


FIGURE 3.13 – Sonde de collection LIF

une profondeur de champs de plusieurs millimètre [12]. Le volume de collection du signal de fluorescence est donc la projection du cœur de fibre sur le volume d'excitation laser. Compte tenu de la profondeur de champ très élevée de la sonde de collection, le volume de collection peut être assimilé à un cylindre de diamètre égale au cœur de fibre ($70 \mu\text{m}$) multiplié par le grandissement $G = f_1 / f_2$ du doublet optique et de longueur égale au diamètre du volume d'excitation laser. Dans le cas d'une focale f_2 de 200 mm et pour une focal fixe $f_1 = 100$ mm et pour le volume d'excitation laser considéré, le volume de mesure a une profondeur de $100 \mu\text{m}$ et un diamètre de $140 \mu\text{m}$. Après guidage par la fibre optique, le signal de fluorescence passe à travers un filtre interférentiel de type Notch (coupe bande de largeur 10 nm, OD6) centré sur la longueur d'onde laser (532 nm) permettant de supprimer la composante du signal liée à l'excitation laser. Le signal de fluorescence est ensuite divisé sur les deux bandes spectrales au moyen de jeux de filtres dichroïques et interférentielles. Le signal de fluorescence est détecté au moyen de deux photomultiplicateurs (PM). L'utilisation de PM permet la détection et la conversion des photons en

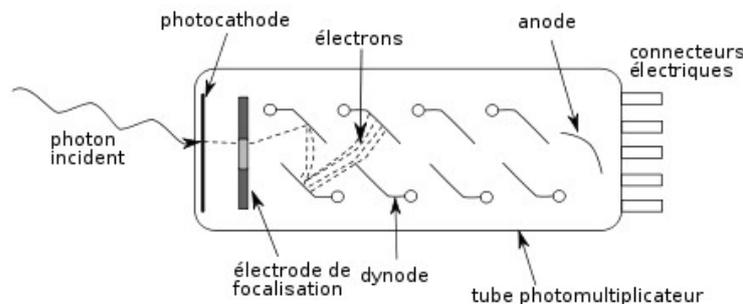


FIGURE 3.14 – Principe de fonctionnement d'un photomultiplicateur.

courant électrique avec une résolution temporelle pouvant atteindre plusieurs kHz. Le choix s'est porté sur des PM de type Hamamatsu (modèle H10721-210). Lorsque qu'un flux de photons atteint la surface photosensible d'un PM (la photocatode) des électrons (photo-électrons) sont extraits par effet photoélectrique et accélérés par un champ électrique. Ceux-ci atteignent la surface de plusieurs dynodes, chacune d'entre elle émettant plusieurs électrons avec un facteur de multiplication dépendant de la valeur du champ électrique appliqué. Cette cascade électronique est en général composé de 10 dynodes et permet donc d'atteindre des gains pouvant atteindre 10^6 (Figure 3.14). Le courant résultant, collecté à l'anode, est ensuite converti en tension et amplifié à l'aide d'un amplificateur transimpédance puis conditionné afin d'être échantillonné par une carte d'acquisition (ADlink ®9812, échantillonnage simultanée sur 4 voies à 20 MHz et numérisation

sur 12 bits). Le schéma de la chaîne LIF est présenté sur la Figure 3.15. L'utilisation d'une troisième bande spectrale de détection sera justifiée par la suite.

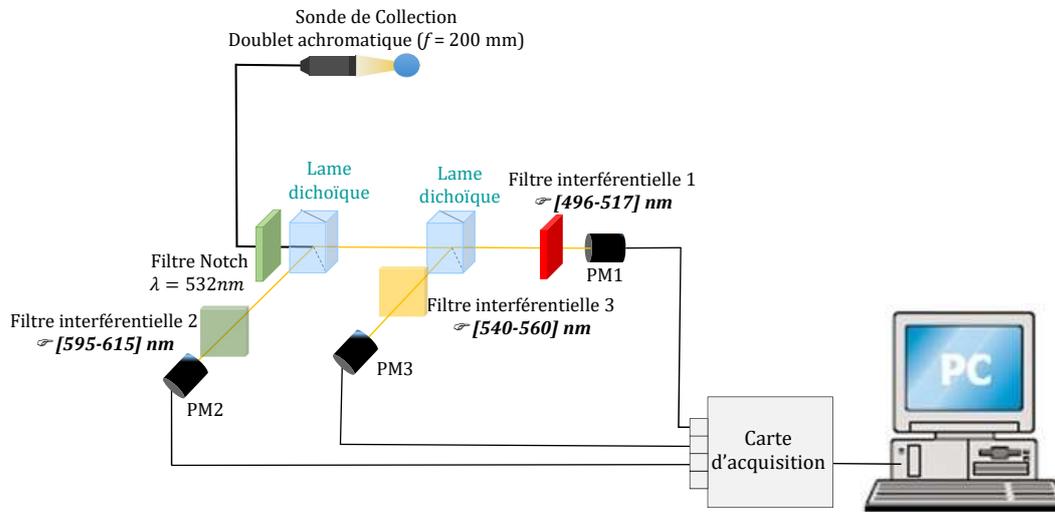


FIGURE 3.15 – Schéma de la chaîne de détection de la fluorescence sur trois bandes spectrales distinctes LIF3c2d.

3.3 Calibration en température

La sensibilité en température $s_1 - s_2$ du mélange Kr/Rh560 apparaissant dans l'équation 3.16 est obtenue par une calibration en température réalisée dans des conditions contrôlées. Notons que l'objectif est ici de calibrer la technique pour des températures inférieures à 0 °C. L'eau ayant une température de solidification de 0 °C, des conditions de surfusion seront délicates à maintenir pour une calibration. La calibration est d'abord réalisée en cuve avec le dispositif décrit à la Figure 3.7, disposée sur une table optique permettant de limiter au maximum les vibrations externes susceptibles de déclencher une solidification brutale de l'eau en état de surfusion. La calibration en température débute à partir de la température ambiante et se termine jusqu'à la solidification du liquide. La température du fluide est mesurée à l'aide d'un thermocouple de type K plongé dans la cuve. Afin de limiter au maximum les gradients thermiques à l'intérieur de la cuve et éviter des mouvements advectifs dus aux gradients de masse volumique, la température est abaissée progressivement par pas de $0,5$ °C. Ainsi, dans ces conditions, une température minimale de l'eau de -7 °C a été atteinte. La Figure 3.16 présente la calibration en température, c'est-à-dire l'évolution du $\ln(R_{12}/R_{12,0})$ en fonction de la température. Le rapport de référence $R_{12,0}$ étant pris à $T_0 = 0$ °C. Les étoiles noires présentent les résultats de la calibration réalisée en cuve. Une décroissance linéaire du logarithme du rapport de fluorescence avec la température est observée comme prédit par l'équation 3.16. Sur cette gamme de température, la sensibilité en température ($s_1 - s_2$) est de $2,56$ %/°C. Afin de poursuivre la calibration pour des températures plus basses que -7 °C, la calibration est ensuite reproduite sur une goutte suspendue. En effet, la diminution de surface de contact entre le fluide et une paroi solide permet de repousser le degré de surfusion du fluide. Schremb et al. [23] ont ainsi obtenu des degrés de surfusion allant jusqu'à -18 °C dans ce type de configuration. Le dispositif expérimental est présenté sur la Figure 3.17 : il consiste en une enceinte cylindrique à doubles enveloppes de 185 mm de hauteur et 80 mm de diamètre intérieur à l'intérieur de laquelle circule un fluide caloporteur.

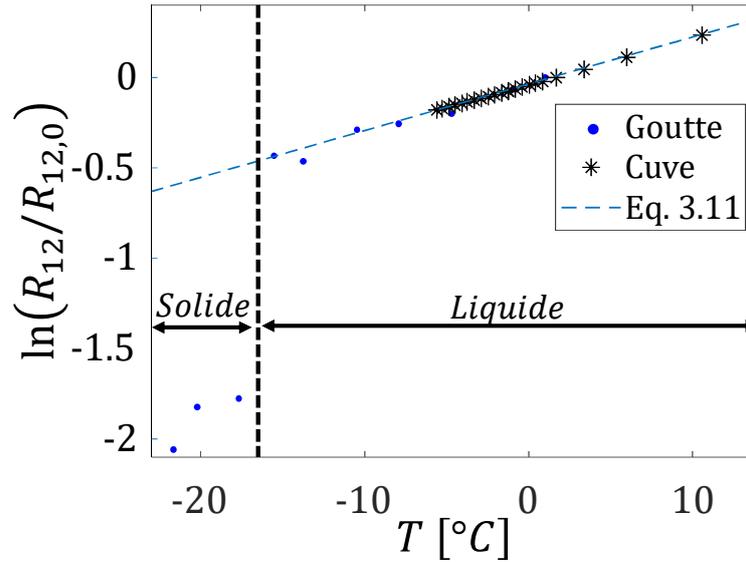


FIGURE 3.16 – Évolution de $\ln(R_{12}/R_{12,0})$ en fonction de la température. La calibration est réalisée en cuve et sur une goutte suspendue.

teur (Thermal HL80). La température du fluide caloporteur est contrôlée par un groupe froid (Julabo Presto) permettant d'obtenir une plage de température dans l'enceinte couvrant la gamme $[-40^{\circ}\text{C}; +70^{\circ}\text{C}]$. La goutte (environ 2 mm de diamètre) est suspendue à l'extrémité d'une aiguille de diamètre extérieur de 400 μm . Afin d'améliorer le rapport signal/bruit de la mesure, le faisceau laser est pincé au point de mesure à l'aide d'une lentille convergente de focale $f = 200$ mm, conduisant à un diamètre du faisceau de 100 μm au point de mesure. Un thermocouple, placé dans l'enceinte et au plus près de la goutte, permet une mesure de la température ambiante. Les mesures sont réalisées par paliers de température lorsque l'équilibre thermique entre l'air et la goutte est atteint. Pour s'assurer de l'équilibre thermique entre la goutte et l'air ambiant, les mesures simultanées du signal de fluorescence et de température sont réalisées après une durée de 5 min pour chaque palier de température. Notons qu'entre chaque palier de température, le faisceau laser est éteint afin d'éviter tout phénomène de photo-blanchissement des traceurs fluorescents. Pour chaque température, le signal de fluorescence est collecté pendant une durée maximale de 1 s. Sont ajoutée sur la Figure 3.16 la calibration en température obtenue sur une goutte suspendue. Deux tendances peuvent être clairement observées : une partie linéaire où la pente correspond à $(s_1 - s_2)$ et donne une sensibilité de l'ordre de 2,6 %/°C et une rupture autour de -17°C correspondant à la solidification de la goutte, confirmée visuellement par la diffusion du faisceau laser due à l'apparition de glace au sein de la goutte. Bien qu'étendue jusqu'à -17°C , il n'a cependant pas été possible de prolonger cette calibration pour des degrés de surfusion plus importants. Toutefois, la sensibilité en température $(s_1 - s_2)$ ne dépendant théoriquement pas de la température [6], il devrait donc être possible d'extrapoler cette calibration afin de l'utiliser pour réaliser des mesures de température inférieures à -17°C . La rupture observée sur le rapport de fluorescence, correspondant au passage de la goutte de l'état liquide à l'état solide, sera également exploitée pour la caractérisation de la fraction solidifiée et fera l'objet des développements suivants.

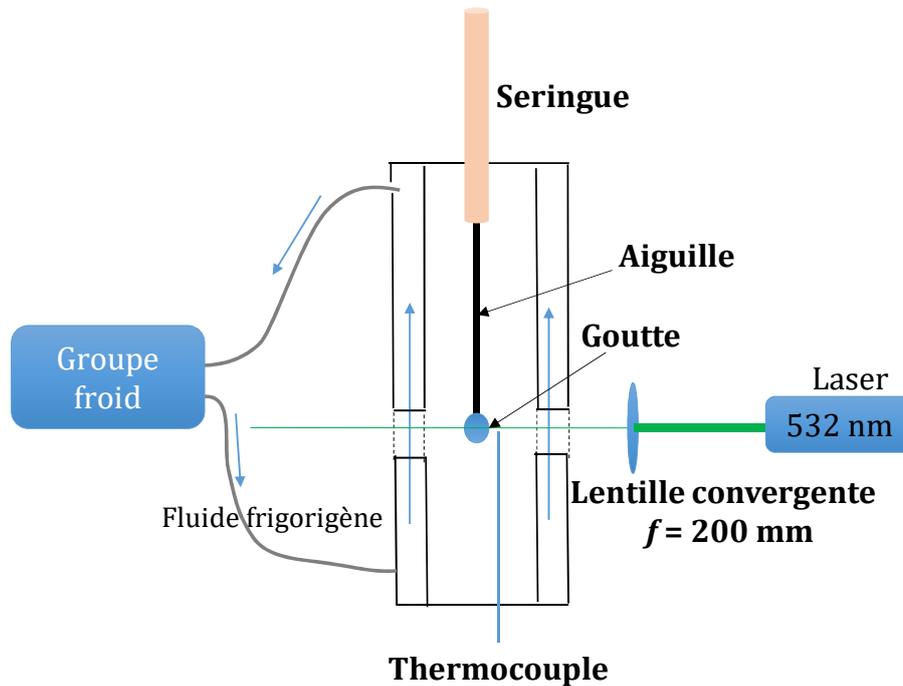


FIGURE 3.17 – Dispositif de calibration en température réalisé à l'aide d'une goutte suspendue dans une atmosphère contrôlée et sous-refroidie.

3.4 Étude du signal LIF en milieu diphasique (liquide/glace)

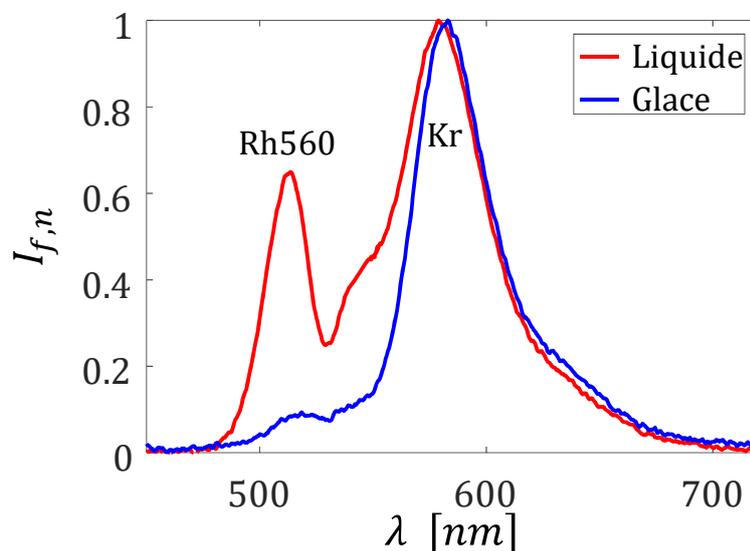


FIGURE 3.18 – Spectres de fluorescence du mélange rhodamine560 / kition red en phase liquide et solide (glace) normalisés par le maximum d'émission du mélange

Afin de comprendre la variation du rapport de fluorescence R_{12} observée à la Figure 3.16 avec le changement de phase de la goutte, des spectres de fluorescence du mélange en phase solide ont été réalisés. La Figure 3.18 présente des spectres de fluorescence du mélange, normalisés par rapport au maximum d'émission en phase liquide ainsi qu'en phase solide obtenus dans la cuve (Figure 3.7). Plusieurs remarques peuvent être établies :

1. L'intensité de fluorescence en phase solide est très inférieure à celle observée en phase liquide (d'un rapport environ 30). Cette décroissance de l'intensité peut être

attribuée à deux phénomènes : i- une partie de l'intensité laser est diffusée à l'interface glace/cuve diminuant ainsi l'excitation laser au point de mesure. ii- Le phénomène de quenching en phase solide est plus important, diminuant ainsi le signal de fluorescence. Ceci a été constaté sur des mesures de durée de vie de la fluorescence dans le cas de l'utilisation de la rhodamine B dissous dans l'eau [19].

2. Un léger décalage du spectre de fluorescence en phase solide vers le rouge semble exister.
3. L'intensité de fluorescence provenant de la rhodamine 560 semble diminuer d'un facteur plus important que celui du kiton red (diminution d'un facteur 6).

L'étude séparée des spectres en phase liquide et solide confirme le fait que l'intensité de fluorescence de la rhodamine 560 décroît de manière plus importante avec le changement de phase, par rapport au cas du kiton red. Nous allons donc montrer comment exploiter cette différence de comportement pour la caractérisation du changement de phase. Cette différence semble particulièrement marquée aux alentours de 550 nm. Ainsi, afin d'exploiter cette particularité de comportement du signal de fluorescence au voisinage de 550 nm lors du changement de phase, une troisième bande spectrale de détection a été ajoutée à la chaîne de mesure LIF2c2d (Figure 3.15) :

— **Bande spectrale 3** : [540 nm ; 560 nm]

Ainsi, en combinant avec la bande 1, un second rapport de fluorescence R_{31} sensible au changement de phase est introduit. La calibration en température menée avec la goutte suspendue est répétée en mesurant simultanément les deux rapports de fluorescence R_{12} et R_{31} . La Figure 3.19 représente ainsi l'évolution des deux rapports de fluorescence. Il est intéressant de noter que le rapport R_{31} est très peu sensible à la température ($s_3 - s_1 \approx 0$). Néanmoins, lors du changement de phase de la goutte vers -17°C , ce rapport augmente brutalement. L'idée est d'exploiter ce saut pour déterminer l'état de l'eau, à savoir si celle-ci est sous forme liquide ou solide. Nous allons ainsi tenter de modéliser l'évolution du

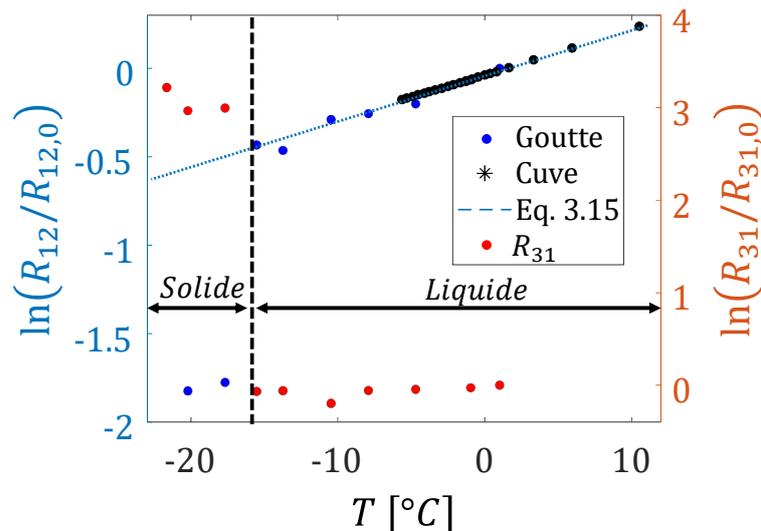


FIGURE 3.19 – Évolution des logarithmes des rapport de fluorescence, $\ln(R_{12}/R_{12,0})$ et $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la température. La calibration est réalisée en cuve et sur une goutte suspendue.

signal de fluorescence dans une goutte, modèle comportant une couronne périphérique congelée et un cœur liquide au centre (Figure 3.20). Le front de solidification évolue alors

de la surface externe vers l'intérieur de la goutte. Ainsi, le chemin optique δ correspondant au diamètre de la goutte se décompose en deux parties δ_S et δ_L correspondant respectivement au chemin optique dans la partie solide et liquide. Le signal de fluorescence sur la première bande spectrale 1 peut s'écrire en fonction des concentration de rhodamine 560 en phase liquide (c_{Rh560}) et en phase solide ($c_{Rh560,S}$) :

$$I_{f,1} = K_1 I_0 V_c c_{Rh560} e^{(s_1 T)} e^{-\delta_S (\epsilon_{1,S} c_{Rh560,S})} \quad (3.21)$$

avec $\epsilon_{1,S}$ le coefficient d'absorption molaire sur la bande 1 en phase solide (glace). De la même manière sur la bande spectrale 3 on a :

$$I_{f,3} = K_3 I_0 V_c c_{Kr} e^{(s_3 T)} e^{-\delta_S (\epsilon_{3,S} c_{Kr,S})} \quad (3.22)$$

avec $\epsilon_{3,S}$ le coefficient d'absorption molaire sur la bande 3 en phase solide (glace) et $c_{Kr,S}$ la concentration en kiton red dans la phase solide. Le rapport de fluorescence R_{31} devient dans ce cas :

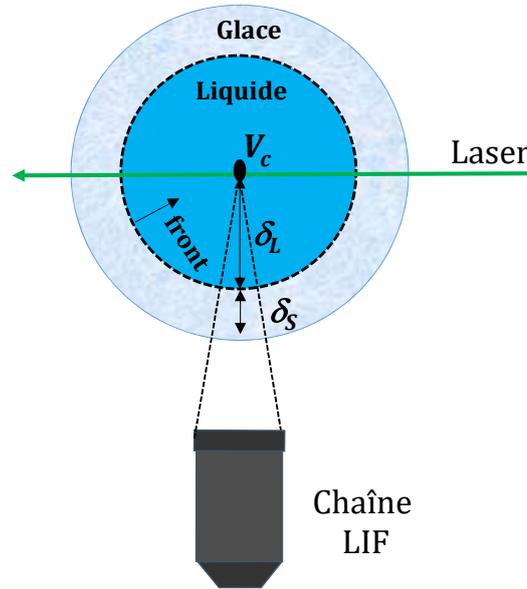


FIGURE 3.20 – schéma d'une goutte se solidifiant par la surface externe.

$$R_{31} = \frac{K_{opt,3} c_{Kr}}{K_{opt,1} c_{Rh560}} e^{(s_3 - s_1)T} e^{-\delta_S \chi_{1D,S} (\epsilon_{3,S} c_{Kr,S} - \epsilon_{1,S} c_{Rh560,S})} \quad (3.23)$$

avec $\chi_{1D,S}$ la fraction de glace le long du chemin optique δ définie par :

$$\chi_{1D,S} = \frac{\delta_S}{\delta} \quad (3.24)$$

Au vue de l'importante solubilité des traceurs choisis, nous négligerons tout phénomène de thermophorèse et de diffusophorèse [19]. Comme montré dans les Figures 3.16 et 3.11, la dépendance en température du rapport R_{31} peut être négligée. Par conséquent, en prenant une référence $R_{31,0}$ lorsque le fluide est purement liquide (c'est-à-dire $\chi_{1D,S} = 0$), on obtient le rapport normalisé suivant :

$$\frac{R_{31}}{R_{31,0}} = e^{-\delta \chi_{1D,S} (\epsilon_{3,S} c_{Kr,S} - \epsilon_{1,S} c_{Rh560,S})} \quad (3.25)$$

Dans des conditions expérimentales rigoureusement identiques et conduisant à la formation d'un arrangement cristallin constant, l'expression $(\epsilon_{3,S} C_{Kr,S} - \epsilon_{1,S} C_{Rh560,S})$ peut alors être considérée comme une constante notée ι . L'équation 3.26 devient alors :

$$\ln\left(\frac{R_{31}}{R_{31,0}}\right) = -\iota \delta \chi_{1D,S} \quad (3.26)$$

Par conséquent, le logarithme du second rapport de fluorescence normalisé est une fonction linéaire de la fraction de glace. En outre, on peut ajouter que ce rapport de fluorescence est dépendant du jeu de concentration choisi et des coefficients d'absorption de la glace sur les deux bandes spectrales, qui peuvent être liés à la structure cristalline et à la topologie de la glace formée.

3.5 Calibration du rapport R_{31} en fonction de la fraction de glace dans un mélange d'eau liquide/glace

L'objectif est de relier la variation du signal de fluorescence avec l'évolution de la fraction de glace d'un volume d'eau en cours de solidification. Comme vu au Chapitre 2.2, la seule technique actuelle permettant d'accéder directement, et de manière absolue à la fraction de glace, est la résonance magnétique nucléaire (RMN). Malheureusement, réaliser des mesures par RMN et par LIF simultanément est une tâche qui semble difficilement réalisable. Une sonde de mesure RMN est de faible taille limitant l'intégration d'une chaîne LIF et surtout la RMN interdit la présence de toutes pièces métalliques dans la sonde. Par conséquent, une stratégie en deux temps a été entreprise. Tout d'abord, l'idée a été d'exploiter la variation d'un volume d'eau lors de son changement de phase et de corrélérer cette variation avec l'évolution du signal de fluorescence. Puis, ces mêmes expériences ont été reproduites en RMN où cette fois-ci la variation du volume d'eau a été corrélée au signal RMN. La RMN permettant en plus de mesurer la fraction de glace, il est alors possible de relier la variation du signal de fluorescence avec la fraction de glace. L'utilisation d'une goutte en suspension pour cette calibration n'est pas réalisable pour au moins deux raisons : i- en raison de la nature aléatoire du début de la solidification, il est difficile de la capturer et donc de synchroniser à la fois l'acquisition de la LIF et la mesure de la variation du volume, ii- le faible volume de la goutte implique nécessairement de petites variations de volume qui sont difficiles à quantifier avec précision. C'est pourquoi il a été décidé de procéder avec un volume d'eau de plusieurs millilitres contenu dans une cuvette.

3.5.1 Étude de la variation de volume de l'eau en cours de solidification par LIF

L'objectif de cette section est de présenter la mesure simultanée de la variation d'un volume d'eau dans une cuvette jaugée et le rapport de fluorescence R_{31} . Un dispositif spécifique présenté à la Figure 3.21 a été mis en place. Il se compose d'une cuve de section carrée de 40 mm de hauteur et 10 mm de côté intérieur. Un tube gradué (en mL) est fixé sur le sommet de la cuve pour mesurer la variation de volume de l'eau. Cette cuve est placée dans l'enceinte réfrigérée précédente (Figure 3.17) pour assurer son refroidissement. Un volume V_0 d'eau est placé dans la cuve à la température T_0 connue. Un volume $V_{0,h}$ d'huile (Thermal HL80), non-miscible avec l'eau et ayant une température de solidification de -80 °C, est ajouté au-dessus de la surface libre de l'eau jusqu'au milieu du tube

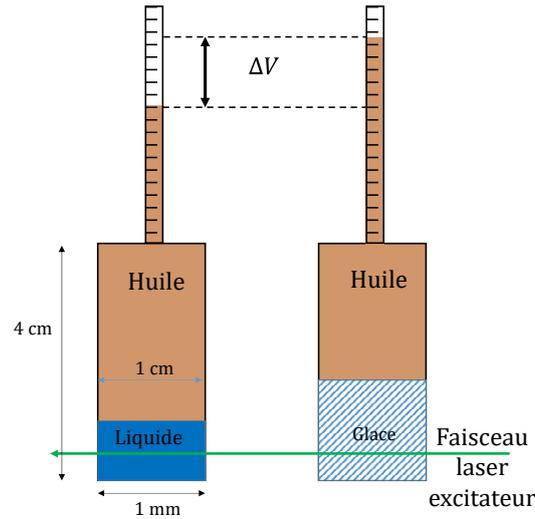


FIGURE 3.21 – cuvette jaugée utilisée pour la calibration du signal de fluorescence en fonction de la variation de volume d’eau, lors de la phase de solidification.

graduée. La section du tube gradué est choisie suffisamment petite par rapport à celle de la cuve afin d’augmenter la sensibilité de la mesure à la variation du volume d’eau. L’erreur maximale de lecture est de l’ordre de 10^{-2} mL. Par définition, la variation du volume d’eau $\Delta V(t)$ est la différence entre le volume d’eau total V à un instant t et du volume d’eau initiale V_0

$$\Delta V(T) = V(T) - V_0 \quad (3.27)$$

Avec $V = V_S + V_L$, les volumes d’eau solide et liquide respectivement. La variation du volume total d’eau ΔV est déduite à partir de la mesure de la variation globale de volume ΔV_m due à la fois à la variation de volume d’eau ΔV et d’huile ΔV_h :

$$\Delta V_m(T) = \Delta V(T) + \Delta V_h(T) \quad (3.28)$$

Le processus de solidification planaire, d’une durée de plusieurs minutes, permet de mesurer correctement à la fois le rapport de fluorescence et la variation de volume globale. Ainsi, la quantité ΔV_m est mesurée directement avec une caméra (Pulnix® JAI CCD Camera; 2048 × 2048 pixels et maximum de 40 images/seconde) imageant le tube gradué et synchronisée avec l’acquisition du rapport de fluorescence R_{31} . La variation du volume de l’huile ($\Delta V_h(T)$) est calculée comme suit :

$$\Delta V_h(T) = E_x(T - T_0)V_{0,h}(T_0) \quad (3.29)$$

avec E_x le coefficient de dilatation thermique de l’huile ($E_x = 9,7 * 10^{-7} K^{-1}$ pour l’huile utilisée). La cuve est orientée dans l’enceinte froide de manière à ce que le faisceau laser traverse l’eau et que la collection du signal de fluorescence soit perpendiculaire à l’excitation laser (Figure 3.22). La mesure du signal de fluorescence est effectuée à l’aide du dispositif optique précédent (Figure 3.15). Afin d’obtenir une glace transparente et repousser au maximum le degré de surfusion, l’eau est préalablement chauffée jusque 70 °C pour évacuer la majorité de l’air dissout dans l’eau. La procédure expérimentale est la suivante :

1. La température de l’air dans l’enceinte est amenée à 0 °C.
2. La température de l’air est diminuée par palier successif de 2 °C. Une durée d’environ 20 minutes entre chaque palier est prise pour assurer l’équilibre thermique

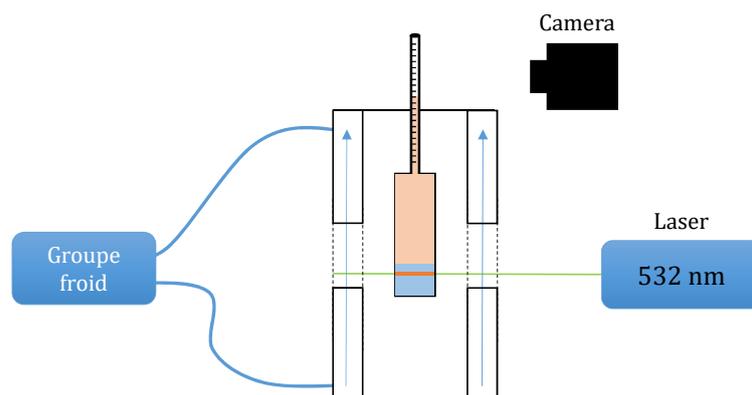


FIGURE 3.22 – Dispositif expérimental de caractérisation du signal de fluorescence en fonction de l'évolution du volume de glace.

entre l'eau et l'air avant la mesure de la variation du volume global ΔV_m et du rapport de fluorescence R_{31} .

3. Le début de la solidification peut être détecté visuellement : la caméra mesure le volume d'huile en même temps que le signal de fluorescence est enregistré. En raison du faible mouvement de l'interface eau/huile, la caméra fonctionne à 1 image/s. Elle est arrêtée lorsque toute variation de volume a cessé, signifiant que tout le liquide est gelé.
4. Afin d'éviter tout chauffage du dispositif par dépôt d'énergie laser, le faisceau laser est uniquement appliqué le temps de l'acquisition du signal de fluorescence, c'est-à-dire pendant 1 s.

Un exemple de variation de volume durant la solidification de l'eau est présenté à la Figure 3.23. Les différentes étapes sont :

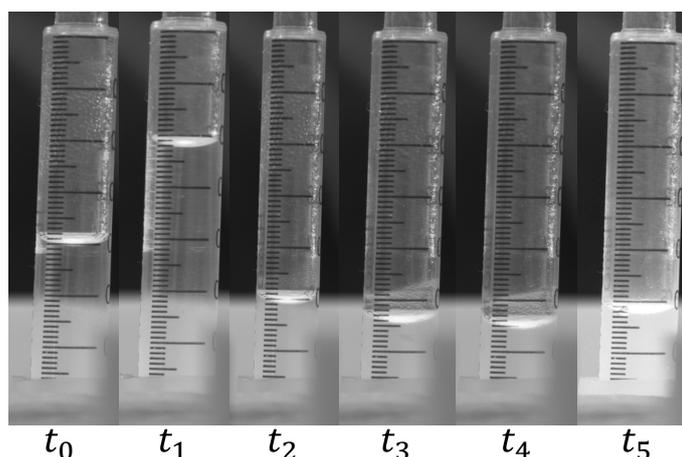


FIGURE 3.23 – Exemple d'expérience réalisées avec le montage Figure 3.21.

1. $t = t_0$: volume initial à température ambiante.
2. $t = t_1$: variation de volume lorsque l'eau est portée à une température de 70 °C (dilatation du liquide).
3. $t = t_2$: instant où l'eau est à une température de 0 °C.
4. $t = t_3$: instant où l'eau est surfondue.
5. $t = t_4$: instant où la solidification dans le fluide débute. Une augmentation du volume de l'eau est observée, représentative de l'apparition de glace dans le milieu.

6. $t = t_5$: fin de la solidification, le volume n'évolue plus au cours du temps.

Afin de montrer l'indépendance du signal de fluorescence au volume initial d'eau, les expériences ont été réalisées pour trois volumes d'eau initiaux différents (0,5 mL, 1,5 mL et 2 mL). L'évolution du rapport de fluorescence normalisé $R_{31,0}$ est analysée en fonction de la variation de volume de l'eau (Figure 3.24). Comme prévu, le rapport de fluorescence R_{31} évolue progressivement avec le volume d'eau, montrant ainsi sa sensibilité à l'évolution de la fraction de glace contenue dans le milieu. La valeur seuil (rapport de fluorescence en fin de solidification) du rapport de fluorescence est sensiblement le même quel que soit le volume d'eau, ce qui indique que le rapport de fluorescence est bien uniquement sensible à la présence de glace dans l'eau (100% de glace pour la valeur seuil). Pour s'assurer que la variation de R_{31} est indépendante du volume d'eau initial, l'évolution du volume d'eau a été normalisée par le volume d'eau correspondant à celui du volume de la glace obtenu en fin d'expérience. La variation de volume normalisée est donc :

$$\Delta V_n = \frac{\Delta V}{\Delta V_{S,f}} \quad (3.30)$$

où $\Delta V_{S,f}$ correspond à la variation de volume d'eau obtenue en fin d'expérience, c'est à dire lorsque toute l'eau est gelée. Ainsi $\Delta V_n = 0$ correspondra à une fraction de glace nulle, alors que $\Delta V_n = 1$ correspondra à une fraction de glace de 100%. La Figure 3.24 présente l'évolution de $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la variation de volume d'eau brut (A) ou normalisé (B), pour différents volumes d'eau initiaux. Le rapport de fluorescence est normalisé par sa valeur obtenue à 0 °C lorsque l'eau est complètement liquide. En reproduisant les expériences plusieurs fois, quel que soit le volume initial V_0 , une assez bonne reproductibilité de l'évolution du rapport de fluorescence peut être observée. Pour $\Delta V_n > 0,15$, une tendance linéaire est observée et correspond très certainement à la solidification planaire du fluide. L'équation 3.26 peut être utilisée pour interpréter ce résultat. Dans le cas de la cuve, le volume de glace peut s'écrire comme $V_S = \delta_S A$ où A est la surface de l'interface liquide/glace, supposée parfaitement plane. Introduisons donc maintenant la fraction volumique de glace χ_S :

$$\chi_S = \frac{V_S}{V} \quad (3.31)$$

avec V la somme des volumes de glace (V_S) et de liquide (V_L). L'équation 3.26 devient :

$$\ln\left(\frac{R_{31}}{R_{31,0}}\right) = -\iota \chi_S V \quad (3.32)$$

La tendance linéaire observée confirme la modélisation adoptée (équation 3.32). Cependant, l'accès à une estimation de la fraction de glace n'est pas directe puisque le paramètre ι dépend de la nature de la glace et de sa structure cristalline. En dépit d'une apparente dispersion (Figure 3.24 B), les trois courbes sont presque superposées pour les trois volumes d'eau étudiés. La dispersion est sans doute due à la diffusion de Mie du faisceau laser incident par les cristaux de glace qui tend à affaiblir le signal de fluorescence. Cette dispersion est estimée à $\pm 0,2$ pour $\ln(R_{31}/R_{31,0})$.

3.5.1.1 Caractérisation de la fraction de glace par spectrométrie Raman

La spectroscopie Raman est une méthode pertinente pour l'étude du changement de phase de l'eau. L'objectif ici est d'utiliser une seconde technique de mesure pour confirmer l'ensemble des observations réalisées avec la technique LIF. Dans le cas de la solidification de l'eau, il a été démontré que la spectroscopie Raman pouvait être utilisée pour

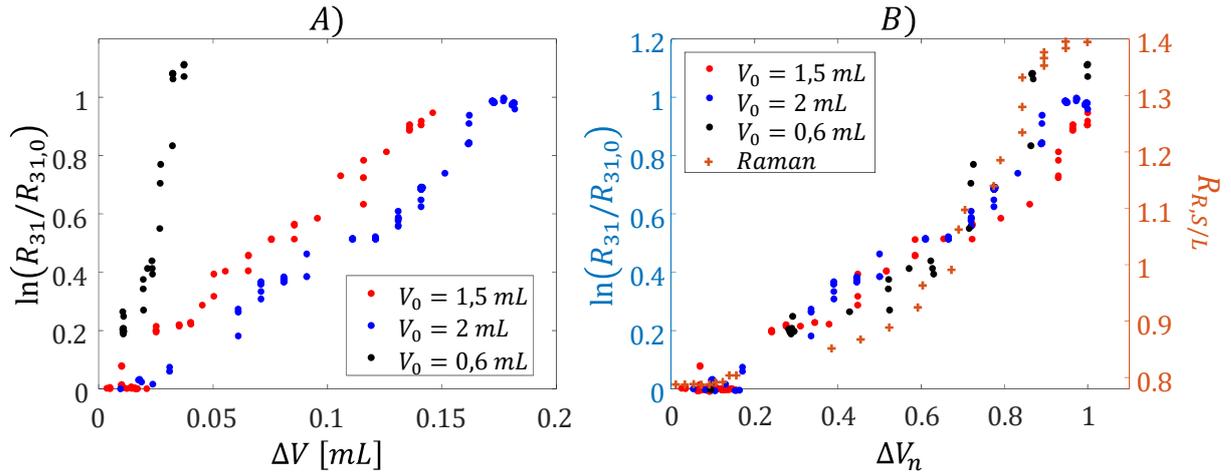


FIGURE 3.24 – Évolution du logarithme du rapport de fluorescence $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ A) en fonction de la variation de volume d'eau, B) en fonction de la variation de volume d'eau normalisé, défini selon l'équation 3.30, ceci pour différents volume d'eau initiaux. Sur B) est ajoutée l'évolution du signal Raman en fonction de la variation de volume d'eau normalisé.

détecter la transition de phase [25] [24] en analysant la bande d'étirement OH correspondant à $[2800 \text{ cm}^{-1}; 3800 \text{ cm}^{-1}]$ suite à une excitation laser à 532 nm. Cette bande spectrale correspond à la plus intense du spectre Raman de l'eau et c'est aussi cette bande spectrale qui est sensible au changement de phase de l'eau. Pour ces deux raisons (intensité et sensibilité), c'est cette bande spectrale du spectre Raman qui sera étudiée. La Figure 3.25 présente le dispositif expérimental en rétrodiffusion utilisé pour la spectroscopie Raman. Le spectromètre utilisé (Spectromètre QE Pro ocean Optics) dispose d'une résolution de 0,1 nm. Le même protocole que celui utilisé pour la LIF a été mis en œuvre pour la spec-

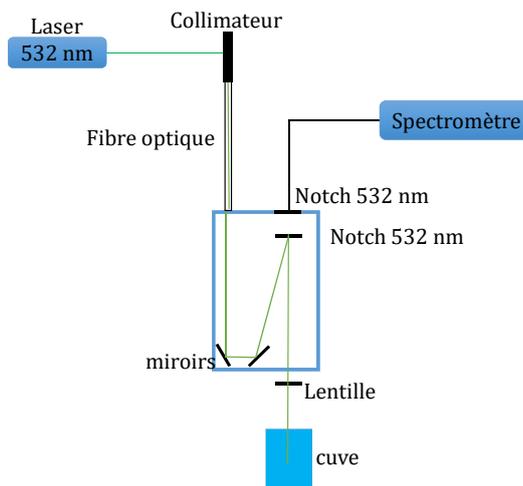


FIGURE 3.25 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la spectrométrie Raman de l'eau.

trométrie Raman en ce qui concerne la réfrigération du volume d'eau contenu dans une cuve (Figure 3.21) et l'acquisition du signal. Des spectres Raman typiques sont présentés sur la Figure 3.26 : ces spectres présentent l'intensité diffusée et normalisées par le maximum d'émission en fonction du décalage spectral Raman (exprimé en cm^{-1}). Le spectre Raman présente à la fois un décalage vers les faibles décalages Raman et une déformation lorsque l'eau se solidifie. Le signal Raman de chacun des spectres est estimé en déterminant l'intégrale de la raie spectrale I_S (bande symétrique $[3096 \text{ cm}^{-1}; 3220 \text{ cm}^{-1}]$) pour

la phase solide et I_L pour la phase liquide (bande asymétrique [3300 cm^{-1} ; 3420 cm^{-1}]). Ainsi, la présence de glace dans une phase liquide peut être détecté par une mesure ratio-métrique $R_{R,S/L} = I_S/I_L$. La présence de pics parasites sur les spectres provient sans doute de la cuve en plastique. En effet, lorsque qu'une cuve en verre est utilisée, ces pics ne sont plus visibles. Afin d'obtenir des spectres Raman exploitables, du fait de la faible section efficace Raman, il est nécessaire d'intégrer le signal Raman sur une période de 10 s, ce qui limite l'utilisation de cette technique à l'étude de phénomènes lents. L'évolution du rapport $R_{R,S/L}$ en fonction du volume d'eau normalisé ΔV_n est rajouté sur la Figure 3.24 (en double échelle). Le même phénomène physique (i.e. changement de phase de l'eau) conduit à une évolution monotone très similaire des rapports Raman et de fluorescence alors que les deux techniques sont basées sur des principes physique différents.

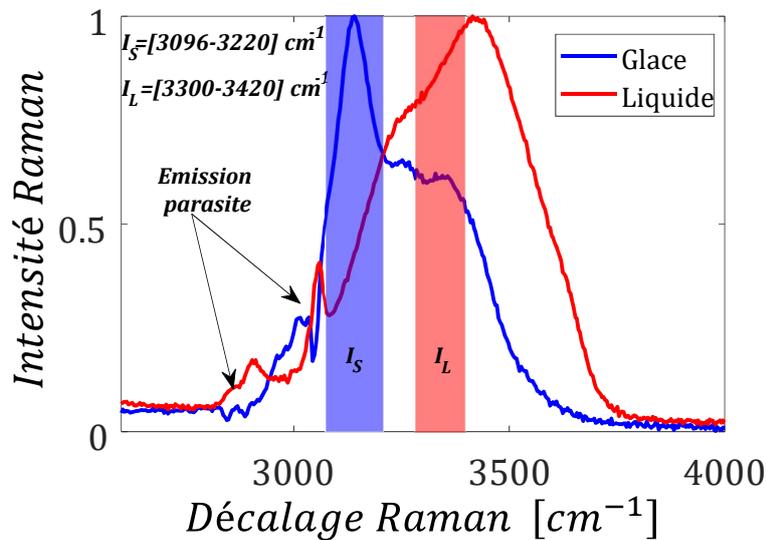


FIGURE 3.26 – Spectres Raman (normalisés par leurs maximums) en phase liquide et en phase solide.

3.5.2 Mesures de la fraction de glace par Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire (IRMN)

La quantification de la fraction glace dans une phase mixte liquide/glace par fluorescence induite par laser nécessite une calibration absolue du rapport de fluorescence en fonction de la fraction de glace. Ainsi, des expériences similaires à celles réalisées par LIF ont été effectuées par IRMN. La méthode se décompose en trois étapes :

1. Réaliser une mesure absolue de fraction volumique de glace par IRMN.
2. Relier la variation de fraction volumique de glace à celle du volume d'eau.
3. Utiliser la mesure absolue par IRMN pour calibrer la technique de fluorescence. Plus exactement, la calibration consiste à relier le signal $R_{31}/R_{31,0}$ à l'évolution de la fraction de glace.

3.5.2.1 Principe de l'Imagerie par Résonance Magnétique Nucléaire

Certains noyaux atomiques comme le proton 1H possèdent un spin nucléaire noté S , qui induit un moment magnétique nucléaire M . Pour un échantillon contenant N pro-

tons placés dans un champ magnétique statique d'intensité B_0 , l'aimantation macroscopique A_M est donnée par la loi de Curie :

$$M = N A_M 2 \pi = \zeta B_0 2 \pi \quad (3.33)$$

avec ζ le rapport gyromagnétique du proton ($\zeta = 4.1066 * 10^7 \text{ rad.s}^{-1} . K^{-1}$). L'intensité de l'aimantation de l'échantillon est proportionnelle au nombre de protons et permet donc d'obtenir des informations sur leur nombre. Le champ magnétique induit par les protons est en règle général très inférieur à celui généré par l'aimant. Il est donc impossible de mesurer M suivant l'axe \vec{B}_0 . Afin de basculer l'aimantation, un second champ radiofréquence \vec{B}_1 , perpendiculaire à \vec{B}_0 (selon l'axe x) est appliqué, ce qui a pour effet de basculer l'aimantation selon y. Ce type de sollicitation est appelé pulse $(\frac{\pi}{2})_x$. On peut montrer que, suite à cette excitation, l'aimantation selon y se relaxe au cours du temps. Cet amortissement se décompose en deux temps : t_1 et t_2 les temps de relaxation longitudinaux et transversaux. L'aimantation transverse M_t selon l'axe x après le pulse $(\frac{\pi}{2})_x$ est :

$$M_t = M_0 e^{-i \omega_0 t} e^{-t/t_2} \quad (3.34)$$

Cette aimantation est donc fortement dépendante des temps de relaxation. La séquence de base d'écho de spin a été utilisée pour notre étude. Elle vise à s'affranchir de la contri-

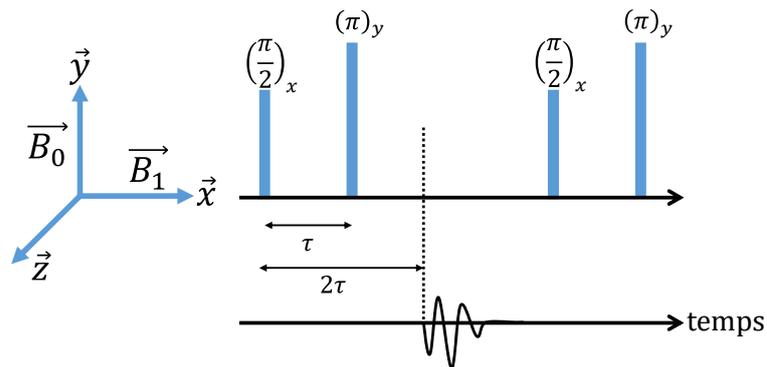


FIGURE 3.27 – Séquence d'écho de spin.

bution inhomogène du champs magnétique en refocalisant l'aimantation magnétique. Cette séquence consiste en l'application d'un pulse $(\frac{\pi}{2})_x$ à $t = 0$ et d'un pulse $(\pi)_y$ à $t = \tau$. La séquence est schématisée sur la Figure 3.27. Après avoir basculé l'aimantation dans le plan transversal par une impulsion $(\frac{\pi}{2})_x$, les spins soumis au champ local inhomogène ont acquis, au temps τ , une phase additionnelle. En appliquant à $t = \tau$ une impulsion $(\pi)_y$, les phases des spins s'orientent en sens inverse et une refocalisation est obtenue à l'instant $t = 2\tau$. Un écho de spin permet ainsi de compenser le déphasage dû aux inhomogénéités du champ. Une séquence pour laquelle on acquiert cet écho est appelée séquence d'écho de spin. L'amplitude du signal à $t = \tau$ est réduit d'un facteur $e^{2\tau/t_2}$. On est donc ainsi sensible au temps t_2 . Il est ainsi possible, en variant le temps τ , de remonter à une mesure du temps t_2 . Afin de suivre l'évolution de la solidification dans la cuve, la séquence utilisée consiste en une séquence pulsée RARE (Rapid Acquisition with Relaxation Enhancement [11]). Cette séquence est une amélioration de la séquence d'écho de spin pour l'obtention d'image RMN. Le désavantage de cette séquence est que l'on devient sensible aux inhomogénéités du champ magnétique. Ce défaut peut être corrigé par une prise de référence en début d'expérience. Notons que le temps de relaxation t_2 dans la glace est de l'ordre de $20 \mu\text{s}$, ce qui signifie que l'utilisation d'une séquence avec

$\tau \gg 20 \mu\text{s}$ permet de s'affranchir du signal provenant de la phase solide. Ainsi, le signal acquis à $t = 2\tau$ ne représentera plus que le signal des protons de l'eau liquide. Le principe d'imagerie consiste simplement ensuite à appliquer un gradient de champs magnétique pour encoder spatialement les images.

3.5.2.2 Dispositif de mesure par IRMN

Les mesures ont été effectuées avec un spectromètre à résonance magnétique nucléaire (RMN) à large bande de 600 MHz équipé d'un système d'imagerie (Figure 3.28). Ce spectromètre est doté d'une ouverture large de 14 cm de diamètre. La même cuve que utilisé pour les mesure par LIF contenant de l'eau et de l'huile (Figure 3.21) a été disposée dans la zone de mesure de l'aimant. L'eau dans la cuve peut être refroidie par un flux d'air froid s'écoulant autour de la cuve et contrôlé en température jusqu'à $-40 \text{ }^\circ\text{C}$ au minimum. Afin d'assurer l'isolation thermique la cuve est entourée par une pièce en Téflon. Une mesure de température de l'huile thermique par cateur de température à fibre optique est réalisée, ceci afin d'éviter la présence métallique dans la zone de mesure. La Figure 3.28 présente le schéma de l'expérience réalisée dans l'ouverture du spectromètre (zone de l'aimant). Des images sont obtenues à l'aide d'une séquence RARE [11] [10] avec

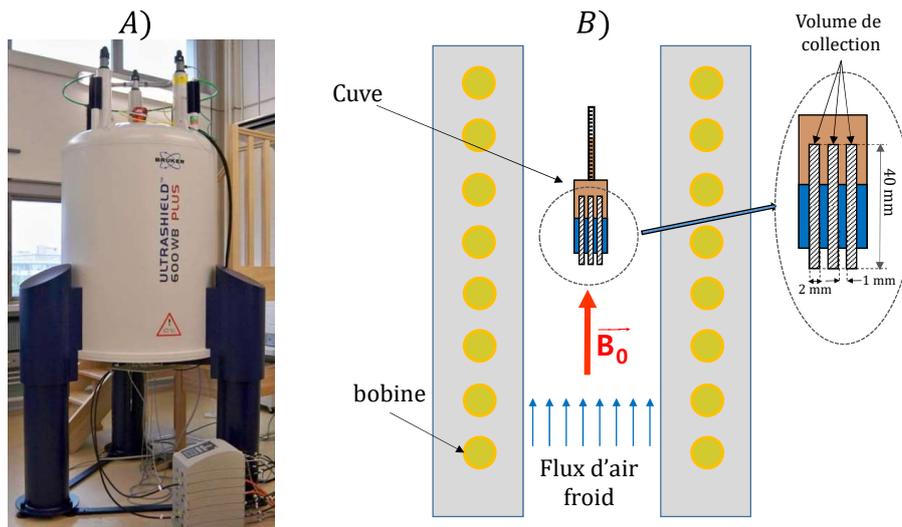


FIGURE 3.28 – A) Spectromètre RMN 600 MHz wide bore. B) Dispositif expérimental pour la mesure de fraction de glace par IRMN inséré dans l'aimant et repérage des trois volumes de collections.

un temps d'écho de 3 ms et 32 échos consécutifs. Le champ de vision des images est de $40 \times 40 \text{ mm}^2$ avec une matrice de $256 \times 256 \text{ voxels}^2$. Un volume d'eau initial de $V_0 = 2,17 \text{ mL}$ est inséré dans la cuve et complété par un volume d'huile avant d'être centré verticalement à l'intérieur de l'aimant RMN (Figure 3.28). Les mesures sont effectuées sur trois tranches verticales d'épaisseur $b = 2 \text{ mm}$ correspondant à trois volumes de collection de $40 \times 40 \times 2 \text{ mm}^3$. La Figure 3.28 présente la localisation des volumes de collection. Un premier volume de sonde est centré dans la cuvette et les deux autres sont espacés de 1 mm. Par conséquent, environ 60 % du volume d'eau V_0 est scanné, ce qui est préférable car le signal RMN à proximité des bords de l'image est généralement bruité. Les volumes de collections sont ainsi décalés vers le bas pour assurer une visualisation complète du volume d'eau. Notons que l'interface eau/huile est aisément visualisable sur les images RMN et permet donc de mesurer efficacement la variation de volume d'eau. L'huile peut être aisément discriminée de l'eau en RMN car les fréquences de résonance des protons ^1H ne

sont pas exactement identiques. La Figure 3.29 représente des spectres RMN du volume sondé à différentes températures d'écoulement d'air. En examinant le pic fréquentiel de

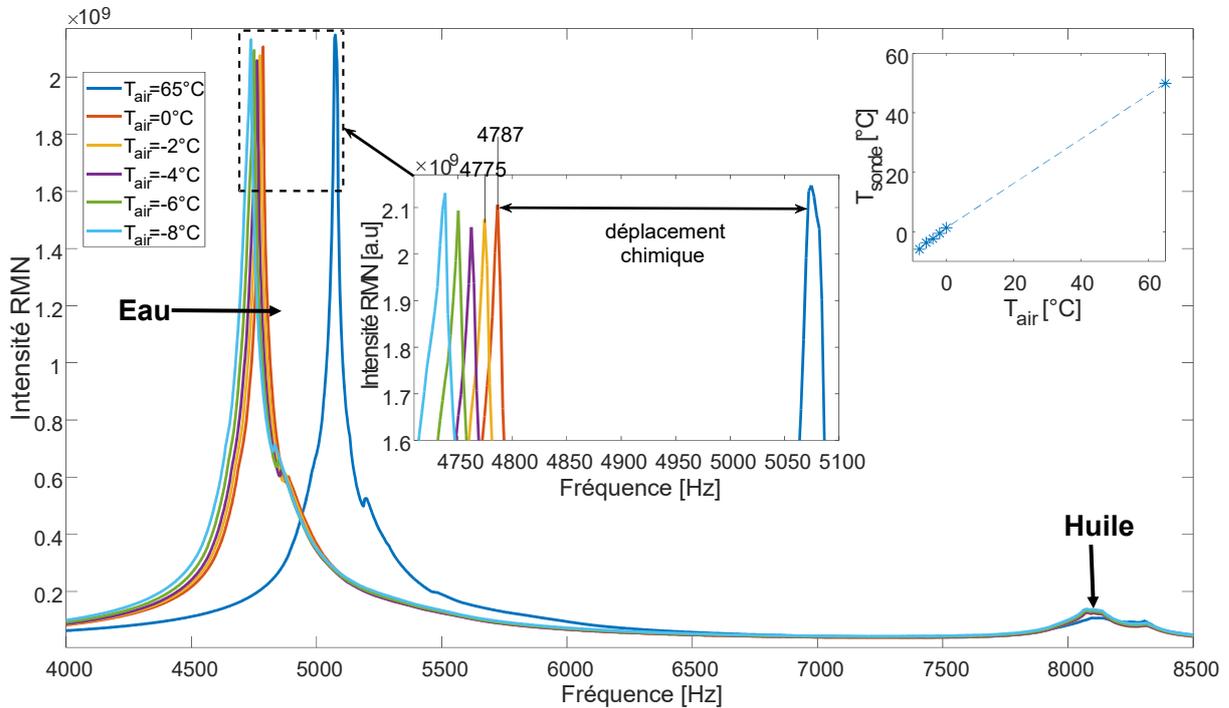


FIGURE 3.29 – Évolution du signal RMN à différentes températures. La courbe de droite insérée représente l'évolution de la température de l'huile en fonction de celle de l'air.

l'eau (pic de gauche), il est possible de constater que la fréquence de résonance est dépendante de la température. En effet, avec le système utilisé, la sensibilité spectrale de l'eau à la température est de l'ordre de 6 Hz/°C. Sur la Figure 3.29 sont ajoutés les mesures réalisées à l'aide de la sonde thermique immergée dans l'huile. Lors des expériences, nous avons pu vérifier que le spectre se stabilise en fréquence lorsque la température, donnée par la sonde, est stable et qu'aucune différence de température entre l'air et le fluide existe. Ce constat nous permet d'utiliser le déplacement chimique (déplacement de la fréquence de résonance) en fréquence de l'eau afin de contrôler que l'ensemble du fluide est bien à l'équilibre thermique avec le flux d'air. Cette sensibilité en température nous permet de contrôler le déclenchement de la séquence de mesure rapide lorsque la solidification commence. En effet, une augmentation subite de la température, due à la solidification de l'eau, constitue le signal d'alarme pour déclencher les séquences d'imagerie. Néanmoins, l'observation de la phase de recalescence de l'eau est impossible car les mouvements du fluide durant cette phase conduisent à des distorsions d'images difficilement corrigées. Le déplacement chimique entre l'huile et l'eau (de l'ordre de 3000 Hz) crée un artefact de déplacement entre les zones remplies d'eau et celles remplies d'huile. Les images, pour une température T donnée, sont normalisées $I_{n,IRM}$ pour supprimer l'effet de la non-homogénéité des gradients magnétiques. La normalisation est réalisée en prenant le cas de l'eau liquide ($I_{0,IRM}$) à l'état initial (V_0 à T_0) :

$$I_{n,IRM} = \frac{I_{IRM}(T) - I_{0,IRM}}{I_{0,IRM}} \quad (3.35)$$

Des exemples d'images IRMN normalisées $I_{n,IRM}$ et obtenues lors d'un refroidissement sont représentées à la Figure 3.30. Notons que l'image obtenue correspond à la moyenne

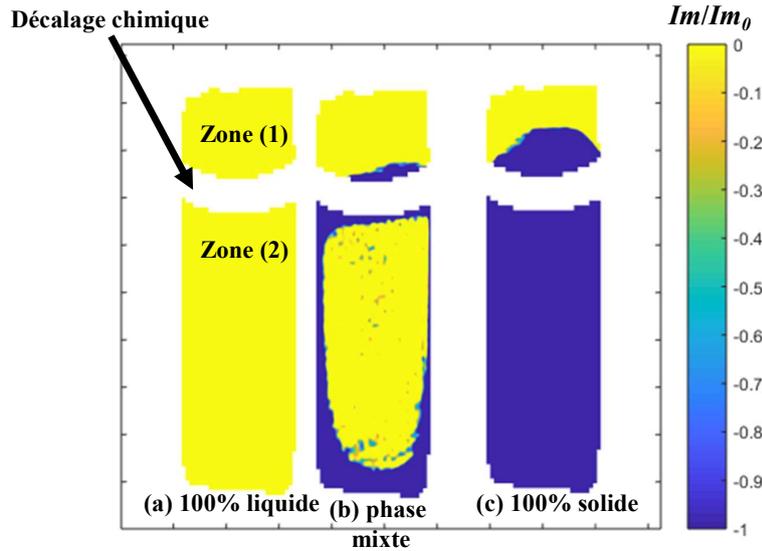


FIGURE 3.30 – Images IRMN de la solidification de l'eau dans la cuvette de mesure : la zone 1 correspond à l'huile de silicone et la zone 2 à l'eau. La colorbar représente l'évolution de la fraction de glace dans le milieu, : -1 (bleu) pour 100% glace et 0 (jaune) pour 100% liquide.

du signal obtenue sur les trois volumes de collection. Sur la Figure 3.30, la couleur jaune correspond à la phase liquide de l'eau en zone (2) et de celle de l'huile dans la zone (1). La couleur bleue indique, quant à elle, la présence d'une phase solide (glace) dans les zones (1) et (2). Pour chaque étape, après avoir atteint l'équilibre thermique (c'est-à-dire après environ 15 minutes), une séquence RARE est effectuée. Lorsque la température diminue, il est possible d'observer un décalage progressif de la fréquence du signal 1H . Cette information nous permet de détecter le changement de phase et ainsi déclencher la séquence RARE avec un temps de répétition de 1 s et pendant un temps d'acquisition de 15 min pour capturer la solidification complète de l'eau. À partir des images RMN, il est à la fois possible de déterminer la fraction de glace χ_S ainsi que la variation du volume d'eau ΔV . La fraction de glace est calculée comme suit :

$$\chi_S = \frac{V_{S,(1+2)}}{V_{S,(1+2)} + V_{L,(2)}} \quad (3.36)$$

où $V_{S,(1+2)}$ et $V_{L,(2)}$ désignent respectivement le volume de solide (zone bleue) contenu dans les deux zones (1) et (2) et le volume de l'eau liquide contenue uniquement dans la zone (2) (zone jaune). Notons, que la surface de l'interface (zone blanche) est invariante et n'induit donc pas d'erreur pour les calculs de volume d'eau. La cuve étant rigide, le déplacement de l'eau ne peut que se faire vers la zone (1) (Figure 3.21). Ainsi, les volumes correspondent au produit des surfaces dans les zones (1) et (2) par l'épaisseur b . Comme b reste inchangé pendant le refroidissement, la fraction de glace est simplement déduite de la variation des surfaces des zones bleues et jaunes. Ensuite, le volume total de variation de l'eau est obtenu, de manière similaire, en évaluant, dans chaque tranche, la croissance de la phase solide (bleue) dans les deux zones par rapport à la surface de la phase liquide (jaune) initiale dans la zone 2 (image (a) de la Figure 3.30) :

$$\Delta V = (A_{S,(1+2)} + A_{L,(2)} - A_{0,(2)}) b \quad (3.37)$$

avec $A_{S,(1+2)}$ la surface de glace (bleue) dans les zone (1) et (2), $A_{L,(2)}$ la surface de liquide (jaune) dans la zone (2) et $A_{0,(2)}$ la surface initiale de liquide dans la zone (2). Ainsi, la

variation du volume d'eau normalisé est :

$$\Delta V_n = \frac{A_{S,(1+2)} + A_{L,(2)} - A_{0,(2)}}{A_S} \quad (3.38)$$

avec A_S la surface de la glace (bleue) dans les deux zones ((1) et (2)) lorsque l'ensemble de l'eau est solide (image (c) Figure 3.30). La Figure 3.31 présente l'évolution de la fraction de glace (χ_S) reconstruite par IRMN en fonction de la variation du volume d'eau normalisé (ΔV_n). Comme attendu, cette évolution décrit une tendance linéaire sur la majeure partie de la courbe, à l'exception des faibles et fortes variations de volume.

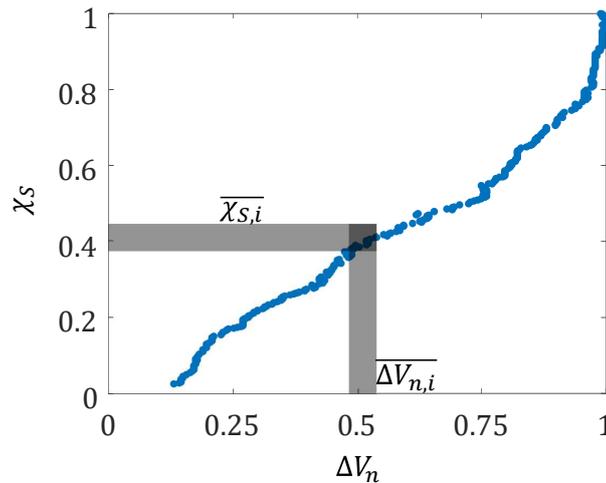


FIGURE 3.31 – Évolution de la fraction de glace mesurée en IRMN en fonction de la variation du volume d'eau normalisée.

3.5.3 Calibration du signal de fluorescence à l'aide des mesures IRMN

À partir des données de la Figures 3.24 reliant R_{31} à ΔV_n et de la Figure 3.31 reliant χ_S à ΔV_n , il est maintenant possible de relier le rapport de fluorescence R_{31} à la fraction de glace. Cette procédure de calibration se déroule en deux étapes :

1. En raison de la dispersion des rapports de fluorescence, plusieurs classes de rapports sont définies à partir des données issues de la Figure 3.24. Pour chaque classe, une valeur de la moyenne arithmétique des rapports est calculée et une variation $\Delta V_{n,i}$ peut être déduite.
2. La valeur de $\Delta V_{n,i}$ précédente est ensuite reportée à la Figure 3.31 afin d'obtenir la valeur moyenne correspondante de la fraction de glace $\chi_{S,i}$

Ainsi, l'évolution de $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la fraction de glace reconstruite par IRMN est présentée sur la Figure 3.32. Pour chaque point, les écarts type constatés et calculés sur les points pris en considération dans la moyenne sont rajoutés. En dépit de la dispersion des résultats, une variation assimilable à un comportement linéaire de $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la fraction de glace peut être notée. Néanmoins, cette calibration de la fraction de glace ne peut pas s'étendre aux gouttes surfondues, principalement en raison du coefficient ι qui peut varier en fonction du type de glace formée. Ainsi la calibration peut dépendre du jeu de concentration en traceurs fluorescents choisis et de la structure cristalline de la glace. En faisant l'hypothèse que $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ évolue linéairement entre la valeur liquide et la valeur seuil lorsque le milieu est totalement solidifié, une

estimation de la fraction de glace par la méthode LIF est possible. Ainsi, la donnée expérimentale des valeurs du rapport de fluorescence pour les phases liquide et solide permet une estimation de la fraction de glace avec une erreur de $\pm 15\%$, au vue de la dispersion des mesures.

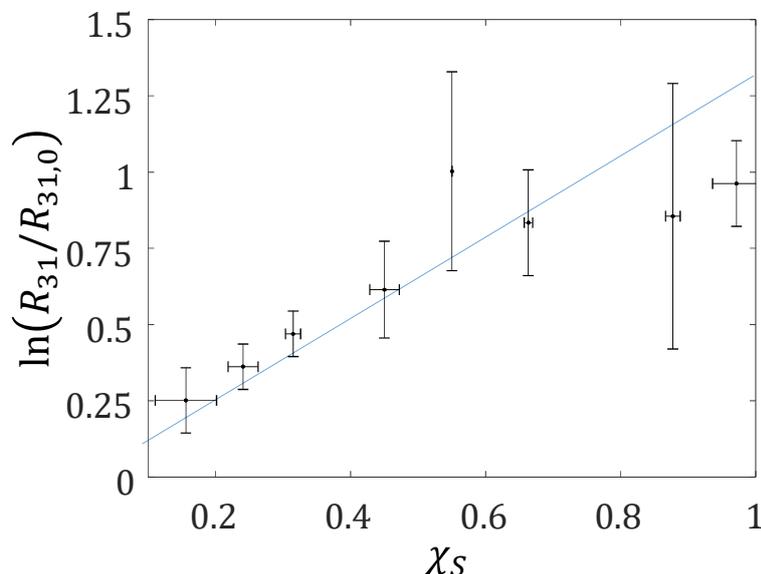


FIGURE 3.32 – Évolution du logarithme du rapport de fluorescence $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ en fonction de la fraction de glace reconstruite grâce à la technique d'IRMN

3.6 Influence des traceurs sur les propriétés physiques de l'eau en surfusion

La section précédente a démontré que la nouvelle technique de LIF3c2d est capable de mesurer la température d'eau surfondue mais aussi de détecter l'état du fluide (i.e. liquide/solide), voir de fournir une estimation de la fraction de glace. Néanmoins, cette technique de mesure nécessite l'ajout de traceurs fluorescents en solution dans l'eau. Ainsi, l'objectif de cette section est de déterminer l'influence de l'ajout des traceurs fluorescents dans l'eau sur les propriétés physiques de l'eau surfondu : propriétés physiques (viscosité, masse volumique et tension superficielle) et température de solidification.

3.6.1 Influence sur les propriétés physiques de l'eau

Les propriétés physiques de l'eau, telle que la tension superficielle, la masse volumique ou encore la viscosité, interviennent dans le calcul de nombres adimensionnels caractéristiques comme les nombres de Reynold et de Weber. De plus, ces nombres jouent un rôle important dans l'étude d'impact de goutte un substrat. Ces propriétés seront évaluées pour l'eau pur et pour l'eauensemencée avec le mélange Rh560/KR aux concentrations indiquées dans la section 3.2.5. Ces paramètres sont mesurés respectivement par la méthode de l'anneau de Wilhelmy (Tensiomètre K9), un tube densimétrique et un rhéomètre (instruments TA, modèle DHR-3). La mesure de chaque paramètre est répétée quatre fois pour chaque solution (eau ouensemencée) afin de disposer d'une erreur de mesure. Les résultats correspondants sont présentés dans le Tableau 3.1. Il apparaît que

la masse volumique et la viscosité de l'eau ne sont pas affectés par la présence des colorants. Au contraire, la tension superficielle dans le cas de l'eau ensemencée en colorants présente une diminution significative d'environ 25 % par rapport à l'eau pure [1].

	Tension superficielle [$mN.m^{-1}$]	Masse volumique [$kg.m^{-3}$]	Viscosité [$Pa.s$]
Eau pure	$(7,19 \pm 0,17) \times 10^1$	999.9 ± 1	$(9.23 \pm 0.05) \times 10^{-4}$
Eau+Rh560/Kr	$(5,34 \pm 0,17) \times 10^1$	999.9 ± 1	$(9.18 \pm 0.01) \times 10^{-4}$

TABLEAU 3.1 – Propriétés physiques de l'eau et pour l'eau ensemencée en colorants fluorescents (mélange de Rh560 et de Kr) et comparaisons aux propriétés de l'eau pure.

3.6.2 Influence des traceurs sur la température de solidification de l'eau en situation de surfusion

L'objectif est de vérifier si l'ajout de colorants fluorescents peut affecter ou non le degré de surfusion d'une goutte comparativement à une goutte d'eau pure. L'idée est donc de comparer la probabilité qu'une goutte d'eau pure et une goutte ensemencée se solidifie dans les mêmes conditions de refroidissement. Pour y parvenir, un dispositif a été spécialement conçu (Figure 3.33). Il consiste à refroidir un bloc parallélépipédique

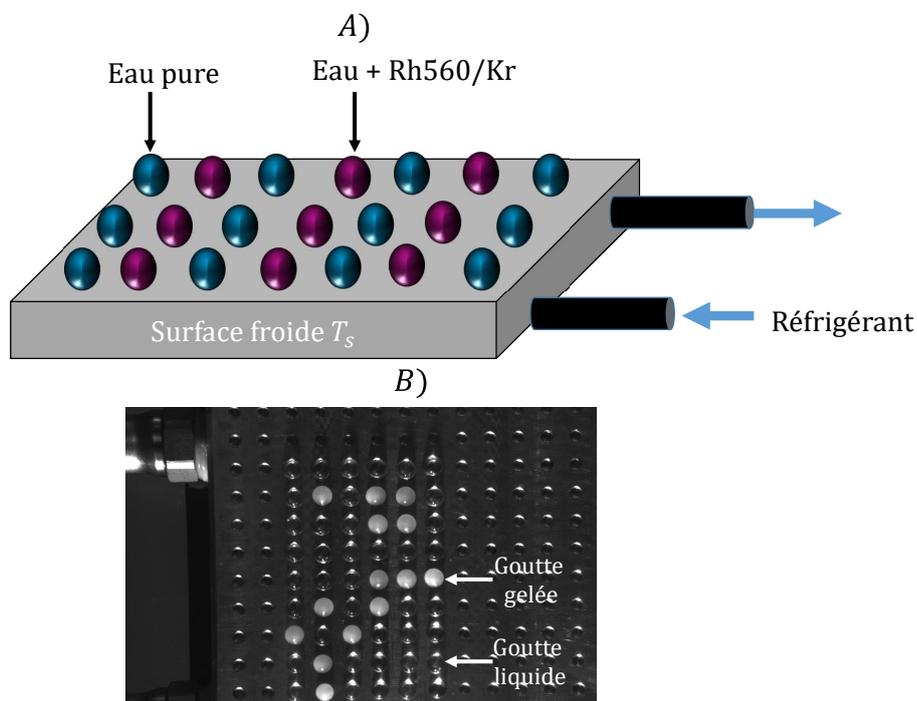


FIGURE 3.33 – Dispositif expérimental utilisé pour étudier l'effet des colorants fluorescents sur le degré de surfusion des gouttes A) et image typique en vue de dessus de la plaque refroidie avec des gouttes gelées B).

en duraluminium (65 mm de côté et 15 mm d'épaisseur) à l'intérieur duquel circule le fluide caloporteur et dont la température est contrôlée à l'aide du groupe froid. Grâce à la bonne conductivité thermique du duraluminium, la dispersion des températures locales à la surface de la plaque n'excèdent pas $0,5\text{ }^{\circ}\text{C}$, ce qui permet de considérer, par la suite

une température de surface homogène. Sur la surface supérieure de la plaque, 125 cavités sont usinées afin de déposer correctement et alternativement une rangée de gouttes d'eau pure et une rangée de gouttes ensemencées en traceurs fluorescents. Une pipette de 70 mL de volume total (Finnpipette) permet de déposer les gouttes avec un volume individuel de 10 μL . Les gouttes sont déposées avant le refroidissement de la surface, cette opération nécessitant une durée d'environ 3 minutes, il est vérifié que le changement de volume de la première goutte déposée, dû à l'évaporation, est négligeable. Pour cela, notons H la hauteur maximale de la goutte obtenue par ombroscopie déposée au cours du temps et H_0 sa hauteur maximale initiale. La Figure 3.34 représente l'évolution de la hauteur normalisée au cours du temps, H/H_0 : une diminution de l'ordre de 2% de H peut être observée. La surface mouillée n'évoluant quant à elle pas durant cet intervalle de temps, il est possible de faire l'hypothèse que la première et la dernière goutte déposée sont quasi-identiques. Afin d'éviter la formation de givre sur la surface, du fait

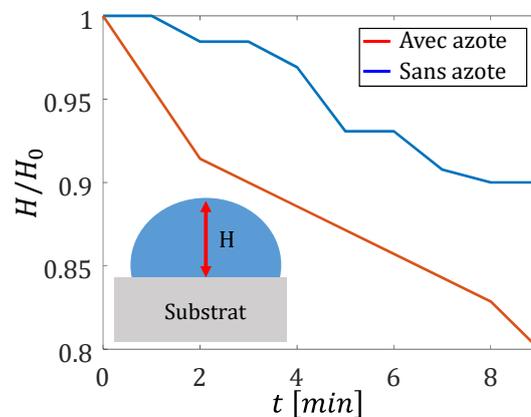


FIGURE 3.34 – Évolution de la hauteur maximale d'une goutte déposée sur une surface en fonction du temps pour le cas avec et sans balayages à l'azote.

de l'humidité de l'air ambiant, la plaque de duralumin est insérée dans une chambre ayant des parois transparentes. Un flux d'azote est ensuite appliqué afin de sécher l'atmosphère jusqu'à une humidité relative d'environ 20 %. Le balayage à l'azote est maintenu durant l'expérience (débit d'azote de 4 L/min). Comme observé sur la Figure 3.34, le balayage à l'azote induit un accroissement de l'évaporation des gouttes au cours du temps. Les gouttes sont donc déposées avant d'appliquer le flux d'azote. Le refroidissement de la surface est effectué en appliquant une vitesse de refroidissement de 2 °C par minute afin d'assurer l'équilibre thermique du système. La température de surface T_{surf} est obtenue en utilisant deux thermocouples soudés sur la surface à deux bords opposés. Toutes les gouttes sont visualisées par le dessus à l'aide d'une caméra JAI, avec une fréquence d'échantillonnage de 1 Hz et un capteur de 1920 \times 1080 pixels. L'enregistrement des images est synchronisé avec l'acquisition de la température de surface. Un éclairage, composé d'un panneau de LED et d'un écran diffusant, est également utilisé pour mieux visualiser les gouttes. L'expérience est terminée lorsque toutes les gouttes initialement liquide, notée N_0 , sont solidifiées. Le post-traitement des images consiste ainsi à identifier et à cumuler le nombre N_S des gouttes qui se solidifient au cours du temps, aussi bien pour celles constituées d'eau pure que celles ensemencées en colorants. La Figure 3.33 B) illustre, à titre d'exemple, une image instantanée prise à une température de surface inférieure à 0 °C. Une goutte solidifiée apparaît avec une couleur blanche, signature de la diffusion de l'éclairage par les cristaux de glace, alors que les gouttes liquides restent translucides. Le phénomène de solidification étant stochastique, il est nécessaire de

moyenner les résultats sur un grand nombre d'échantillons afin d'effectuer des comparaisons robustes entre elles. Ainsi, pour chaque cas (avec et sans traceurs) et pour chaque température, le rapport N_S/N_0 correspond à une moyenne prise sur 600 gouttes chacun. La Figure 3.35 présente l'évolution du rapport N_S/N_0 en fonction de la température de surface T_{surf} pour les gouttes composées d'eau pure et pour les gouttesensemencées en colorants fluorescents, pour plusieurs expériences. Que ce soit pour l'eau pure ou l'eauensemencée, il est possible de constater malgré, une dispersion des courbes, des comportements relativement similaires. Ainsi, il est raisonnable de comparer la moyenne des expériences pratiquées pour les deux cas (eau pure/eauensemencée). La Figure 3.36 pré-

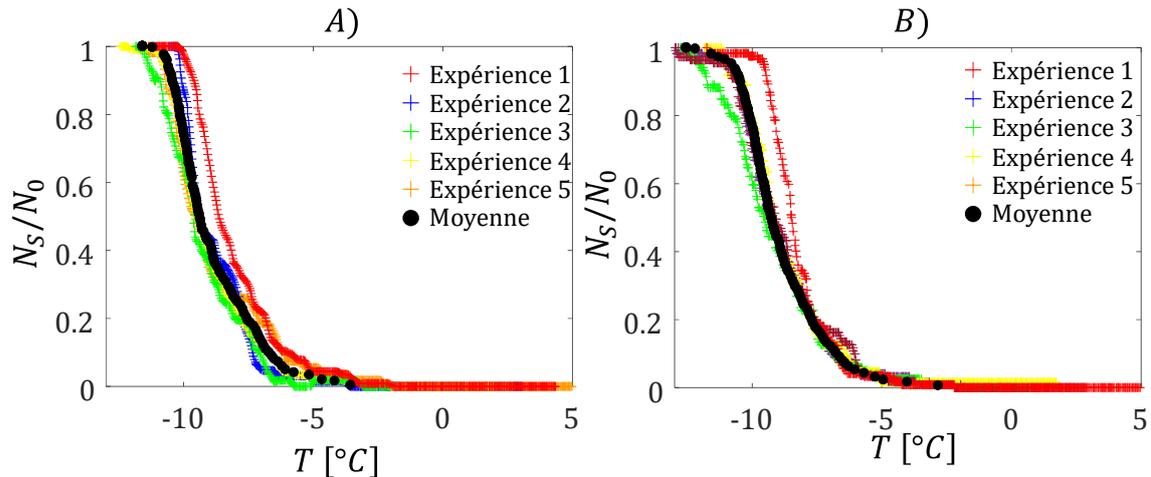


FIGURE 3.35 – Évolution de la proportion de goutte solide en fonction de la température de surface de la plaque pour des goutte d'eau pure A) et des gouttesensemencées par le mélange Rh560/Kr B), pour différentes expériences à des fins de reproductibilité.

sente l'évolution des rapport N_S/N_0 moyennés en fonction de la température de surface T_{surf} pour les gouttes composées d'eau pure et pour les gouttesensemencées. Les deux courbes, représentatives de la moyenne des expériences, semblent presque se superposer, ce qui tend à démontrer que les colorants fluorescent n'affectent pas la température de solidification de l'eau. Des expériences avec une concentration en kiton red cent fois plus importantes ont été réalisées et ajoutées sur la Figure 3.36. L'influence du traceur fluorescent reste encore très faible, même à forte concentration, et seul un effet très modéré peut être observé aux forts degrés de surfusion aux alentours de -12 °C.

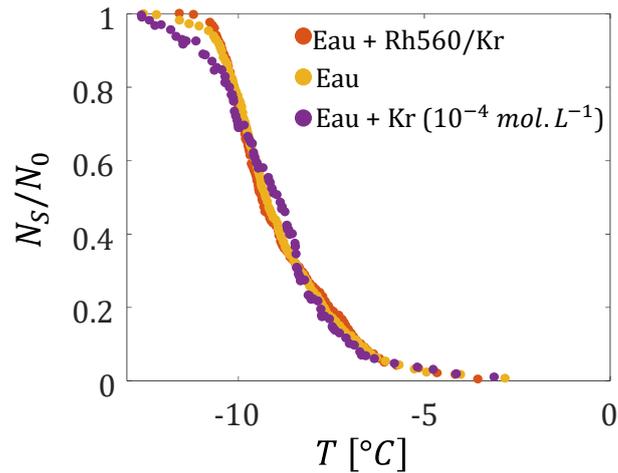


FIGURE 3.36 – Évolution de la proportion de goutte solide en fonction de la température de surface de la plaque froide dans le cas de l'eau pure, de l'eauensemencée avec des colorants fluorescents, ceci pour différentes concentrations.

3.7 Effet de la taille des gouttes sur le signal de fluorescence

Lors d'études précédentes, il a été montré que la taille des gouttes était également un paramètre susceptible d'influencer le signal de fluorescence émis par une goutte, conduisant à un biais dans la mesure de température des gouttes par LIF2c1d, [13]. Lorsque le cas d'un spray est considéré, caractérisé par une forte polydispersion en diamètre des gouttes, ce biais est par nature renforcé et le signal de fluorescence devient dépendant de la distribution statistique des tailles de gouttes en un point donné. Bien que l'interprétation physique de ce phénomène ne soit pas entièrement élucidée, une correction empirique avait été mise en place basé sur l'utilisation d'une troisième bande spectrale de détection. Néanmoins, l'influence de cet effet lié à la taille des gouttes n'a pas été évaluée avec une méthode à deux colorants et deux bandes spectrales (LIF3c2d). Les études présentés dans la suite de ce manuscrit seront réalisées sur des trains des gouttes monodispersées et sur un spray de goutte polydispersées en taille de goutte. L'évaluation de l'effet taille doit donc être réalisés dans le cas de la technique de LIF3c2d. Pour cela, le premier rapport de fluorescence R_{12} a été mesuré dans un spray similaire à celui utilisé dans [13]. Le dispositif d'injection consiste en un atomiseur assisté par air comprimé (Danfoss®) alimenté par un réservoir pressurisé. Une augmentation de la pression d'injection du liquide, jusqu'à environ 6,5 bars, entraîne une augmentation de la vitesse des gouttes et une diminution de leur diamètre moyen : de $D_{10} = 40 \mu\text{m}$ pour une pression de 1 bars à $D_{10} = 20 \mu\text{m}$ pour une pression de 5 bars. La caractérisation du diamètre moyen D_{10} des gouttes en fonction de la pression d'injection a été réalisée dans [13] et les données issues de ces travaux seront considérées par la suite.

Des mesures des rapports de fluorescence R_{12} et R_{31} ont été réalisées le long de l'axe du spray (i.e. direction de l'écoulement moyen), à partir de 10 mm de la sortie de l'injecteur pour différentes pressions d'injection variant de 2 à 6 bars (Figure 3.37) avec le mélange Rh560/Kr avec les concentrations présentées en section 3.2.5. Chaque acquisition (c'est-à-dire pour chacune des pressions d'injection testés) a été réalisée sur 10000 gouttes. Les résultats sont normalisés par la mesure à 3 bars. Les expériences issues de la littérature [13] ont été répétées avec la technique de LIF2c1d (1 colorant, 2 bandes spectrales de détection) et en utilisant comme colorant fluorescent du kiton red seul à une concentration de $5 \times 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$. Pour ces mesures, le rapport de fluorescence $R_{23,1D}$

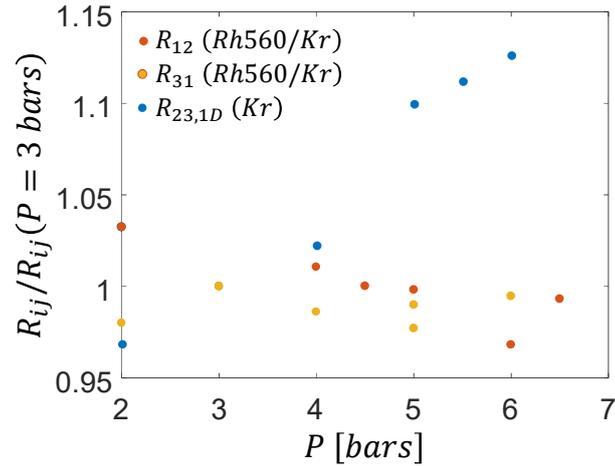


FIGURE 3.37 – Évolution des deux rapports de fluorescence normalisés R_{12} et R_{31} utilisés dans la technique de LIF3c2d en fonction de la pression d’injection du liquide et mesurés dans un spray. Comparaison avec le rapport de fluorescence R_{23} pour du kition red seul comme réalisé dans [13].

(équivalent au rapport R_{12} mentionné dans la littérature [13]) a été déterminé en utilisant les bandes spectrales suivantes : [540 nm ; 560 nm] et [595 nm ; 615 nm] correspondant aux bandes 3 et 2 respectivement de la technique LIF3c2d (Figure 3.11) et est noté $R_{23,1D}$. Les bandes spectrales utilisées pour le calcul des rapports R_{12} , R_{31} et $R_{23,1D}$ sont résumées dans le Tableau 3.2 :

	λ [nm]
<i>Bande spectrale 1</i>	[496 ; 517]
<i>Bande spectrale 2</i>	[595 ; 615]
<i>Bande spectrale 3</i>	[540 ; 560]

TABLEAU 3.2 – Bandes spectrales utilisées pour le calcul des rapports de fluorescence R_{12} , R_{31} et $R_{23,1D}$.

Les rapports de fluorescence mesurés dans le spray, en utilisant le mélange Rh560/Kr, sont très faiblement affectés par la variation du diamètre des gouttes, induit par la variation de la pression d’injection. En effet, on constate une variation maximale du rapport normalisé d’environ 3,5% lorsque la pression d’injection passe de 2 à 6 bars, ce qui correspond, compte tenu de la sensibilité en température du mélange des colorants, à une erreur de 1,5 °C environ. Au contraire, pour le cas à un seul colorant, le rapport $R_{23,1D}$ varie d’environ 17% lorsque la pression d’injection passe de 2 à 6 bars, ce qui correspondrait à une erreur d’environ 16 °C. De même, la variation du second rapport de fluorescence R_{31} , qui sera utilisé pour déterminer la fraction de glace au sein d’une population de gouttes, semble aussi très peu sensible à la variation de la pression d’injection et donc à la variation de la taille des gouttes. Cette différence de comportement entre la LIF3c2d (mélange de deux colorants) et LIF2c1d (Kr uniquement) peut s’expliquer par une analyse des spectres de fluorescence enregistrés dans le spray en fonction de la pression d’injection (Figure 3.38). Ces spectres ont été normalisés par l’intégrale du signal de fluorescence sur une bande spectrale non affectée par le phénomène de réabsorption de la fluorescence ([640 nm ; 690 nm]). Ce rapport de fluorescence normalisé sera noté dans la suite $I_{f,n}$. L’observation des spectres du kition red sur les bandes spectrale de détection 3 [540 nm ; 560 nm] (Figure 3.38 A) et 2 [595 nm ; 615 nm] (Figure 3.38 B)) montre que la bande 3

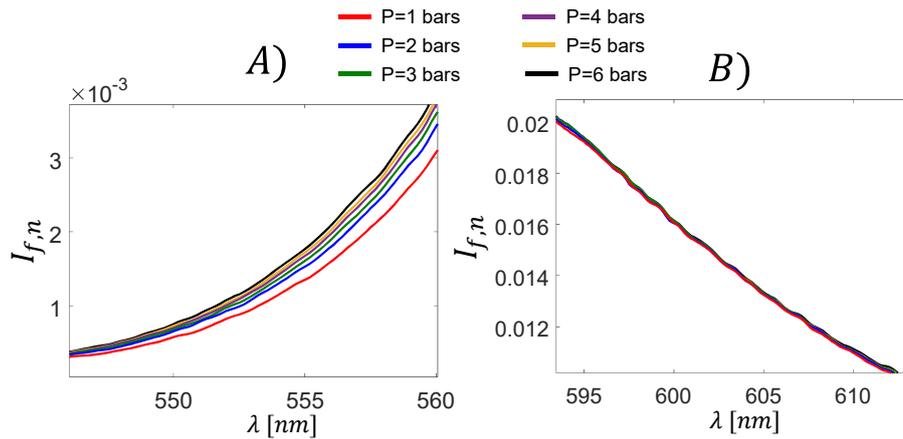


FIGURE 3.38 – Spectres de fluorescence du kiton red à une concentration de $5 \times 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ généré par un atomiseur à pression (Danfoss) sur les bandes spectrales A) [540 nm; 560 nm] et B) [595 nm; 610 nm] pour différentes pressions d'injection. Les spectres sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la bande spectrale [640 nm; 690 nm] non affectée par la réabsorption.

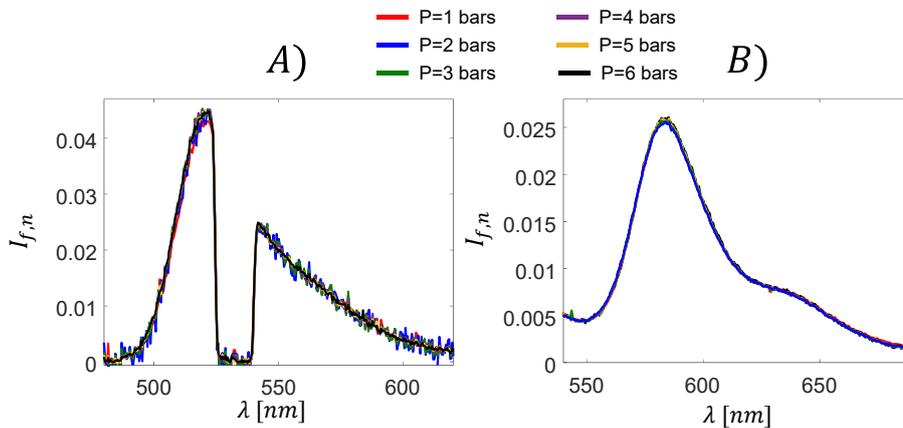


FIGURE 3.39 – Spectres de fluorescence A) de la rhodamine 560 à une concentration de $1 \times 10^{-5} \text{ mol.L}^{-1}$ B) du mélange Rh560/Kr généré par un atomiseur à pression (Danfoss) pour différentes pressions d'injection. Les spectres sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la bande spectrale A) [590 nm; 640 nm], B) [640 nm; 690 nm] non affectée par la réabsorption.

est principalement affectée par un décalage spectral vers les courtes longueurs d'ondes lorsque la pression augmente (ou D_{10} diminue), alors que la bande 2 reste peu sensible.

Les mêmes expériences ont été répétées en ensemençant cette fois-ci le spray avec de la rhodamine 560 seule. Les spectres obtenus, normalisés sur une bande spectrale non affectée par le réabsorption de la fluorescence ([590 nm; 640 nm]) sont représentés sur la Figure 3.39 A) qui montre qu'ils sont assez peu affectés par la variation de pression. De plus, le spectre réalisé pour le mélange Rh560/Kr montre que le signal de fluorescence émis par le kiton red sur la bande 3 est assez faible comparé à celui émis par rhodamine 560 (Figure 3.39 B)). Par conséquent, les spectres de fluorescence mesurés dans le spray pour le mélange Rh560/Kr restent peu sensibles à la variation de la pression d'injection (et donc au diamètre des gouttes) sur les trois bandes spectrales qui seront utilisées en LIF3c2d (Figure 3.40).

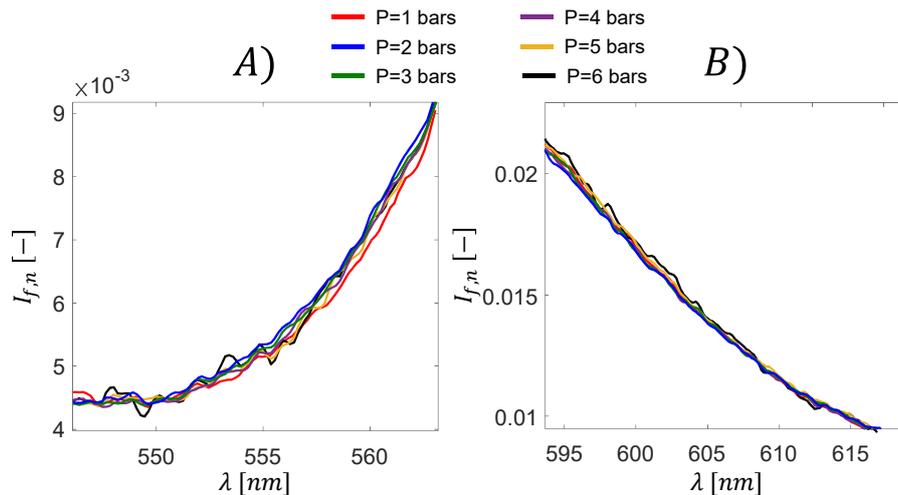


FIGURE 3.40 – Spectres de fluorescence du mélange rhodamine 560/kiton red généré par un atomiseur pour différentes pression d'injections sur les bandes spectrales : A) [540 nm; 560 nm] et B) [595 nm; 610 nm]. Les spectres sont normalisés par l'intégrale de l'intensité sur la bande spectrale [640 nm; 690 nm] non affectée par la réabsorption.

3.8 Conclusion du chapitre

L'utilisation de la Fluorescence Induite par Laser pour la caractérisation de gouttes d'eau surfondues a été présentée dans ce chapitre. L'utilisation d'un mélange de rhodamine 560 et de kiton red a été mis en œuvre. Les concentrations en traceur fluorescent utilisées ne semblent pas avoir d'influence sur les propriétés physiques du fluide, excepté sur la tension superficielle qui est diminuée de 25% par rapport à l'eau pure. Néanmoins, aucun effet des traceurs n'a été observé sur la température de surfusion de l'eau pour les concentrations choisies. L'utilisation d'un premier rapport de fluorescence R_{12} , sensible à la température, permet de mesurer la température de l'eau surfondue avec une sensibilité en température de 2,56 %/°C. Des mesures de spectres de fluorescence en phase solide, ainsi qu'en phase liquide, mettent en évidence une diminution de l'intensité de fluorescence plus importante pour la rhodamine 560 en comparaison de celle observée pour le kiton red. Un second rapport de fluorescence R_{31} est utilisé pour la détermination de la phase de l'eau. Ce second rapport de fluorescence est ensuite calibré en fonction de la fraction de glace présente dans l'eau à l'aide de mesures par Imagerie de Résonance Magnétique Nucléaire. Il a ainsi été possible de montrer que le logarithme du second rapport de fluorescence évolue linéairement avec la fraction de glace. Néanmoins, la calibration du second rapport de fluorescence avec la fraction de glace n'est pas universelle et dépend de différents paramètres comme la structure cristalline de la glace formée et du chemin optique. Il est ainsi possible, à l'aide de la technique de LIF3c2d, de mesurer la température de l'eau surfondue, de déterminer l'état du fluide et d'estimer la fraction de glace contenue dans le fluide en connaissant le signal de fluorescence dans les phases 100% liquide et 100% solide.

3.9 Références

- [1] Approche expérimentale d'un écoulement diphasique air-eau dans une soufflerie givrante à fort taux de contraction, Franck Hervy, 1999. 87
- [2] G. Castanet, P. Lavieille, M. Lebouché, and F. Lemoine. Measurement of the tempera-

- ture distribution within monodisperse combusting droplets in linear streams using two-color laser-induced fluorescence. *Experiments in Fluids*, 35(6) :563–571, 2003. 61
- [3] G. Castanet, P. Lavieille, F. Lemoine, M. Lebouché, A. Atthasit, Y. Biscos, and G. Lavergne. Energetic budget on an evaporating monodisperse droplet stream using combined optical methods evaluation of the convective heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45(25) :5053–5067, 2002. 64
- [4] G. Castanet, M. Lebouché, and F. Lemoine. Heat and mass transfer of combusting monodisperse droplets in a linear stream. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 48(16) :3261–3275, 2005. 64
- [5] G. Castanet, L. Perrin, O. Caballina, and F. Lemoine. Evaporation of closely-spaced interacting droplets arranged in a single row. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 93 :788–802, 2016. 61
- [6] W. Chaze. Transferts de chaleur et de masse lors de l'impact d'une goutte sur une paroi chaude en régime d'ébullition en film - Application de diagnostics optiques et modélisation. 2017. XV, 61, 62, 71
- [7] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet, and F. Lemoine. The saturation of the fluorescence and its consequences for laser-induced fluorescence thermometry in liquid flows. *Experiments in Fluids*, 57(4), 2016. 60, 61
- [8] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet, and F. Lemoine. Spatially and temporally resolved measurements of the temperature inside droplets impinging on a hot solid surface. *Experiments in Fluids*, 58(8), 2017. 56, 61, 68
- [9] J. Coppeta and C. Rogers. Dual emission laser induced fluorescence for direct planar scalar behavior measurements. *Experiments in Fluids*, 25(1) :1–15, 1998. 61
- [10] J. P. Hindmarsh, A. J. Sederman, L. F. Gladden, D. I. Wilson, and M. L. Johns. Rapid measurement of dispersion and velocity in freezing drops using magnetic resonance methods. *ExperHindmarsh, J. P., Sederman, A. J., Gladden, L. F., Wilson, D. I., & Johns, M. L. (2005). Rapid measurement of dispersion and velocity in freezing drops using magnetic resonance methods. Experiments in Fluids*, 38(6), 750–758. <https://doi.org/10.1007/s>, 38(6) :750–758, 2005. 82
- [11] J. P. Hindmarsh, D. I. Wilson, M. L. Johns, A. B. Russell, and X. D. Chen. NMR verification of single droplet freezing models. *AIChE Journal*, 51(10) :2640–2648, 2005. 81, 82
- [12] A. Labergue, A. Delconte, G. Castanet, and F. Lemoine. Study of the droplet size effect coupled with the laser light scattering in sprays for two-color LIF thermometry measurements. *Experiments in Fluids*, 52(5) :1121–1132, 2012. 61, 69
- [13] A. Labergue, V. Deprédurand, A. Delconte, G. Castanet, and F. Lemoine. New insight into two-color LIF thermometry applied to temperature measurements of droplets. *Experiments in Fluids*, 49(2) :547–556, 2010. XVII, 61, 90, 91
- [14] A. Labergue, J.-D. Pena-Carillo, M. Gradeck, and F. Lemoine. Combined three-color {LIF}-{PDA} measurements and infrared thermography applied to the study of the

- spray impingement on a heated surface above the {Leidenfrost} regime. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 104 :1008–1021, 2017. 56, 61, 62, 64
- [15] P. Lavieille, F. Lemoine, G. Lavergne, and M. Lebouché. Evaporating and combusting droplet temperature measurements using two-color laser-induced fluorescence. *Experiments in Fluids*, 31(1) :45–55, 2001. 64
- [16] T.-W. Lee. *Thermal and flow measurements*. CRC Press, 2008. 56
- [17] F. Lemoine, Y. Antoine, M. Wolff, and M. Lebouche. Simultaneous temperature and 2D velocity measurements in a turbulent heated jet using combined laser-induced fluorescence and LDA. *Experiments in Fluids*, 26(4) :315–323, 1999. 63
- [18] F. Lemoine and G. Castanet. Temperature and chemical composition of droplets by optical measurement techniques : a state-of-the-art review. *Experiments in fluids*, 54(7) :1572, 2013. 61
- [19] M. Marcellini, C. Noirjean, D. Dedovets, J. Maria, and S. Deville. Time-Lapse, in Situ Imaging of Ice Crystal Growth Using Confocal Microscopy. *ACS Omega*, 1(5) :1019–1026, 2016. 56, 73, 74
- [20] L. Perrin, G. Castanet, and F. Lemoine. Characterization of the evaporation of interacting droplets using combined optical techniques. *Experiments in Fluids*, 56(2), 2015. 61
- [21] J. Sakakibara and R. J. Adrian. Whole field measurement of temperature in water using two-color laser induced fluorescence. *Experiments in Fluids*, 26(1-2) :7–15, 1999. 64
- [22] J. Sakakibara and R. J. Adrian. Measurement of temperature field of a Rayleigh-Bénard convection using two-color laser-induced fluorescence. *Experiments in Fluids*, 37(3) :331–340, 2004. 64
- [23] M. Schremb. Dissertation : Hydrodynamics and Thermodynamics of Ice Accretion through Impact of Supercooled Large Droplets : Experiments, Simulations and Theory. [Http://Tuprints.Ulb.Tu-Darmstadt.De/Id/Eprint/7398](http://Tuprints.Ulb.Tu-Darmstadt.De/Id/Eprint/7398), 17, 2018. 70
- [24] X. Xue, Z.-Z. He, and J. Liu. Detection of water–ice phase transition based on {Raman} spectrum. *Journal of Raman Spectroscopy*, 44(7) :1045–1048, 2013. 79
- [25] I. Đuričković, R. Claverie, P. Bourson, M. Marchetti, J.-M. Chassot, and M. D. Fontana. Water–ice phase transition probed by {Raman} spectroscopy. *Journal of Raman Spectroscopy*, 42(6) :1408–1412, 2011. 79

Chapitre 4

Caractérisation de gouttes surfondues en écoulement

Sommaire

4.1 Conditions givrantes à faible vitesse d'écoulement	98
4.1.1 Dispositifs expérimentaux	98
4.1.1.1 Génération de l'environnement froid	99
4.1.1.2 Génération des gouttes	100
4.1.1.3 Dispositif de mesure de LIF	101
4.1.2 Modélisation des transferts	102
4.1.2.1 Cas de la goutte isolée	103
4.1.2.2 Cas du train de gouttes monodispersées	105
4.1.3 Mesure de température	105
4.1.3.1 Traitement du signal de fluorescence	105
4.1.3.2 Résultats expérimentaux sur le jet de gouttes monodispersées	107
4.1.4 Estimation de la fraction de glace	111
4.1.4.1 Convergence statistique du rapport R_{31}	112
4.1.4.2 Détermination des gouttes liquides	112
4.1.4.3 Détermination des gouttes solides	114
4.1.4.4 Estimation de la fraction de glace dans les gouttes mixtes	115
4.2 Mesures dans des conditions givrantes proches de l'environnement aéronautique réel	117
4.2.1 Dispositif expérimental : le Petit Anneau Givrant (PAG)	117
4.2.2 Mesure de la température des gouttes	119
4.2.2.1 Influence de la température de l'écoulement d'air	119
4.2.2.2 Influence de la vitesse de l'air	120
4.2.2.3 Influence de l'hygrométrie de l'air dans la veine d'essais	121
4.2.2.4 Influence de la teneur en eau (LWC) et du DVM	122
4.2.3 Étude d'un cycle de givrage	123
4.3 Conclusion du chapitre	125
4.4 Références	125

L'objectif est ici de mettre en œuvre la technique de LIF3c2d pour la caractérisation de gouttes en conditions givrantes proches de celles rencontrées dans le milieu aéronautique. La réalisation de mesures en conditions aéronautiques est souvent difficile à mettre en œuvre et surtout très onéreuse. Il a donc été décidé d'appliquer la technique de LIF3c2d dans une configuration, tout d'abord à faible vitesse (vitesse inférieure à 10 m.s^{-1}) pour des gouttes de diamètre variant entre $100 \mu\text{m}$ et $500 \mu\text{m}$, puis d'étendre ces essais en conditions aéronautiques pour des vitesses pouvant aller jusqu'à 200 m.s^{-1} et une gamme de diamètres identique. La première étape consiste donc à étudier des gouttes évoluant dans un environnement froid à faible vitesse. Pour cela, un dispositif expérimental permettant la génération d'un train de gouttes monodispersées dans un environnement froid a été mis en œuvre. Des mesures par LIF ont ensuite été confrontées à un modèle de refroidissement permettant de tenir compte des effets d'interaction entre les gouttes. Puis, la technique de LIF sera utilisée afin d'estimer l'évolution de la proportion de gouttes liquides en fonction de la température du milieu gazeux et de la tailles des gouttes. Pour finir, la technique de LIF a été appliquée au cas de gouttes évoluant à hautes vitesses (jusqu'à 200 m.s^{-1}) et générées dans une soufflerie givrante. L'objectif est d'étudier l'évolution de la température des gouttes dans la soufflerie givrante de la DGA Essais-Propulseurs à Saclay (nommé Petit Anneau Givrant) et de déterminer l'évolution de la proportion de gouttes liquides dans cette installation.

4.1 Conditions givrantes à faible vitesse d'écoulement

4.1.1 Dispositifs expérimentaux

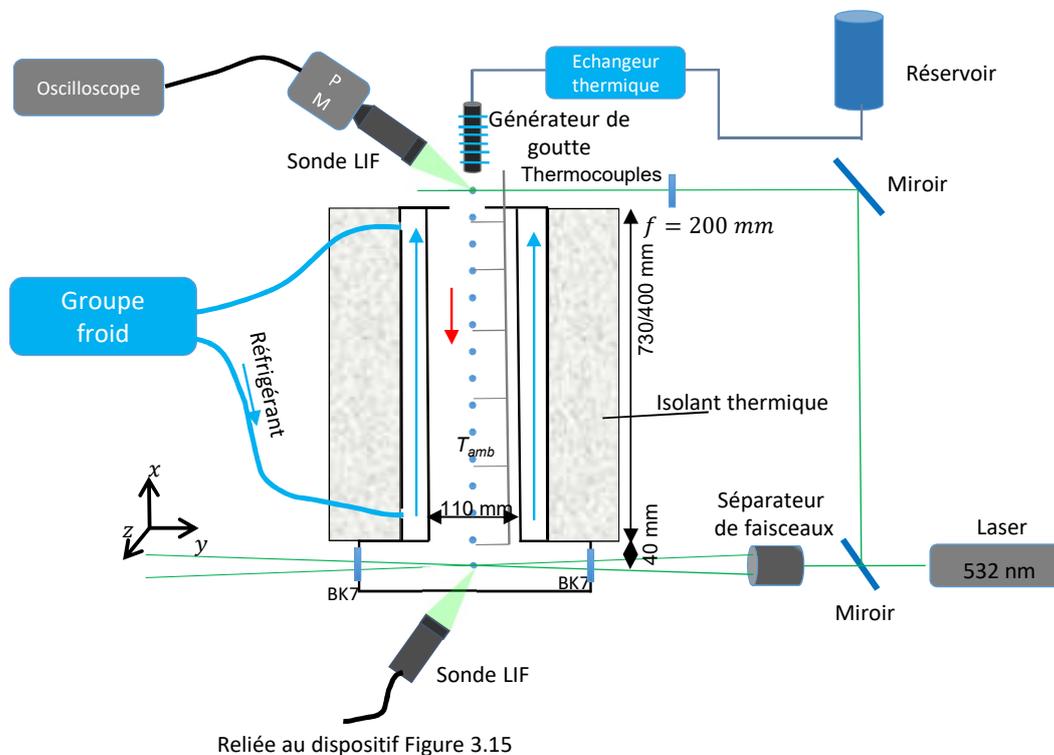


FIGURE 4.1 – Schéma de la colonne refroidie et du dispositif optique de fluorescence induite par laser.

L'objectif est tout d'abord de mettre en œuvre la technique de LIF3c2d afin de carac-

tériser les échanges thermiques entre un train de goutte monodispersées à une vitesse de l'ordre de 10 m.s^{-1} évoluant dans un environnement froid. Pour cela, un dispositif spécifique a été conçu afin de pouvoir étudier l'évolution de la température de gouttes évoluant dans un environnement froid (Figure 4.1).

Ce dispositif est composé de différentes parties permettant :

- La génération de l'environnement froid
- La génération de gouttes monodispersées
- La mesure du signal de fluorescence

4.1.1.1 Génération de l'environnement froid

Le dispositif permettant la génération de l'environnement froid est présenté sur la Figure 4.2, il est basé sur des dispositifs déjà utilisés dans la littérature [14] [8]. Il consiste

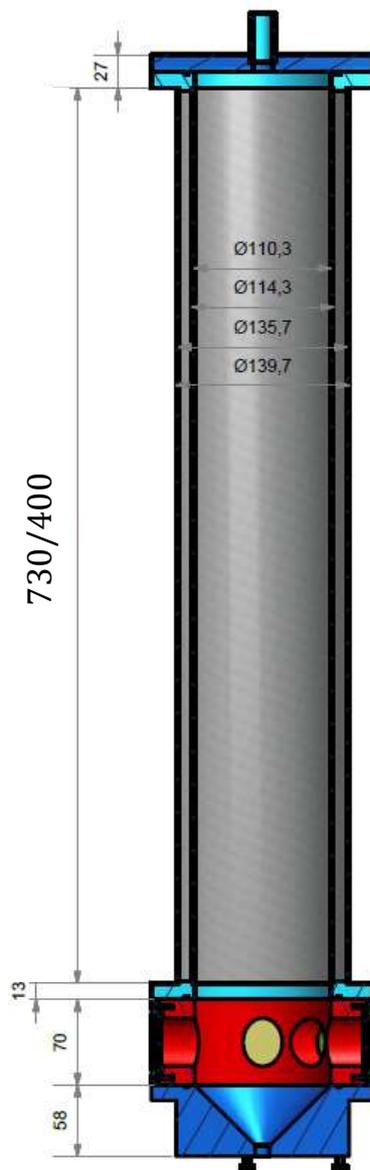


FIGURE 4.2 – Schéma technique de la colonne refroidie.

en une enceinte cylindrique (Figure 4.2) équipée d'une double enveloppe, de hauteur de

730 mm ou 400 mm, et de 110 mm de diamètre intérieur. Afin de contrôler la température de l'air ambiant, le fluide caloporteur (Thermal HL80) circule dans la double paroi. Le groupe froid (Julabo Presto 80) permet de refroidir le fluide caloporteur jusque -60 °C, la température du fluide en sortie de colonne. Le fluide caloporteur rentre par le bas de la colonne et remonte progressivement dans la double enveloppe pour ressortir par le haut de la colonne. Un total de huit thermocouples disposés régulièrement sur toute la hauteur de la colonne, et reliés à un module d'acquisition (Enregistreur de données Pico Technology ®, 8 voies, USB TC-08), permettent une mesure du champ de température de l'air dans la colonne. Afin de limiter les pertes thermiques, la paroi extérieure de la colonne est isolée avec une épaisseur de 50 mm de mousse de polyisocyanurate de densité 40 kg.m^{-3} . Un exemple de deux champs de température dans la colonne en régime stationnaire est présenté sur la Figure 4.3 pour deux consignes de température du fluide caloporteur (-30 °C et -50 °C) dans le cas d'une colonne de 400 mm de hauteur. Notons que les températures moyennes de l'air dans la colonne pour deux consignes précédentes sont respectivement -24 °C et -40 °C. Il est possible de constater que la température dans la colonne semble stabilisée à partir de 200 mm pour une colonne d'une hauteur de 400 mm. Sous la partie inférieure de la colonne est monté un bloc optique constitué de 5 hu-

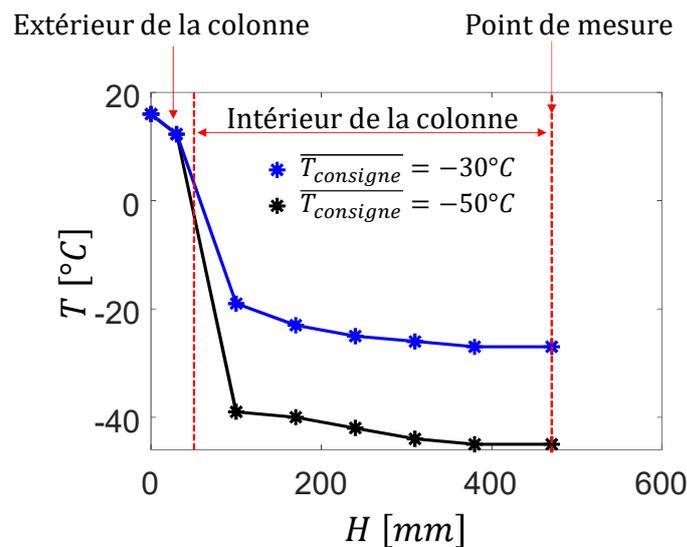


FIGURE 4.3 – Exemple de deux champs de température de l'air à l'intérieur de la colonne de 400 mm de hauteur.

blots en BK7 permettant les mesures. L'environnement de la colonne n'étant pas contrôlé en humidité et en température, une couche de givre se dépose sur l'ensemble du bloc optique ainsi que sur les hublots lorsque la température du bloc optique descend en dessous de 0 °C. Afin d'empêcher le dépôt de givre sur les hublots, un flux d'air sec est soufflé sur la partie extérieure des hublots.

4.1.1.2 Génération des gouttes

Les gouttes sont générées à l'aide d'un injecteur de goutte monodispersées. Un jet de gouttes est dit monodispersés lorsque toutes les gouttes sont émises dans une même direction et présentent, à une position donnée, une vitesse v , un diamètre d et une distance l inter-gouttes identiques. Ainsi, toutes les gouttes, à une position donnée, ont la même histoire. Le liquide est mis sous pression dans le corps de l'injecteur à l'aide d'un réservoir pressurisé. L'injecteur utilisé est composé d'un élément piézo-céramique soumis à un

champ électrique oscillant au moyen d'un générateur de tension hautes fréquences. Les vibrations de la piézocéramique se propagent dans tout le corps de l'injecteur jusqu'au jet liquide éjecté par l'orifice d'une membrane percée d'un trou de diamètre D_m . La vibration imposée par l'élément piézocéramique permet de placer le jet cylindrique en régime instable de Rayleigh (Figure 4.4). Pour des fréquences F précises, le jet cylindrique se désintègre en gouttes monodispersées. Le diamètre d des gouttes peut être relié à la fréquence des oscillations F de la piézocéramique au débit de liquide Q_v par la relation suivante :

$$d = \sqrt{\frac{6Q_v}{\pi F}} \quad (4.1)$$

Le diamètre des gouttes peut alors être déterminé par débitométrie. De manière empirique,

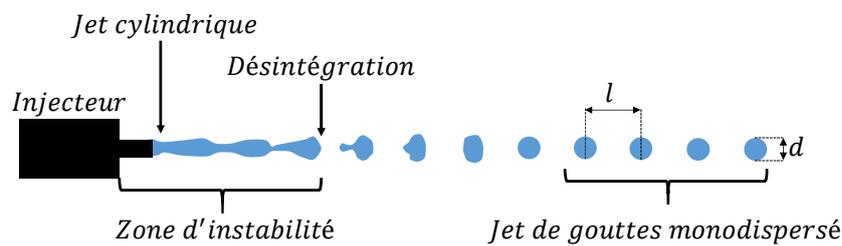


FIGURE 4.4 – Schéma d'un jet de gouttes monodispersées.

il a été montré que le diamètre des gouttes est approximativement égal à $1,9 \times D_m$. On définit comme le paramètre de distance C , le rapport entre la distance intra-gouttes et le diamètres des gouttes ($C = l/d$). La vitesse des gouttes en sortie d'injecteur v_{inj} , peut être déterminée par :

$$v_{inj} = \frac{Q_v}{\frac{\pi D_m^2}{4}} \quad (4.2)$$

Connaissant le débit d'injection des gouttes, ainsi que la fréquence d'excitation, il devient alors possible de déterminer la vitesse v_{inj} , le diamètre d_{inj} et le paramètre de distance $C_{inj} = v_{inj}/F$ à la sortie de l'injecteur. Afin de contrôler la température d'injection T_{inj} des gouttes, un échangeur alimenté par un bain thermostatique est placé entre le réservoir et l'injecteur. L'ajout de cet échangeur permet un refroidissement préalable des gouttes avant injection et permet ainsi d'augmenter le degré de surfusion des gouttes en bas de la colonne.

4.1.1.3 Dispositif de mesure de LIF

L'objectif est de mettre en place des mesures de LIF3c2d dans la colonne froide. La Figure 4.1 présente un schéma de l'ensemble des dispositifs de mesure implémenté autour de la colonne. Le laser utilisé pour la génération du volume d'excitation est identique à celui utilisé au Chapitre 3 ($\lambda = 532 \text{ nm}$). Un séparateur de faisceaux, comparable à une sonde d'émission utilisée en vélocimétrie laser est utilisé pour générer le volume d'excitation laser au niveau du bloc optique situé au bas de la colonne. Les deux faisceaux laser (distant de $esp = 60 \text{ mm}$) sont focalisés grâce à une lentille convergente de distance focale égale à 500 mm. L'intersection des deux faisceaux laser forme le volume d'excitation de la fluorescence défini par $dx \times dy \times dz \text{ } \mu\text{m}^3$ (Figure 4.5), avec :

- $dx = 170 \text{ } \mu\text{m}$
- $dy = 2800 \text{ } \mu\text{m}$

— $dz = 170 \mu\text{m}$

Afin de permettre des mesures de LIF des gouttes en sortie de la colonne froide, le volume d'excitation est ensuite placé au centre de la colonne. Le volume de mesure cor-

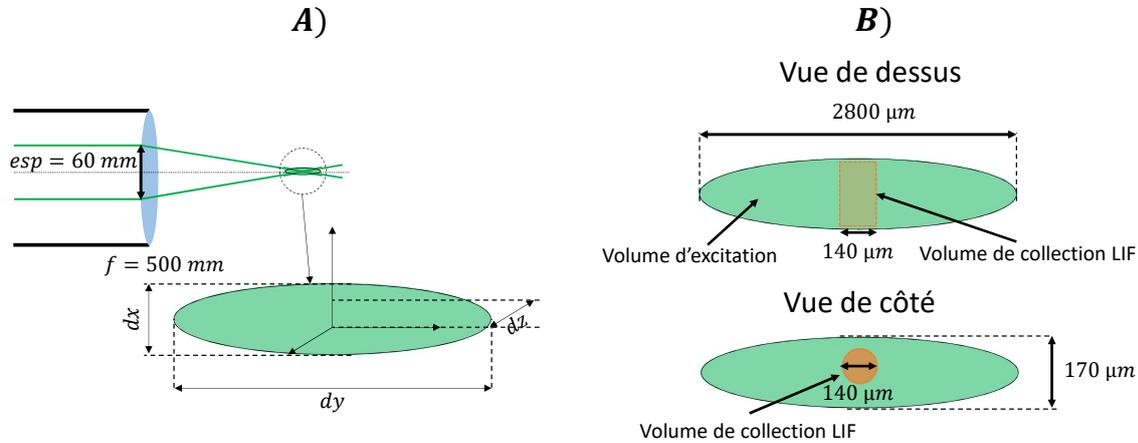


FIGURE 4.5 – A) Volume d'excitation laser obtenus avec une sonde LDV. B) Volume de mesure correspondant à l'intersection entre les volumes de collection de la sonde de fluorescence et d'excitation laser.

respond à l'intersection entre le volume de collection obtenus à l'aide de la sonde LIF (doublet achromatique afocal identique au dispositif présenté sur la Figure 3.13) et le volume d'excitation laser. La sonde LIF (section 3.13) est utilisée pour la mesure du signal de fluorescence dans le bas de colonne et peut être déplacée pour une mesure du signal de fluorescence directement en sortie d'injecteur, servant de prise de référence du signal de fluorescence. La sonde est couplée à une fibre optique multimode comme présenté sur la Figure 3.15 et transmet le signal optique jusqu'au dispositif de détection du signal. Dans le cas présent, le volume de mesure correspond à l'intersection entre les volumes d'excitation laser et de collection et peut être assimilée à un volume de $140 \times 170 \times 140 \mu\text{m}^3$. Afin de s'assurer du caractère monodisperses des gouttes à l'injection, un jeu de miroirs permet de dévier temporairement le faisceau laser au voisinage de la sortie de l'injecteur. Une lentille de focale $f = 200 \text{ mm}$ est ensuite utilisée afin de générer un volume d'excitation laser de $100 \mu\text{m}$ de diamètre au point focal, ajusté sur le jet de gouttes en sortie de l'injecteur et ainsi réalisés des mesures du signal de fluorescence. Ces mesures sont réalisées à l'aide d'une seconde sonde LIF similaire à celle utilisée précédemment et munie d'un filtre passe bande [540 nm; 560 nm]. Le signal de fluorescence est ensuite visualisé sur un oscilloscope permettant ainsi de vérifier la périodicité du passage des gouttes dans le volume de mesure.

4.1.2 Modélisation des transferts

Lorsqu'une goutte d'eau évolue dans un environnement froid avec une humidité relative inférieure à 100%, une partie de la chaleur échangée entre la goutte et l'environnement ambiant est utilisée pour évaporer le liquide et l'autre partie pour refroidir la goutte (Figure 4.6). Ces deux processus entraînent un refroidissement de la goutte. Le flux de chaleur échangé entre la goutte et l'environnement dépend de nombreux facteurs, comme les propriétés thermophysiques du liquide et du gaz ainsi que de l'espacement entre les gouttes. Les interactions aérodynamiques entre les gouttes, du fait de leur proximité réduisent les transferts de chaleur et de masse par rapport au cas de la goutte isolée. Il est

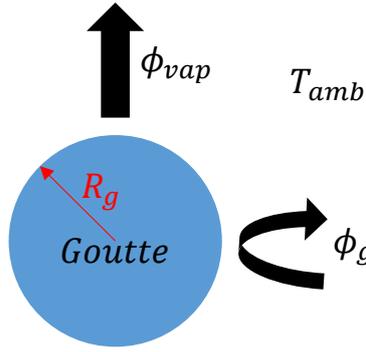


FIGURE 4.6 – Transfert de chaleur dans une goutte en évaporation.

donc nécessaire de les prendre en compte pour pouvoir les comparer avec les mesures expérimentales. Dans toute la suite, le modèle d'évaporation ne sera présenté que pour une goutte d'eau en évaporation dans l'air.

4.1.2.1 Cas de la goutte isolée

Bilan thermique de la goutte

Une goutte injectée dans un environnement froid échange de la chaleur avec la phase gazeuse (ϕ_g). Cette énergie permet le refroidissement de la goutte (Q_L) et son évaporation (ϕ_{vap}) :

$$\phi_g = Q_L + \phi_{vap} \quad (4.3)$$

avec $\phi_g = 4 \pi R_g^2 k_g \left. \frac{dT}{dr} \right|_{r=R_g}$, R_g le rayon de la goutte et k_g la conductivité thermique du gaz. La chaleur échangée pour le refroidissement de la goutte conduit à une condition à la limite de type flux imposé à l'interface liquide/gaz :

$$Q_L = -k_L 4 \pi R_g^2 \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=R_g} \quad (4.4)$$

avec k_L la conductivité thermique de la phase liquide. Le flux de chaleur servant à l'évaporation de la goutte s'écrit :

$$\phi_{vap} = L_v \dot{m} \quad (4.5)$$

avec \dot{m} le débit massique et L_v la chaleur latente d'évaporation du liquide.

Modélisation de la phase vapeur

Intéressons-nous aux échanges de chaleur et de masse entre une goutte et son environnement gazeux. La description des transferts de masse et de chaleur fait appel au nombre de Nusselt Nu et de Sherwood Sh :

$$Nu = \frac{2R_g}{T_{amb} - T_{surf}} \left. \frac{dT}{dr} \right|_{r=R_g} \quad (4.6)$$

$$Sh = \frac{2R_g}{\rho_{v,\infty} - \rho_{v,surf}} \left. \frac{d\rho_v}{dr} \right|_{r=R_g} \quad (4.7)$$

Le flux de chaleur ϕ_g reçue par la goutte peut être exprimé en fonction du nombre de Nu :

$$\phi_g = \pi d Nu k_g (T_{amb} - T_{surf}) \quad (4.8)$$

T_{surf} et T_{amb} représentent respectivement la température de surface de la goutte et la température ambiante. Dans le cas d'une goutte en mouvement, et afin de prendre en compte la convection tout en gardant une symétrie sphérique des échanges, la théorie du film a été développé [12]. La zone où ont lieu les échanges de masse et de chaleur est modélisée par un film mince entourant la goutte. La convection forcée participe aux échanges entre la goutte et la phase gazeuse. Les nombres adimensionnels de Sh_0 et de Nu_0 , dans le cas d'une goutte sphérique isolée en mouvement par rapport à la phase gazeuse sans évaporation, peuvent être obtenus par la corrélation de Ranz-Marshall [12] :

$$Sh_0 = 2 + 0,6Re^{1/2} Sc_g^{1/3} \quad (4.9)$$

$$Nu_0 = 2 + 0,6Re^{1/2} Pr_g^{1/3} \quad (4.10)$$

avec Sc_g et Pr_g respectivement les nombres de Schmidt et de Prandtl de la phase gazeuse et Re le nombre de Reynolds de la goutte. Dans le cas de goutte en évaporation, les nombres de Nu_{iso} et Sh_{iso} ont été déterminé par Abramzon et Sirigano [1] et sont :

$$Sh_{iso} = \frac{\ln(1 + B_M)}{B_M} \left[2 + \left(\frac{Sh_0 - 2}{F(B_M)} \right) \right] \quad (4.11)$$

$$Nu_{iso} = \frac{\ln(1 + B_T)}{B_T} \left[2 + \left(\frac{Nu_0 - 2}{F(B_T)} \right) \right] \quad (4.12)$$

avec B_T et B_M respectivement les nombres de Spalding thermique et massique défini par :

$$B_T = \frac{Cp_v \dot{m}(T_{amb} - T_{surf})}{L_v \dot{m} + \frac{Q_L}{\dot{m}}} \quad (4.13)$$

$$B_M = \frac{Y_{g,surf} - Y_{g,amb}}{1 - Y_{g,surf}} \quad (4.14)$$

avec $Y_{g,surf}$ la fraction massique d'eau sous forme gazeuse à la surface de la goutte et $Y_{g,amb}$ celle présente dans l'air ambiante. La fonction $F(B)$ est défini comme :

$$F(B) = (1 + B)^{0,7} \frac{\ln(1 + B)}{B} \quad \text{avec } B = B_M \text{ ou } B = B_T \quad (4.15)$$

Modélisation de la phase liquide

Afin de résoudre le champ de température dans la phase liquide, il est essentiel de prendre en compte les effets convectifs à l'intérieur de la goutte du fait de l'existence de frottement interfaciaux. En effet, pour des gouttes en mouvement, le cisaillement à l'interface entre la goutte et l'air ambiant peut-être suffisamment important pour générer une recirculation du fluide de la surface vers l'intérieur de la goutte et donc induire une advection de la chaleur. La conséquence est une accélération des transferts thermiques et ainsi du refroidissement de la goutte. Le modèle le plus réaliste est celui du vortex de Hill [11] mais sa résolution est coûteuse en temps de calculs car il nécessite la résolution des équations de diffusion-convection dans la goutte. Afin de réduire considérablement les temps de calculs, le modèle à diffusion effective prenant en compte les phénomènes convectifs de manière simplifiée sera utilisé par la suite. La convection à l'intérieur de la goutte est prise en compte indirectement en corrigeant le coefficient de diffusion de la chaleur du liquide $D_{L,eff}$:

$$D_{L,eff} = 1,86 + 0,86 \tanh \left(2,225 \log \left(\frac{Re Pr}{30} \right) \right) D_L \quad (4.16)$$

avec D_L la diffusivité thermique de l'eau liquide. L'évolution de la température est purement radiale et est régie par l'équation instationnaires, de diffusion de la chaleur :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_L \Delta T \quad (4.17)$$

4.1.2.2 Cas du train de gouttes monodispersées

Dans certains sprays, la distance séparant les gouttes peut se limiter à quelques fois leurs diamètres. Les gouttes peuvent ne plus se comporter comme des gouttes isolées et deux niveaux d'interactions entre gouttes peuvent être distingués :

- Lorsque la distance entre les gouttes est suffisamment grande, le seul effet d'interaction existant est la modification des conditions ambiantes dans le voisinage des gouttes du fait des transferts thermiques et de masse entre la phase liquide et la phase gazeuse.
- Lorsque la distance entre les gouttes est proche du diamètre de celle-ci, les effets d'interaction liés à des phénomènes aérodynamiques (effets de sillages) prennent une autre dimension. En effet, afin de modéliser les effets d'interactions d'une goutte avec son milieu, il est essentiel de corriger les nombres de Nusselt et de Sherwood afin de tenir compte de ces interactions.

Afin de prendre en compte les effets de sillages dans le cas d'un train de goutte monodispersées, les coefficients de réductions η_M et η_T des nombres de Sherwood et de Nusselt sont introduits. Ces coefficients quantifient la diminution des transferts massiques et thermiques par rapport au cas de la goutte isolée :

$$\eta_M = \frac{Sh}{Sh_{iso}} \quad (4.18)$$

$$\eta_T = \frac{Nu}{Nu_{iso}} \quad (4.19)$$

Dans ce cas, la valeur limite correspondant à $\eta_T = \eta_M = 1$ correspond au cas d'une goutte isolée. L'objectif par la suite est de déterminer un couple η_M et η_T de valeurs constantes minimisant l'écart entre les mesures de la température moyenne de la goutte réalisées par LIF et la solution du problème issu du modèle de conduction effective.

4.1.3 Mesure de température

Comme précisées précédemment, nous disposons de deux colonnes de hauteur différentes (730 mm et 400 mm). Afin de réaliser des mesures de température dans les meilleures conditions possibles, c'est-à-dire en évitant les risques de solidification de l'eau ainsi que la perte de stabilité du jet de gouttes monodispersées, les premières mesures ont été réalisées avec la colonne de 400 mm de hauteur.

4.1.3.1 Traitement du signal de fluorescence

Le signal de fluorescence provenant d'une goutte est collecté grâce à une sonde optique localisée en bas de la colonne. Afin de détecter le signal de fluorescence émis par une goutte traversant le volume de mesure, il est nécessaire d'utiliser un seuil de détection qui est choisi égal à 10 fois le bruit dans le "noir", ceci sur chacune des bandes spectrales de détection. Le bruit est obtenu en mesurant le signal en l'absence de gouttes et est ensuite retranché sur chacune des voies. Le schéma de la Figure 4.7 présente l'évolution

temporelle du signal de fluorescence sur chacune des bandes spectrale de mesure pour une goutte traversant le volume de mesure. Le signal de fluorescence correspond à une courbe assimilable à une gaussienne, l'intensité de fluorescence instantanée dépendant de la position de la goutte dans le volume de mesure. Trois séquences peuvent être identifiées :

- $t = t_1$ correspond à l'instant à partir duquel la goutte entre dans le volume de mesure et que le signal de fluorescence devient supérieur au bruit.
- $t = t_2$ correspond à l'instant où la goutte se trouve au centre du volume de mesure et pour lequel le signal de fluorescence collecté est maximum.
- $t = t_3$ correspond à l'instant où la goutte quitte le volume de collection.

Le temps de transit d'une goutte dans le volume de mesure (t_t) correspond à la différence entre l'instant d'arrivée et de sortie de la goutte dans le volume de mesure :

$$t_t = t_3 - t_1 \quad (4.20)$$

Lorsqu'une goutte traverse le volume de collection et que le niveau de signal est supérieur

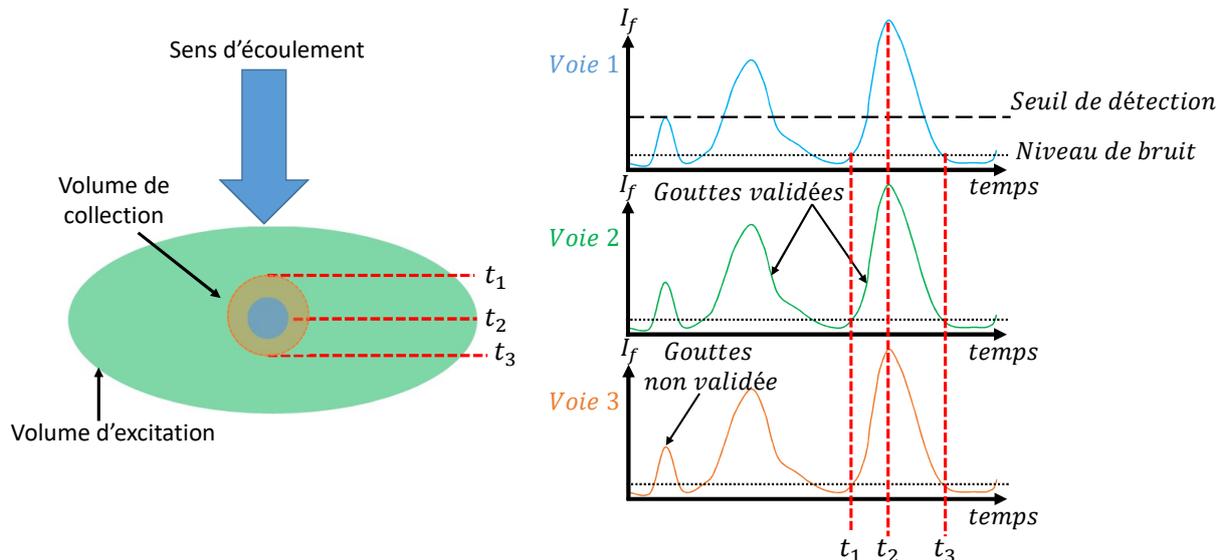


FIGURE 4.7 – Principe de détection du signal de fluorescence émis par une goutte.

au seuil de détection, le signal de fluorescence collecté correspond à celui provenant du volume illuminé de la goutte, interceptant le volume de collection. En plaçant un seuil de détection égal à 10 fois le niveau de bruit, la contribution des gouttes au signal de fluorescence ne passant pas au centre du volume de mesure est marginale. Le signal de fluorescence est ensuite intégré sur tous les échantillons ayant une intensité supérieure ou égale à la valeur du seuil de détection. Afin de garantir un nombre d'échantillons d'environ 80 pour une goutte seule traversant le volume de mesure, la fréquence d'échantillonnage est fixée par la suite à 5 Mhz. Pour une goutte j , décrite par N_j échantillons, les signaux de fluorescence intégrés sur les bandes spectrales 1 et 2 et 3 sont :

$$I_{f,1,j} = \frac{\sum_{i=1}^{N_j} I_{f,1,i}}{N_j} - N_j \overline{BG} \quad (4.21)$$

$$I_{f,2,j} = \frac{\sum_{i=1}^{N_j} I_{f,2,i}}{N_j} - N_j \overline{BG} \quad (4.22)$$

$$I_{f,3,j} = \frac{\sum_{i=1}^{N_j} I_{f,3,i}}{N_j} - N_j \overline{BG} \quad (4.23)$$

avec i l'indice d'échantillonnage et \overline{BG} la valeur moyenne du bruit. Le traitement, consistant à calculer le rapport de fluorescence d'une goutte individuelle, sera désigné par la suite "traitement 1" et il est donné par la relation suivante dans le cas du calcul du rapport R_{12} :

$$R_{12,j} = \frac{I_{f,1,j}}{I_{f,2,j}} \quad (4.24)$$

Le traitement consistant à calculer le rapport moyen $\overline{R_{12}}$ sur un ensemble de goutte N_g sera désigné par "traitement 2" :

$$\overline{R_{12}} = \frac{\sum_{j=1}^{N_g} I_{f,1,j}}{\sum_{j=1}^{N_g} I_{f,2,j}} \quad (4.25)$$

Pour ce second traitement, le nombre de gouttes N_g pris en compte dans la moyenne est fixé afin d'assurer la convergence statistique du rapport de fluorescence. Le "traitement 1" appliqué au rapport R_{31} sera mis en œuvre pour déterminer si la goutte est totalement liquide ou totalement solidifiée (voir développement ultérieur) tandis que le "traitement 2" sera mis en œuvre pour traiter les gouttes partiellement solides ou liquides (fraction solidifiée) et pour la mesure de la température d'un ensemble de goutte. La Figure 4.8 présente une illustration de la convergence statistique du rapport de fluorescence R_{12} mesuré dans le cas d'un train de gouttes monodispersées évoluant dans un environnement isotherme (la température d'injection de l'eau est identique à la température de l'air ambiant) en fonction du nombre de gouttes N_g cumulées pour le calcul du rapport. Une

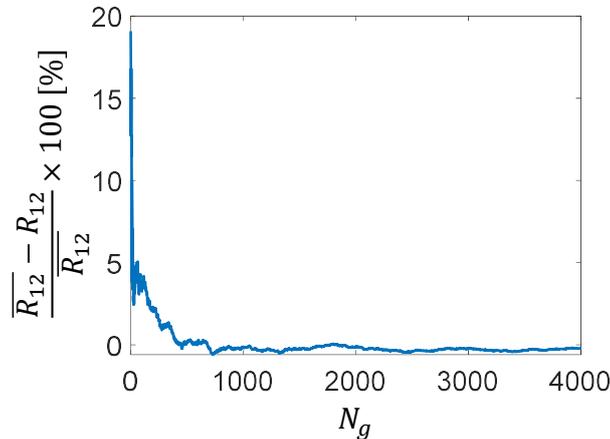


FIGURE 4.8 – Illustration de la convergence statistique du rapport R_{12} en fonction du nombre de goutte utilisée pour le calcul du rapport de fluorescence.

convergence du rapport de $\pm 1\%$ est obtenue pour un nombre de gouttes de 500, induisant ainsi une erreur de l'ordre de $0,2^\circ\text{C}$ sur la température. Dans la mesure du possible, et afin de garantir une bonne convergence du rapport R_{12} et donc de la mesure de température, un échantillon N_g de gouttes sera choisis supérieur à 1000.

4.1.3.2 Résultats expérimentaux sur le jet de gouttes monodispersées

L'objectif est de s'intéresser à l'évolution de la température des gouttes en fonction de leurs diamètres (d), de leurs vitesses (v), du paramètre de distance entre les gouttes (C)

ainsi que de la température de l'environnement froid. L'étude de l'évolution du second rapport de fluorescence R_{31} sera étudié ultérieurement afin de déterminer l'état d'une goutte (i.e. liquide/solide) dans le cas de la colonne la plus haute (730 mm). Notons, que dans le cas de la colonne d'une hauteur de 400 mm, le rapport de fluorescence R_{31} est constant et est égale à la valeur en phase liquide dans l'ensemble de nos expériences, indiquant la présence uniquement de goutte purement liquide. Les mesures de températures suivantes seront donc réalisées dans la colonne de 400 mm de hauteur afin d'obtenir un jet le plus stable possible. Pour assurer la convergence statistique du rapport R_{12} , un ensemble de 10000 gouttes est considéré pour le calcul de la température. La température des gouttes est mesurée en deux point de l'espace par LIF : i) juste en sortie d'injecteur et ii) en bas de la colonne au niveau du module optique. Le refroidissement des gouttes est dépendant de leurs temps de vol dans l'environnement froid qui est fonction de la vitesse des gouttes et de la hauteur de chute. Pour une hauteur de 400 mm et une vitesse de 10 m.s^{-1} , le temps de vol d'une goutte dans l'environnement froid est de 0,04 s. Afin de pouvoir comparer les mesures de température obtenues par LIF avec le modèle basé sur la conduction effective, il est essentiel de connaître le temps de vol des gouttes dans la colonne. Il a ainsi été décidé de mesurer la vitesse aux deux points de mesure du signal de fluorescence. D'après l'équation 4.1, une mesure de débitmétrie permet de déterminer la vitesse d'injection des gouttes. La vitesse des gouttes dans le bas de colonne a été mesurée par vélocimétrie laser Doppler (LDV). La mesure LDV est effectuée en diffusion avant avec un angle de diffusion de 45° par rapport aux faisceaux laser incidents (Figure 4.9). Il

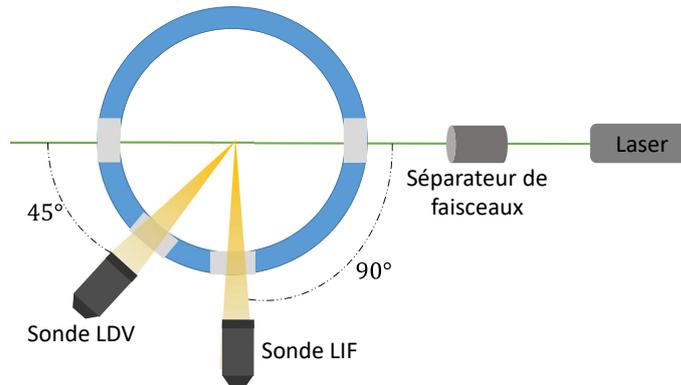


FIGURE 4.9 – Schéma des dispositifs de mesure LDV et LIF mis en place dans la colonne.

a été montré par Perrin et al. [9] que dans le cas de goutte ayant un diamètre de l'ordre de $100 \mu\text{m}$ et d'une température ambiante de $540 \text{ }^\circ\text{C}$ que la température mesurée par LIF ponctuelle (T_{LIF}) donne une température définie par :

$$T_{LIF} \approx \frac{T_c + T_m}{2} \quad (4.26)$$

où T_c et T_m sont respectivement les températures au centre et moyenne volumique (au sens arithmétique) de la goutte calculées à l'aide du modèle de diffusion effective. Dans la suite, nous ferons l'hypothèse que la température mesurée par LIF correspond à celle-ci. Ces mesures de température, pourront être exploitées afin de déterminer l'influence du paramètre de distance sur les transferts de chaleurs et de masse entre les gouttes et leur environnement. Pour cela, il est essentiel de déterminer les coefficients de réduction présentés dans les équation 4.18 et 4.19. Le tableau 4.1 représente l'ensemble des conditions d'injection testées.

$\overline{T_{amb}}$	T_{inj} [°C]	C	v_{inj} [$m.s^{-1}$]	d_{inj} [μm]	Re
-40 °C	[4, 7; 4, 9]	[1, 5; 3, 6]	[5; 8, 5]	[226; 415]	[114; 351]
-24 °C	[4, 9; 0, 1]	[1, 7; 5, 6]	[4, 2; 8, 6]	[160; 370]	[76; 271]

TABLEAU 4.1 – Conditions d'injections testées

Les mesures sont réalisées pour deux températures moyennes d'air $\overline{T_{amb}}$ différentes (Figure 4.3). Dans le cas de l'eau, il est possible de faire l'hypothèse que les coefficients de correction η_M et η_T soit égales ($\eta_M = \eta_T = \eta$) car le nombre de Lewis (qui représente le rapport entre la diffusivité thermique et massique du liquide) de l'eau est proche de l'unité [3] [5], ce qui suppose que les couches limites thermiques et massiques sont identiques. Cette hypothèse a été validée pour des mesures similaires à celles réalisées dans cette étude par [10], dans le cas de goutte de n-dodecane en faible évaporation. Afin de déterminer η , une approche itérative a été mis en place consistant à calculer numériquement la température d'une goutte isolée en utilisant le modèle décrit par l'équation 4.17 dans les conditions d'injections testées. η est obtenu par ajustement de la température calculée numériquement avec celle mesurée expérimentalement, ceci avec un écart inférieur à 1%.

La Figure 4.10 A) présente l'évolution temporelle de la température d'une goutte obtenu numériquement dans différents cas (goutte isolée et coefficient de correction de 0,6) et injectée à une température initiale de T_{inj} de 4,7 °C, une vitesse d'injection v_{inj} de 6,9 $m.s^{-1}$, un diamètre de goutte de 226 μm , un paramètre de distance C de 1,52 et une température ambiante moyenne $T_{amb} = -45$ °C. Notons que la simulation prend en compte le champ de température ambiante présentée sur la Figure 4.3. La température des gouttes (T_{LIF}) obtenus par LIF3c2d au point de mesure (≈ 92 ms) est supérieure à celle prédite dans le cas de la goutte isolée, en utilisant $\left(\frac{T_m + T_c}{2}\right)_{iso}$. En effet, l'interaction entre gouttes successives a pour effet de diminuer les échanges de chaleur et de masse entre la goutte et l'air ambiant, supposé statique. Comme montré sur la Figure 4.10 A), un gradient thermique est présent dans la goutte car les températures au centre T_c et moyenne T_m ne sont pas égales. La Figure 4.10 B) présente l'évolution du diamètre de la goutte au cours

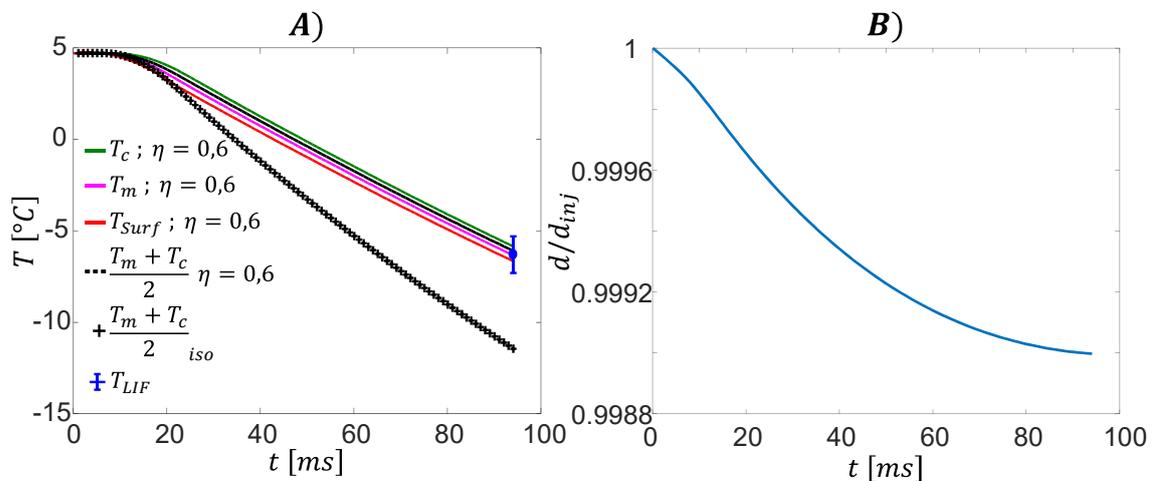


FIGURE 4.10 – A) comparaison de la température mesurée par LIF3c2d avec la simulation dans le cas $\eta = 0,6$ et dans le cas d'une goutte isolée; avec $T_{inj} = 4,7$ °C, $v_{inj} = 6,9$ $m.s^{-1}$, $d_{inj} = 226$ μm et $C_{inj} = 1,52$. T_m représente la température moyenne, T_c la température du centre, T_{surf} la température de surface calculées et T_{LIF} la température mesurée par LIF. B) Simulation de l'évolution du diamètre de la goutte au cours du temps.

du temps et permet de montrer que l'évaporation des gouttes est quasiment négligeable, malgré une humidité relative dans la colonne de 20%. L'évaporation des gouttes participe donc très peu à leur refroidissement. Dans le cas de gouttes de n-dodecane évoluant dans un environnement chaud ($T_{amb} > 500\text{ °C}$) en faible évaporation, il a été montré par Perrin et al. [9] que l'influence de η_M sur les transferts thermique était faible.

La Figure 4.11 présente l'évolution du paramètre de correction η en fonction du paramètre de distance C pour tout les cas testés (Tableau 4.1). Au vue des résultats, obtenus il semble judicieux de représenter les données pour différentes gammes de nombre de Reynolds. Les mesures de [2] dans le cas de gouttes de n-dodecane injectées à une température initiale de 68 °C dans un environnement chaud ($T_{amb} > 540\text{ °C}$) sont ajoutées afin de comparer nos mesures dans le cas de goutte en très faible évaporation. Il est possible de constater une augmentation globale du paramètre de correction avec le paramètre de distance. Ce résultat s'explique par une diminution des effets d'interaction avec l'augmentation du paramètre de distance. Dans le cas des études précédentes [9] [4] et [2] les nombres de $Re = \frac{\rho v d}{\mu}$ étudiés étaient inférieurs à 100. Intéressons-nous donc tout

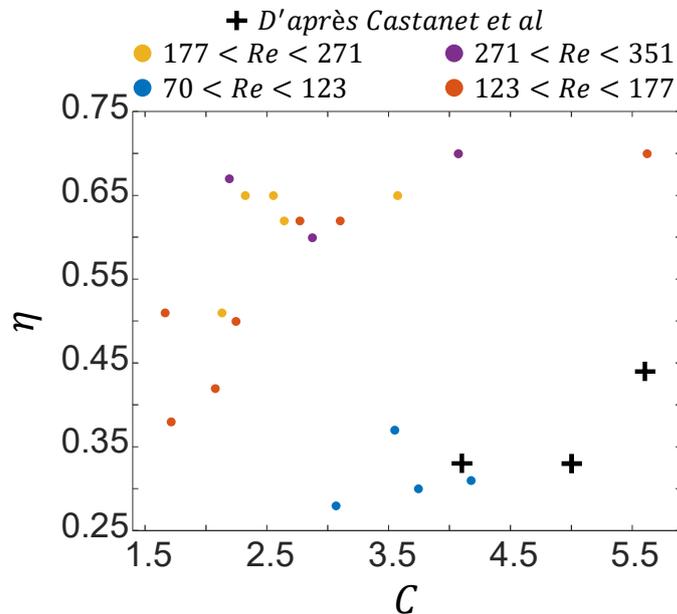


FIGURE 4.11 – Évolution du coefficient de correction η en fonction du paramètre de distance C pour différents nombres de Reynolds. Les données extraites de [2] dans le cas de goutte en faible évaporation ont été ajoutée à la Figure.

d'abord aux valeurs de Re compris dans l'intervalle [70; 123]. Pour cette gamme de Re , les résultats actuels, dans le cas de gouttes surfondues, sont en accord avec ceux observés dans [2]. Néanmoins, lorsque le nombre de Re augmente, une augmentation plus importante de η est observée pour un même paramètre de distance. Par exemple, pour $C = 2,2$, le coefficient de correction est de 0,5 pour $123 < Re < 177$ tandis qu'il est de 0,65 pour $271 < Re < 351$. Dans le cas de $Re > 100$, il a été observé que le train de gouttes était instable. En effet, pour des Re élevés, l'écoulement autour des gouttes génère un sillages turbulents déstabilisant ainsi le train de goutte. Il en résulte une augmentation des transferts de chaleur ce qui conduit à se rapprocher du cas de la goutte isolée. Afin de pouvoir analyser plus finement les résultats présentés sur la Figure 4.11, il semblerait intéressant de pouvoir réaliser des mesures le long du jet pour ainsi être en mesure de déterminer la distance à partir de laquelle le train de goutte se déstabilise. Lorsque le jet se déstabilise, la distance entre les gouttes devient grande et les transferts thermiques entre les gouttes

et l'environnement tendent vers ceux de la goutte isolée. Intuitivement, en faisant l'hypothèse que la distance de déstabilisation diminue avec l'augmentation du nombre de Re (augmentation de la traînée), il est possible d'envisager une augmentation de η avec le nombre de Re comme observée sur la Figure 4.11. Dans les cas étudiés expérimentalement ici les hypothèses faites sur le train de gouttes monodispersées ne sont plus valables. En effet, les gouttes ne sont plus alignées, ce qui signifie que l'hypothèse de couches limites dynamique, thermique et massique colonnaires n'est plus vérifiée, conduisant ainsi à une influence significative du nombre de Reynolds.

4.1.4 Estimation de la fraction de glace

L'objectif ici est d'estimer la fraction de glace contenue dans une goutte en écoulement dans un environnement froid, en utilisant le second rapport de fluorescence R_{31} . Le cas de référence sera toujours le train de gouttes monodispersées. Afin de refroidir davantage les gouttes, et ainsi augmenter la probabilité de solidification de ces dernières, les expériences ont été réalisées avec la hauteur de chute plus importante en utilisant la colonne de 730 mm de hauteur. Pour cette colonne, du fait de la déstabilisation rapide du jet, les gouttes pourront être considérées comme isolées durant une grande partie de leurs trajets dans l'environnement froid, augmentant ainsi leur refroidissement et donc leur probabilité de nucléation. Le jet de gouttes monodispersées a été utilisé avec trois membranes ($D_m = 50 \mu\text{m}$, $D_m = 150 \mu\text{m}$ et $D_m = 200 \mu\text{m}$) donnant lieu à des diamètres de goutte respectif à l'injection approximativement égaux à : $d_{inj} = 95 \mu\text{m}$, $d_{inj} = 285 \mu\text{m}$ et $d_{inj} = 380 \mu\text{m}$. Comme cela a été dit précédemment, il est important de bien choisir le seuil de détection afin de fortement limiter la contribution des gouttes traversant marginalement le volume de mesure et ainsi mesurer le signal de fluorescence de gouttes dont la trajectoire est à peu près centrée sur celui-ci. Malgré la déstabilisation du jet par les forces aérodynamiques, il est possible de faire l'hypothèse que le diamètre des gouttes reste monodispersé. En effet, la possibilité d'une atomisation secondaire, qui se traduirait par une fragmentation des gouttes, peut être estimée par le nombre de Weber aérodynamique définit comme :

$$We = \frac{\rho_{air} v_{inj}^2 d}{\sigma} \quad (4.27)$$

avec ρ_{air} la masse volumique de l'air. Le Tableau 4.2 représente les nombres de Weber aérodynamique pour les diamètres de goutte testés et une vitesse d'air maximale de $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$:

D_m [μm]	d_g [μm]	We
50	95	0,17
150	285	0,5
200	380	0,67

TABLEAU 4.2 – Weber aérodynamique en fonction des tailles de gouttes étudiées

Le nombre de We aérodynamique dans chaque cas est bien inférieur à 1, ce qui permet de négliger l'atomisation secondaire [6]. Ainsi, pour des conditions de fonctionnement données (diamètre de la membrane, pression d'injection, fréquence de la piézocéramique), toutes les gouttes auront même diamètres quelque soit la position dans la colonne.

4.1.4.1 Convergence statistique du rapport R_{31}

Lorsqu'une goutte traverse le volume de mesure, et dont le signal émis est supérieur au seuil de détection, l'ensemble du volume éclairé de la goutte contribue au signal de fluorescence collecté. En conséquence, dans les développements ultérieurs, nous considérerons que le volume éclairé de la goutte contribuant au signal LIF est à peu près identique pour toutes les gouttes d'une même série de mesure. La référence du rapport de fluorescence est mesurée à proximité du point d'injection, dans des conditions isothermes, lorsque les gouttes sont purement liquides. Le nombre de gouttes à traiter pour une mesure donnée est une question cruciale. D'une part, pour avoir une population de gouttes représentative du phénomène étudié, d'autre part pour atteindre la convergence statistique du signal de fluorescence. En ce qui concerne le rapport de fluorescence R_{31} des gouttes individuelles ("traitement 1" équation 4.24), leur distribution a été analysée sur 4000 gouttes injectées dans des conditions isothermes, c'est-à-dire pour des gouttes injectées à température ambiante dans la colonne non refroidie. La Figure 4.12 A) présente l'évolution de l'erreur sur le rapport $\overline{R_{31}}$ moyen en fonction du nombre de gouttes utilisées pour le calcul.

$$\overline{R_{31}} = \frac{\sum_{j=1}^{N_g} I_{f,3,j}}{\sum_{j=1}^{N_g} I_{f,1,j}} \quad (4.28)$$

L'erreur sur l'estimation du rapport d'une goutte individuelle ne dépasse pas les 20% tandis qu'elle est de 3% pour une moyenne réalisée sur une cinquantaine de gouttes, pour converger vers une erreur inférieure à 0,5% à partir de 1000 gouttes. Afin de déterminer le seuil du rapport de fluorescence R_{31} pour lequel il est possible de considérer que les gouttes sont à l'état liquide, il est essentiel de prendre en considération que le rapport de fluorescence déterminé sur une goutte individuelle est connu avec une erreur de l'ordre de 20%.

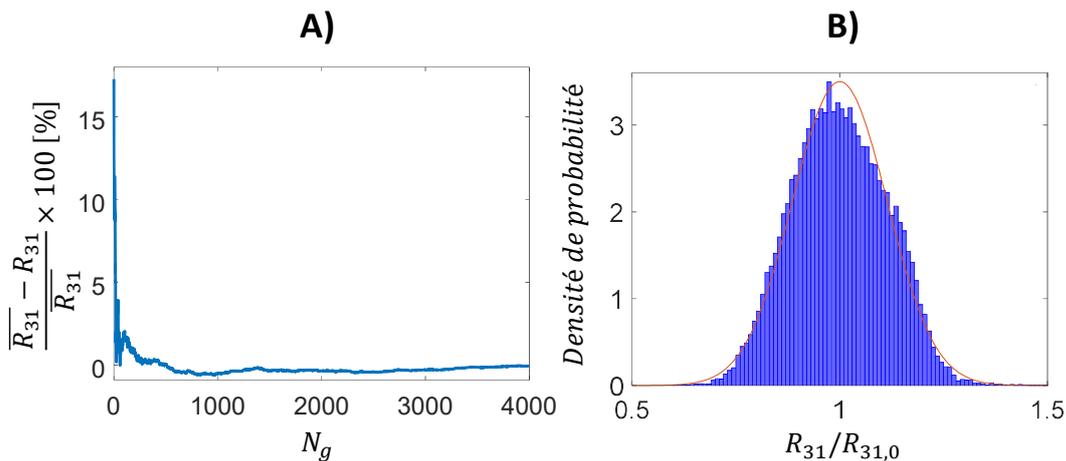


FIGURE 4.12 – A) Convergence du rapport R_{31} en fonction du nombre de goutte. B) Densité de probabilité des rapports de fluorescence R_{31} normalisés par le rapport de fluorescence d'une goutte purement liquide.

4.1.4.2 Détermination des gouttes liquides

La référence $R_{31,0}$ est prise sur des gouttes totalement liquide et on rappelle faut de plus noter que R_{31} est quasi-indépendant de la température. Ainsi, toutes les gouttes liquides vérifient théoriquement $\frac{R_{31}}{R_{31,0}} = 1$ (Figure 3.19). Afin de déterminer la fraction de

gouttes liquide $\frac{N_L}{N_g}$, avec N_L le nombre de gouttes liquides et N_g le nombre total de gouttes détectées, le "traitement 1" est appliqué. En traçant la PDF des données de la Figure 4.12 A) des rapports individuels R_{31} dans le cas de gouttes liquides, et en ajustant les résultats par une loi normal, on trouve un écart type de 0,1 (Figure 4.12 B)) et une moyenne proche de 1. En considérant raisonnablement que les gouttes liquides correspondent à 95% de l'aire sous la courbe, il est possible d'utiliser comme critère de discrimination d'une goutte liquide celles dont le rapport R_{31} normalisé correspond à une valeur de $1 \pm 2 \times 0,1$. Ainsi les gouttes vérifiant $\frac{R_{31}}{R_{31,0}} < 1,2$ seront considérées statistiquement comme liquides alors que les valeurs supérieures à 1,2 correspondront à des gouttes mixtes ou solides.

Pour l'ensemble des expériences qui vont suivre, le nombre de gouttes traitées sera fixé à $N_G = 1000$. L'objectif est, pour les trois membranes différentes ainsi que pour trois températures moyennes d'air étudiées ($\overline{T_{amb}} = -45^\circ\text{C}$, $\overline{T_{amb}} = -34^\circ\text{C}$ et $\overline{T_{amb}} = -25^\circ\text{C}$), d'estimer la proportion de gouttes liquides. Dans le cas d'une température moyenne de l'air de -25°C , le rapport de fluorescence R_{31} indique la présence de plus de 99% de gouttes à l'état liquide. Ainsi, seuls les résultats obtenus pour les deux autres températures seront présentés. La Figure 4.13 présente l'évolution du logarithme de $R_{31}/R_{31,0}$ pour les trois membranes étudiées et pour deux température moyenne de l'air A) $\overline{T_{amb}} = -34^\circ\text{C}$ et B) $\overline{T_{amb}} = -45^\circ\text{C}$. Sont ajoutée sur la Figure 4.13 la fraction des gouttes liquides, et

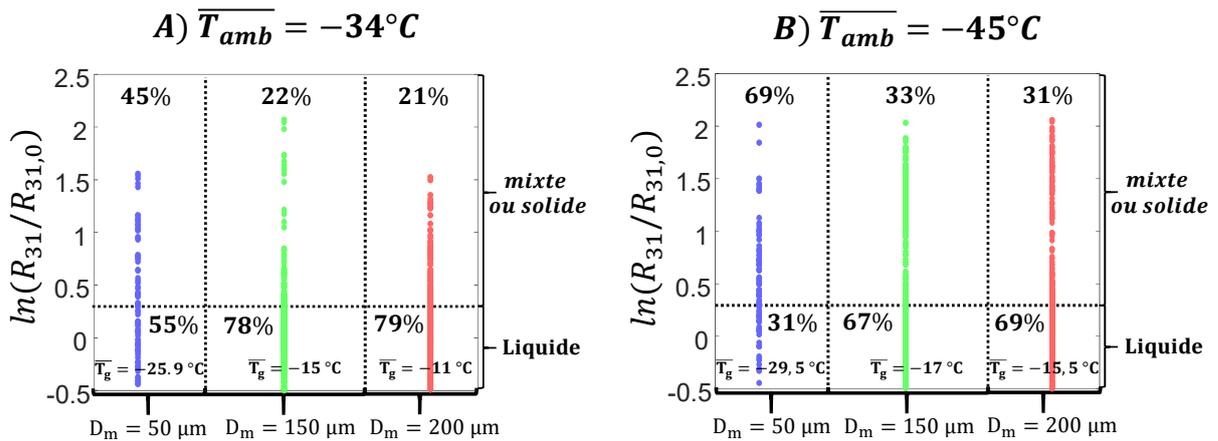


FIGURE 4.13 – Évolution du logarithme du rapport de fluorescence normalisé $R_{31}/R_{31,0}$ pour des membranes de diamètre $D_m = 50 \mu\text{m}$, $D_m = 150 \mu\text{m}$ et $D_m = 200 \mu\text{m}$ pour une température ambiante moyenne de A) -34°C et B) -45°C . Les gouttes sont classées en fonction de leur état : purement liquide ou mixte et solide. Pour chaque classe, est représenté la fraction de gouttes dans un état donné par rapport au nombre de gouttes total. Pour les gouttes purement liquides, la température moyenne $\overline{T_g}$ mesurée par LIF des gouttes est ajoutée.

de celles comportant une phase solide (100% solide ou mixte). Cette fraction correspondant respectivement aux nombres de gouttes ayant un rapport de fluorescence supérieur et inférieur à 1,2 par rapport au nombre de gouttes totale N_G . Le logarithme du rapport de fluorescence a été utilisé du fait de la linéarité entre celui-ci et la fraction de glace contenue dans la goutte (section 3.5.3). Pour une même température ambiante, une augmentation de la fraction de gouttes liquide avec l'augmentation de la taille des gouttes injectées peut être constatée. Par exemple, à -34°C , la fraction de gouttes liquides est de 55% pour une membrane de $50 \mu\text{m}$ tandis qu'elle est de 78% pour une membrane de $150 \mu\text{m}$. Notons, que dans le cas où les gouttes sont totalement liquides, il est possible de déterminer la température moyenne des gouttes ($\overline{T_g}$) à partir du rapport de fluorescence R_{12} . Les gouttes plus petites conduisent à des refroidissements plus importants et sont

davantage affectées par la formation de glace pouvant conduire, soit à des gouttes mixtes, soit à des gouttes 100% solides (équation 2.16). Par ailleurs, l'équation 2.9 a montré que l'augmentation du degré de surfusion implique une augmentation de la probabilité de solidification d'une goutte. Ainsi, la diminution de la température ambiante se caractérise par une diminution de la proportion de gouttes liquides pour chacun des diamètres de gouttes étudiés.

4.1.4.3 Détermination des gouttes solides

L'objectif est maintenant d'estimer le nombre de gouttes complètement solidifiées. Pour cela, en appliquant le "traitement 1", une valeur seuil du rapport de fluorescence normalisé $R_{31}/R_{31,0}$, doit être fixée afin de déterminer si une goutte est complètement solidifiée ou partiellement. Comme nous l'avons déjà vu dans la section 3.5.3, cette valeur seuil peut dépendre de la structure cristalline de la glace et du chemin optique à l'intérieur de la goutte (équation 3.32). La valeur du seuil dépend du diamètre de la goutte, en supposant un processus de cristallisation de la glace similaire pour un même diamètre de membrane. Par conséquent, une valeur du seuil doit être fixée pour chacun des trois diamètres membranes. Le seuil peut être déterminé en se basant sur la fonction de den-

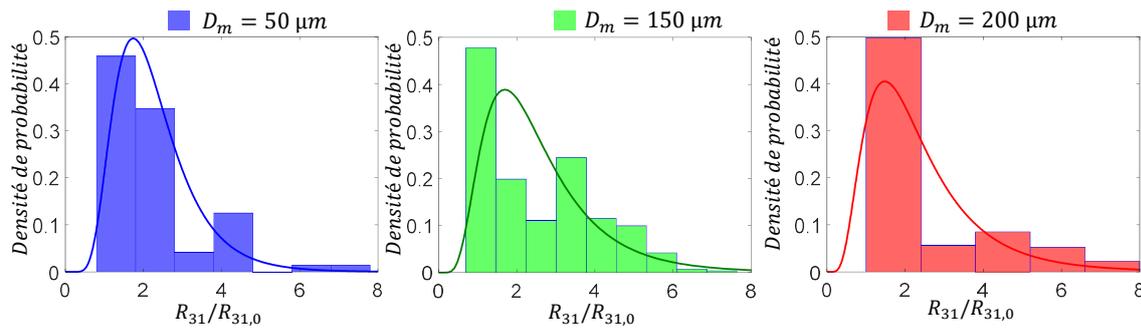


FIGURE 4.14 – Densité de probabilité du rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$, ajusté par une loi log-normale pour les trois diamètres de membranes étudiées à une température moyenne de l'air ambiant de -45 °C .

sité de probabilité (PDF) des rapports de fluorescence normalisés $R_{31}/R_{31,0}$ des gouttes qui ne sont pas purement liquide. Pour cela, les données obtenues à la température la plus basse sont utilisées ($T_{amb} = -45\text{ °C}$). En effet, cela correspond à la probabilité d'avoir des gouttes gelées la plus grande. Les PDF des rapports de fluorescence normalisés sont représentées sur la Figure 4.14 pour chacune des membranes. Ces PDF peuvent être correctement ajustées par une loi du type log-normale de moyenne μ_{ln} et d'écart-type σ_{ln} . Outre l'allure générale, l'ajustement par une fonction log-normale est justifiée par la dépendance logarithmique du rapport R_{31} au principal paramètre qui le détermine, la fraction de glace. Il a été décidé de fixer la valeur seuil S_m à :

$$S_m = \mu_{ln} + \frac{\sigma_{ln}}{2} \quad (4.29)$$

Dans la pratique, les gouttes ayant des rapports de fluorescence individuels $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ supérieurs à S_m seront considérées comme complètement solidifiées. Les paramètres de la loi log-normale ajustés pour chacune des membranes sont donnés dans le Tableau 4.3. Les seuils correspondant aux membranes $D_m = 150\text{ μm}$ et $D_m = 200\text{ μm}$ sont très similaires. En effet, les gouttes sont plus grosses que le diamètre du volume de mesure, le seuil est alors limité par la zone d'intersection entre la goutte et les faisceaux laser.

D_m	μ_{ln}	σ_{ln}	S_m
50 μm	0,74	0,42	0,95
150 μm	0,82	0,52	1.09
200 μm	0,82	0,57	1.11

TABEAU 4.3 – Paramètres de la loi log-normal.

4.1.4.4 Estimation de la fraction de glace dans les gouttes mixtes

Le nombre de gouttes mixtes, définies par le fait qu'elles sont composées d'un mélange liquide/glace, peut être défini par $N_M = N_g - (N_S + N_L)$. La fraction volumique de glace qu'elles contiennent, sera noté χ_{SM} . Dans le cas des gouttes mixtes, le rapport de fluorescence sera calculé en appliquant le "traitement 2", ceci afin d'avoir une valeur moyenne de la fraction de glace contenue dans l'ensemble des gouttes mixtes. Comme $ln\left(\frac{R_{31}}{R_{31,0}}\right)$ est proportionnel à la fraction de glace moyenne dans les gouttes mixte (Figure 3.32), χ_{SM} peut être déterminé par :

$$\chi_{SM} = \frac{ln\left(\frac{R_{31}}{R_{31,0}}\right)}{S_m} \quad (4.30)$$

Son utilisation pour le calcul d'une fraction de glace moyenne est basée sur l'hypothèse, que, statistiquement, toutes les gouttes ont le même diamètre, qu'elles contribuent toutes de manière à peu près équivalente au signal de fluorescence moyen et qu'elles ont toutes la même fraction de glace. L'estimation globale de la fraction de glace sur les gouttes N_g détectées selon les hypothèses précédentes, est finalement donnée par :

$$\chi_S = \frac{\chi_{SM}N_M + N_S}{N_g} \quad (4.31)$$

Le traitement du signal utilisé pour estimer la fraction volumique moyenne solidifiée est résumé sur la Figure 4.15. Les fractions de gouttes purement liquides, de gouttes solides

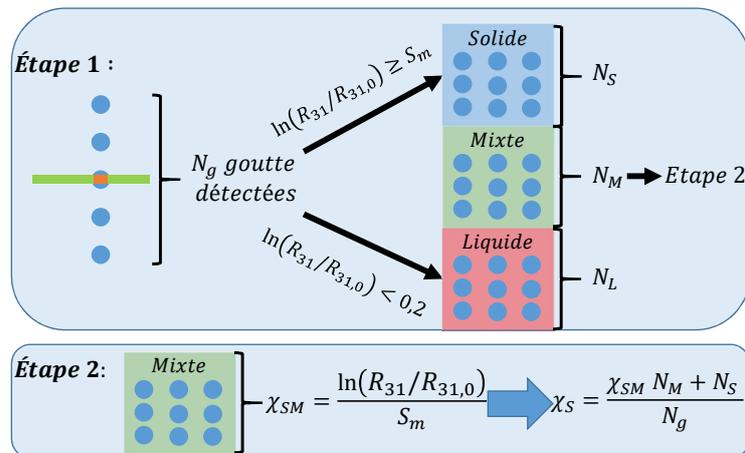


FIGURE 4.15 – Étapes du traitement des données de fluorescence permettant l'estimation de la fraction de glace dans un ensemble de gouttes produites par un injecteur de gouttes monodispersées.

et de gouttes mixtes pour 1000 gouttes acquises sont présentées sur la Figure 4.16 pour les trois membranes et trois températures ambiantes étudiées : A) pour les gouttes purement

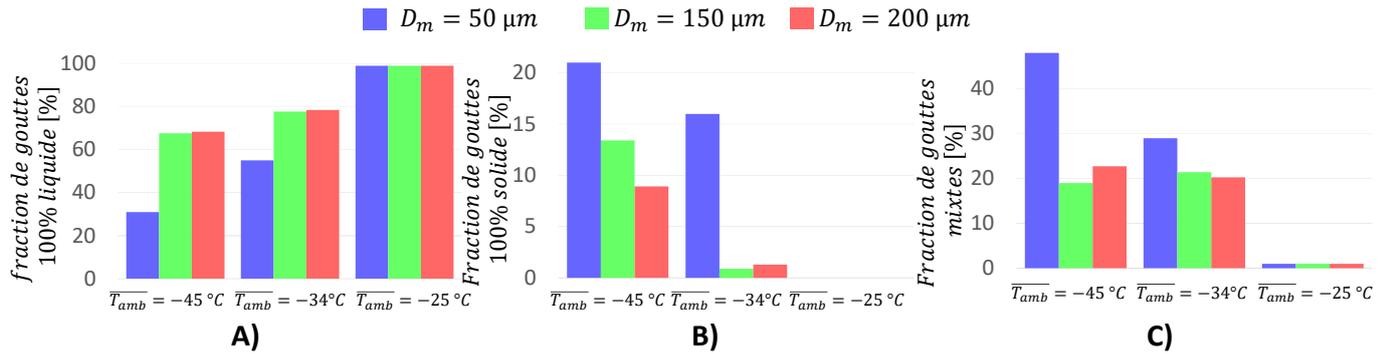


FIGURE 4.16 – Fraction de goutte A) 100% liquide, B) mixte et C) 100% solide pour les différentes températures moyenne de l’air étudiées et pour les différents diamètres de membrane étudiés.

liquides B) pour les gouttes purement solides et C) pour les gouttes mixtes. Comme précisé, pour une température de l’air moyenne de -25°C les gouttes sont principalement liquides. Lorsque la température de l’air diminue, le nombre de gouttes mixtes et solides augmente. En outre, la fraction de gouttes mixtes et solides augmente lorsque le diamètre de la membrane diminue, donc pour des gouttes de plus petit diamètre. Ce qui est particulièrement visible pour les expériences réalisées avec $D_m = 50 \mu\text{m}$. L’estimation de la fraction de glace totale est présentée pour les différentes membranes et températures de l’air sur la Figure 4.17. La fraction de glace est d’autant plus importante que les gouttes sont petites et que la température de l’air est basse, exceptée pour $\overline{T}_{amb} = -25^\circ\text{C}$ où la grande majorité des gouttes restent à l’état surfondu. De plus, la fraction de glace estimée semble proche pour les membranes de $D_m = 150 \mu\text{m}$ et $D_m = 200 \mu\text{m}$, et ce, quelle que soit la température de l’air. Cela est probablement dû à la grande capacité calorifique des gouttes de grand diamètre qui nécessite d’avantages d’énergies pour se refroidir. Par ailleurs, les diamètres de gouttes approximatifs correspondant à ces membranes sont respectivement $d \approx 285 \mu\text{m}$ et $d \approx 380 \mu\text{m}$, tous deux supérieurs au diamètre du volume de mesure, limité par celui du volume de collection au point focal (qui est de $140 \mu\text{m}$). Ainsi, la zone de la goutte contribuant au signal de fluorescence pour ces deux diamètres de gouttes ($d \approx 285 \mu\text{m}$ et $d \approx 380 \mu\text{m}$) est identique.

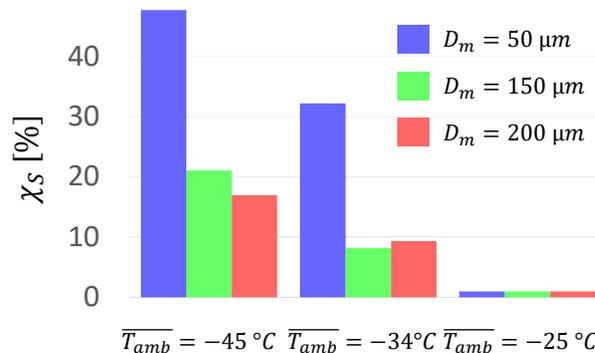


FIGURE 4.17 – Représentation de la fraction de glace χ_s totale pour l’ensemble des conditions testées.

4.2 Mesures dans des conditions givrantes proches de l'environnement aéronautique réel

Dans cette section clôturant le chapitre 4, l'objectif est d'utiliser la technique de LIF3c2d pour la caractérisation de gouttes en conditions aéronautiques givrantes. L'intérêt est de tester la nouvelle chaîne LIF en conditions extrêmes et également de pouvoir apporter quelques éléments de réponse sur la représentativité des conditions givrantes reproduites par une soufflerie givrante dans le cas de SLD. Rappelons qu'une SLD représente une goutte ayant un diamètre supérieur à $50 \mu\text{m}$. Pour cela, des mesures ont été réalisées sur le site de la DGA Essais-Propulseurs à Saclay. Nous commencerons tout d'abord par une présentation de la soufflerie givrante ainsi qu'aux modifications apportées à la chaîne LIF afin de s'adapter notamment aux hautes vitesses de gouttes pouvant être supérieures à 100 m.s^{-1} . L'étude portera sur l'influence de nombreux paramètres sur la température des gouttes : diamètre moyens des gouttes, température de l'air ambiant, vitesse de l'écoulement d'air ou encore hygrométrie dans la soufflerie. L'étude du rapport de fluorescence R_{31} permettra d'étudier l'évolution de la présence de gouttes solides dans la soufflerie durant une séquence dite de givrage.

4.2.1 Dispositif expérimental : le Petit Anneau Givrant (PAG)

La technique de LIF3c2d a été utilisée dans une soufflerie givrante (IWT) du centre français DGA Essais Propulseurs. La Figure 4.18 présente une vue d'ensemble de la soufflerie, à recirculation, dénommée Petit Anneau Givrant (PAG). La section de la veine d'essais est de $250 \times 250 \text{ mm}^2$ pour une longueur totale de 1000 mm avec une vitesse maximale de l'écoulement d'air v_{air} de 220 m.s^{-1} , ce qui correspond à un nombre de Mach maximal atteignable de 0,7. Deux systèmes interchangeables composés de plusieurs injecteurs permettent de générer des nuages de gouttes ayant un diamètre volumique médian (DVM) variant de 15 à $200 \mu\text{m}$ avec une teneur en eau liquide (LWC) variant de $0,15 \text{ g/cm}^3$ à 4 g/cm^3 . Ces injecteurs sont situés en amont du convergent de la soufflerie afin

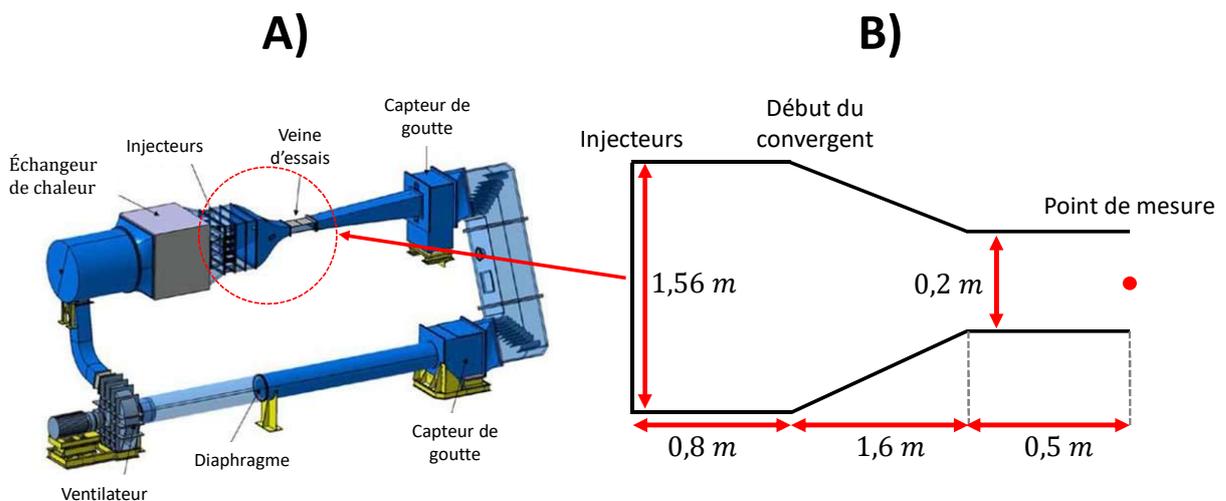


FIGURE 4.18 – A) schéma du Petit Anneau Givrant (PAG) de la DGA Essais propulseurs. B) schéma du convergent et de la veine d'essais.

d'accélérer les gouttes jusqu'à l'entrée de la section d'essai. Les injecteurs sont alimentés avec de l'eau stockée dans un réservoir situé à l'extérieur et à proximité de la soufflerie. Le

liquide arrivant dans les injecteurs n'est pas contrôlé en température mais la température d'injection T_{inj} peut être mesurée au moyen de thermocouples insérés dans les injecteurs. Selon les conditions expérimentales, c'est-à-dire les valeurs de v_{air} , LWC et DVM, la température totale (génératrice) minimale de l'air T_{totale} qui en résulte est de -40 °C.

L'humidité relative Hr du flux d'air peut également être contrôlée avec précision. La chaîne de mesure LIF, telle que décrite sur la Figure 3.15, est mise en place autour de la section d'essai (Figure 4.19). La distance focale de la sonde d'émission LDV est toujours $f = 500$ mm tandis que la sonde de collection du signal de fluorescence est équipée d'une focale de 300 mm pour pouvoir accéder au centre de la veine. Il en résulte, un volume de collection du signal de fluorescence de $210 \times 210 \times 2800 \mu m^3$. Cependant, les vitesses des gouttes dans la soufflerie sont environ dix fois supérieures à celles rencontrées lors des expériences menées sur le jet de gouttes monodispersées. Une nouvelle carte d'ac-

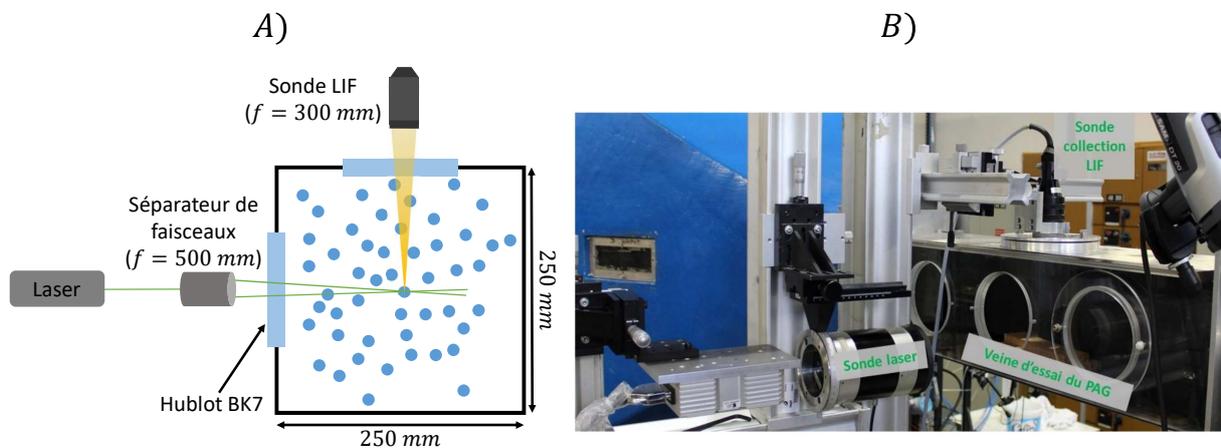


FIGURE 4.19 – A) Schéma du dispositif optique utilisé pour la caractérisation de goutte évoluant dans une soufflerie givrante; B) Photographie du dispositif optique placé autour de la veine d'essais du PAG.

quisition, dotée d'une fréquence d'échantillonnage plus grande de 80 MHz, a été intégrée à la chaîne de mesure afin d'obtenir un minimum de $N_{pt} = 80$ échantillons par goutte détectée :

$$N_{pt} = \frac{d_{\lambda}}{v_{air}} F_e = 93 \quad (4.32)$$

avec $d_{\lambda} = 210 \mu m$ le diamètre du volume de mesure, $v_{air} = 180 m.s^{-1}$ la vitesse maximale de l'air étudié et $F_e = 80$ Mhz la fréquence d'échantillonnage.

Lors de cette campagne de mesure, toutes les mesures de LIF ont été effectuées uniquement au centre de la section d'essai et à une distance de 2,9 m des injecteurs de gouttes (Figure 4.18 B). En outre, il est important de mentionner que les trajectoires suivies par les gouttes depuis les injecteurs jusqu'au point de mesure demeurent inconnues. Les diamètres volumiques moyens en sortie de convergent ont été caractérisés au préalable par la DGA. Les données expérimentales fournies par la DGA sont ajustées par une loi normal et les résultats de cette ajustement sont données dans le Tableau 4.4.

DVM [μm]	Moyenne [μm]	Écart-type [μm]	d_{max} [μm]
50	40,6	24,7	137,5
100	80,32	39,44	187,5
200	172,4	45,8	262,5

TABLEAU 4.4 – Caractérisation de la granulométrie des injecteurs utilisées dans la soufflerie givrante DGA. Les données sont obtenues à partir de celles fournies par la DGA en considérant une loi normal.

Ces mesures sont réalisées en veine ouverte pour une vitesse d'air de 80 m.s^{-1} . Dans le cas de notre campagne de mesures, les vitesses d'air étudiées seront plus importantes. Nous verrons ultérieurement que des phénomènes de fragmentation secondaire peuvent apparaître. Néanmoins, plus de 90% des gouttes injectées pourront être considérées comme des SLD ($d_g > 50 \mu\text{m}$).

4.2.2 Mesure de la température des gouttes

4.2.2.1 Influence de la température de l'écoulement d'air

Nous allons tout d'abord nous intéresser à l'évolution de la température moyenne de gouttes mesurées dans le PAG en fonction de la température statique de l'air. Afin de garantir la convergence statistique du rapport de fluorescence R_{12} le rapport de fluorescence moyen est calculé sur 10000 gouttes en utilisant le "traitement 2". Afin de déterminer l'effet de la température de l'air sur celle des gouttes, les mesures ont été réalisées pour un DVM d'injection de $200 \mu\text{m}$, une température d'injection de $17 \text{ }^\circ\text{C}$, une vitesse d'air de 100 m.s^{-1} , une hygrométrie relative de 100% et une teneur en eau (LWC) de 2 g.m^{-3} . La Figure 4.20 décrit l'évolution de la température des gouttes T_g mesurée par LIF en fonction de la température statique de l'air T_{stat} . La ligne en pointillé noire représente le cas idéal pour lequel les gouttes seraient à l'équilibre thermique avec le flux d'air. En l'absence de mesure de la vitesse des gouttes au point de mesure, nous considérerons que les gouttes sont à la même vitesse que celle de l'écoulement d'air, ce qui signifie l'égalité entre la température statique et la température totale, vue par les gouttes. Les gouttes sont

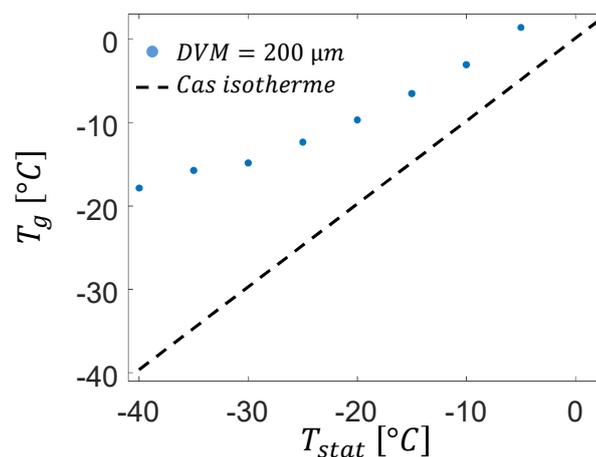


FIGURE 4.20 – Évolution de la température de goutte T_g mesuré par LIF pour un diamètre volumique moyen d'injection de $200 \mu\text{m}$, une température d'injection de $17 \text{ }^\circ\text{C}$, une vitesse d'air de 100 m.s^{-1} en fonction de la température statique de l'écoulement d'air. Les traits en pointillés correspondent au cas d'une goutte à l'équilibre thermique avec l'air.

toujours à une température supérieure à la température statique de l'écoulement, différence d'autant plus marquée que la température de l'air est faible. Il semble donc que les gouttes de type SLD (diamètre d'injection supérieur à $50 \mu\text{m}$) ne soient pas à l'équilibre thermique avec la phase porteuse. Ce constat est partagé avec une autre étude, réalisée dans la même soufflerie givrante avec des mesures de réfractométrie d'arc-en-ciel (AEC)

effectuées par Saengkaew et al [13] pour des gouttes dont le DVM était de 40 μm et 20 μm , la température totale de l'air étant fixée à $-25\text{ }^\circ\text{C}$ et la vitesse de l'air à $150\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Les mesures par AEC ont permis de montrer que la température des gouttes passe d'une température de $+5\text{ }^\circ\text{C}$ pour un DVM de 40 μm à une température de $-25\text{ }^\circ\text{C}$ pour un DVM de 20 μm . Bien que la température des gouttes de 40 μm soit encore sujette à discussion, il semble pertinent que la taille de la goutte influence sa température. Ainsi, en conclusion de ces résultats, et des études précédentes menées par AEC [13], il semble donc que la soufflerie ne permette pas d'assurer l'équilibre thermique des gouttes avec l'air ambiant dans le cas d'un DVM d'injection supérieur ou égale à 40 μm .

4.2.2.2 Influence de la vitesse de l'air

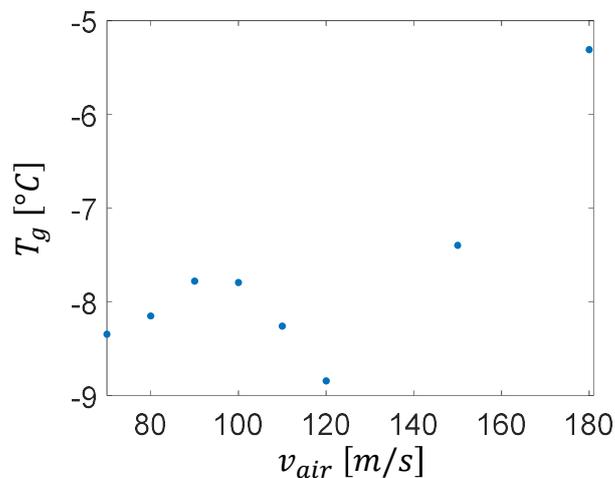


FIGURE 4.21 – Évolution de la température de goutte T_g en fonction de la vitesse de l'air v_{air} pour une température totale d'air de $-20\text{ }^\circ\text{C}$ et un diamètre volumique moyen (DVM) de 100 μm .

L'influence de la vitesse de l'air sur la température des gouttes est également analysée. Pour cela, des expériences ont été conduites pour des vitesses d'air variant de $70\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ à $180\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ tout en maintenant les autres conditions d'injections suivantes constante : DVM de 100 μm , une teneur en eau LWC de $2\text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$, une température totale de l'air de $-20\text{ }^\circ\text{C}$ (la température statique variant quant à elle avec la vitesse de l'air) et une température d'injection des gouttes de $13,6\text{ }^\circ\text{C}$. La Figure 4.21 présente l'évolution de la température des gouttes en fonction de la vitesse de l'air.

Une augmentation globale de la température des gouttes avec l'augmentation de la vitesse de l'air peut être observée. Cette augmentation de la température des gouttes avec la vitesse de l'air peut être interprétée par un temps de vol plus faible entre l'injection et le point de mesure. Toutefois, le comportement non-monotone de la température des gouttes avec la vitesse de l'air, notamment la chute entre $80\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $120\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, reste plus difficile à interpréter. Une interprétation consisterait à mettre en avant la compétition entre la diminution du temps de vol et une augmentation du coefficient d'échange de chaleur entre l'air et la goutte quand la vitesse augmente. Il est aussi possible que de l'atomisation secondaire puisse apparaître à haute vitesse. La Figure 4.22 représente l'évolution du nombre de Weber aérodynamique (équation 4.27) en fonction de la vitesse de l'air pour un diamètre de goutte de 100 μm . Ce diamètre correspond au cas le moins favorable des cas étudiés pour l'apparition du phénomène d'atomisation secondaire (diamètre le plus faible). D'après [6], il a été montré que pour des We supérieurs à 12 le phénomène d'atomisation secondaire pouvait apparaître. Ainsi, l'atomisation secondaire peu

être suspectée. Il est donc particulièrement complexe d’interpréter les mesures actuelles en ne connaissant pas la distribution en taille des gouttes au point de mesure. Cette ten-

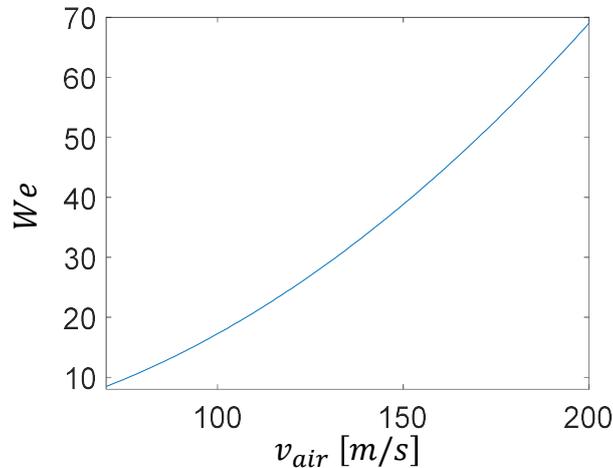


FIGURE 4.22 – Évolution du nombre de Weber aérodynamique en fonction de la vitesse de l’air pour un diamètre de goutte de 100 μm

dance globale de l’augmentation de la température des gouttes avec la vitesse a également été observée par [13] dans le cas de goutte de 20 μm pour une vitesse passant de 150 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ à une vitesse de 200 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Une augmentation de l’ordre de 10 °C avait été observée pour cette variation de vitesse, ce qui est cohérent avec les données obtenues par LIF.

Les résultats obtenus à l’aide de la mesure de température par LIF, confirmée par des mesures précédentes réalisée par AEC, permettent donc de mettre en évidence qu’il est difficile d’assurer la représentativité des conditions givrantes reproduites dans la soufflerie, notamment lorsque la vitesse de l’air est modifiée. En effet, afin de pouvoir garantir une parfaite représentativité des conditions d’essais, il est nécessaire de garantir l’équilibre thermique entre la goutte et la phase porteuse, quelles que soient les conditions d’injections, comme c’est le cas dans l’atmosphère.

4.2.2.3 Influence de l’hygrométrie de l’air dans la veine d’essais

Il est possible, au sein de la veine d’essais, de contrôler l’humidité relative de l’air afin de mettre en évidence son influence sur la température des gouttes. Ainsi, des mesures ont été réalisées pour une humidité relative de l’air de 40% et de 100% et une température d’injection des gouttes de 13,6 °C. L’intérêt est de pouvoir comparer un cas où l’évaporation de la goutte est quasi nulle ($H_r = 100\%$) avec un cas où l’évaporation est favorisée ($H_r = 40\%$). Le Tableau 4.23 présente les résultats de la mesure de la températures des gouttes en fonctions de l’humidité relative dans la veine d’essais, pour un DVM de 100 μm , une vitesse de l’air de 100 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et une température statique de -24 °C.

	T_g [°C]
$H_r = 40\%$	-8,3
$H_r = 100\%$	-5,1

TABLEAU 4.5 – Évolution de la température des gouttes T_g en fonction de l’humidité relative de l’air pour un diamètre volumique moyen (DVM) de 100 μm , une vitesse d’air de 100 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et une température statique de l’air de -24 °C.

Une augmentation de la température des gouttes avec l'humidité relative peut être observée. Cette augmentation se caractérise par une diminution de l'évaporation des gouttes. Des résultats à haut taux d'humidité ($H_r = 100\%$, $H_r = 150\%$ et $H_r = 200\%$) ont mis en évidence l'indépendance de la température des gouttes (mesurée par AEC) avec l'humidité relative dans la soufflerie [13].

4.2.2.4 Influence de la teneur en eau (LWC) et du DVM

L'effet de la teneur en eau (LWC) dans la veine d'essais a aussi été évalué pour 2 g.cm^{-3} et 4 g.cm^{-3} . La Figure 4.23 présente l'évolution de la température des gouttes en fonction de la teneur en eau (LWC) pour deux diamètres volumiques moyen, pour une température statique $T_{stat} = -39 \text{ °C}$ et une vitesse d'air de $v_{air} = 100 \text{ m.s}^{-1}$. Une augmentation

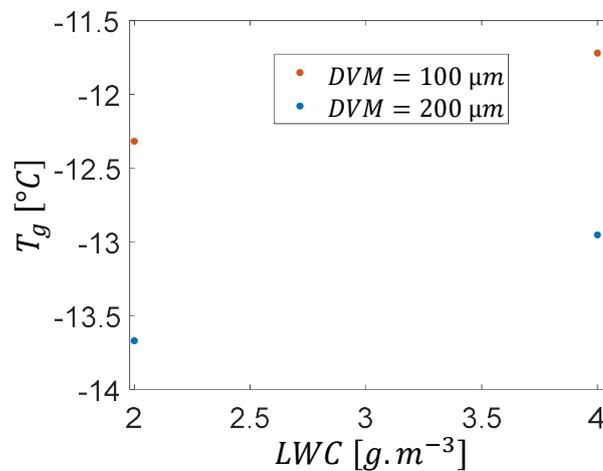


FIGURE 4.23 – Évolution de la température de goutte T_g en fonction de la teneur en eau (LWC) pour un diamètre volumique moyen de $100 \mu\text{m}$ et $200 \mu\text{m}$, une vitesse d'air de 100 m.s^{-1} et une température statique de l'air de -39 °C .

de la température des gouttes avec la teneur en eau est observée. Ceci peut être due à une augmentation de l'interaction entre les gouttes. L'augmentation de la teneur en eau provoque l'accroissement de la concentration en gouttes et ainsi à une augmentation des effets d'interaction entre les gouttes qui se caractérise par une diminution des échanges entre les gouttes et l'environnement ambiant.

Il est important de noter que la température des gouttes présentant un DVM de $200 \mu\text{m}$ apparaît plus faible que pour celles présentant un DVM de $100 \mu\text{m}$. Les gouttes ayant un DVM plus important sont plus capacitatives que celles ayant un DVM moins important. Le refroidissement des gouttes devrait donc être plus efficace pour des DVM plus faibles. Malheureusement, les mesures semblent nous montrer le contraire. Différentes hypothèses pour expliquer ce phénomène peuvent être mentionnées sans pour autant être vérifiable :

1. La constante de temps dynamique des gouttes (t_{dyn}) définit par :

$$t_{dyn} = \frac{\rho_L d_g^2}{18 \mu_g} \frac{24}{C_D Re_p} \quad (4.33)$$

avec ρ_L la masse volumique de l'eau, d_g le diamètre de la goutte, μ_g la viscosité dynamique de l'air et C_d le coefficient de traînée. Au vue des vitesses étudiées, le nombre de Re est inférieur à 10^3 , afin de modéliser le coefficient de traînée la relation de H.S. Allen est utilisée :

$$C_D = \frac{18,5}{Re^{0,6}} \quad (4.34)$$

Cela signifie qu'une goutte au repos aura atteint 63% de la vitesse de la phase porteuse à l'instant t_{dyn} . Pour un diamètre moyen de 80,32 μm et 172,4 μm , représentatif de la taille moyenne des gouttes pour les DVM de 100 μm et 200 μm , les constantes de temps dynamique sont respectivement de $1,7 \times 10^{-3}$ s et de $5,9 \times 10^{-3}$ s pour une vitesse de l'air de 100 m.s^{-1} . Les gouttes sont accélérées dans le convergent et au vue des valeurs des constantes de temps dynamiques, il semble que les gouttes présentant un diamètre plus grands se trouvent à une vitesse relative par rapport à l'air plus importante. Cela signifie que le coefficient d'échange thermique entre la goutte et l'environnement serait bien plus élevé pour les gouttes plus grosse.

2. Pour rappel, la caractérisation de la taille des gouttes n'a été réalisés qu'en veine ouverte pour une vitesse d'air de 80 m.s^{-1} . Il semble évident que pour des vitesses d'air plus importantes, un phénomène d'atomisation secondaire peut exister. Ce phénomène est gouverné par le nombre de We aérodynamique qui est proportionnelle à la taille des particules. Dans le cas des DVM d'injection plus importants, le nombre de Weber aérodynamique des gouttes de grand diamètre est plus important. Cela pourrait donc se traduire par une taille de goutte plus faibles pour les DVM d'injection de grand diamètre au point de mesure.

En conclusion, les résultats obtenus par LIF sur la température de gouttes liquides surfondues dans le PAG sont très intéressants. Mais ceux-ci restent difficilement interprétables en l'absence d'une connaissance plus fine des distributions granulométriques et de vitesse des gouttes au point de mesure. Des mesures couplées LIF/PDA telles que pratiquées dans [7] permettraient très certainement d'affiner la compréhension des couplages entre aérodynamique et transferts thermiques.

L'ensemble des expériences menées précédemment dans la soufflerie, comporte essentiellement des gouttes à l'état liquide. Il est maintenant intéressant d'étudier la fraction de gouttes solides présentes dans le PAG pour une séquence de givrage.

4.2.3 Étude d'un cycle de givrage

Lors d'une dernière expérience, le second rapport de fluorescence R_{31} a été utilisé pour analyser le changement de phase de gouttes surfondues pendant un cycle dit de givrage. Pour cela, des injecteurs permettant la génération de petites gouttes ($d_g < 40 \mu\text{m}$) ont été utilisées. Afin de générer des cristaux de glace, le point de fonctionnement du PAG est modifié en augmentant soudainement la pression d'injection du liquide. Cette augmentation de la pression se caractérise par une diminution brutale de taille des goutte (non caractérisé ici) et par la génération de cristaux de glace dans la soufflerie. Par conséquent, les gouttes détectées au point de mesure sont, d'après des mesures préalablement réalisées à la DGA, totalement solidifiées. L'objectif ici est d'observer et d'analyser cette phase à l'aide de la technique LIF. Du fait des petits diamètres mis en jeu, il a été nécessaire d'augmenter la concentration des colorants fluorescents d'un facteur 4 afin d'obtenir un signal de fluorescence. L'accroissement concomitant des phénomènes d'absorption du rayonnement laser et de réabsorption de la fluorescence peuvent devenir importants, mais cela n'a aucune conséquence sur la détection du changement de phase à l'aide du rapport R_{31} de fluorescence.

La phase de givrage est illustrée en Figure 4.24 où l'évolution du rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ est donné en fonction du temps. Notons que la référence $R_{31,0}$ est mesurée au point de mesure avant le déclenchement du cycle de givrage, le rapport correspond donc à celui de gouttes purement liquides. Le changement de phase commence à $t = 25$

s où l'on observe une forte augmentation du rapport $R_{31}/R_{31,0}$. De $t = 45$ s à $t = 100$ s, le rapport de fluorescence reste globalement stable ce qui signifie que les gouttes détectées sont pour la plupart solides [13]. La valeur maximale de $\ln(R_{31}/R_{31,0})$ est de 2,25 pour

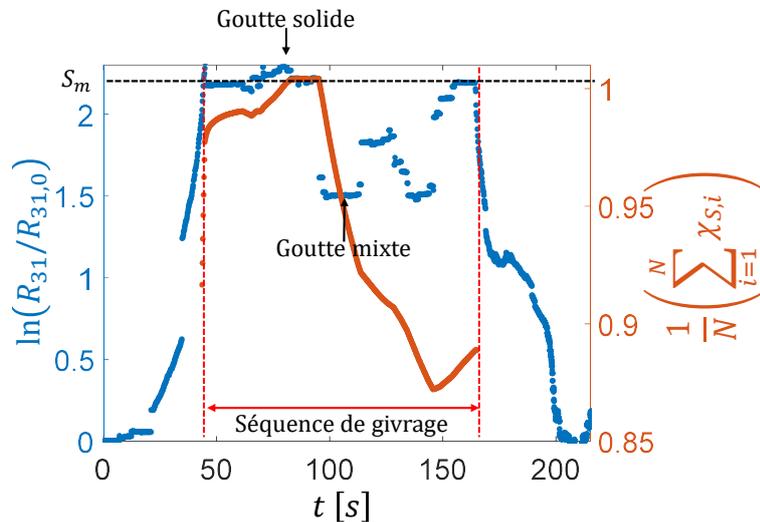


FIGURE 4.24 – Évolution du rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ en fonction du temps pour un cycle de givrage et de la fraction de glace estimée cumulée durant la séquence de givrage

les gouttes majoritairement solides au cours de cette expérience, valeurs largement supérieure à celle observé sur le train de gouttes monodispersés (Section 4.3). Cette différence est liée à l'augmentation de la concentration des colorants qui modifient aussi le chemin optique effectifs (équation 3.32). Ensuite, entre $t = 100$ s et $t = 160$ s, une forte fluctuation du rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ est observée. Elle est attribuée à un comportement non contrôlé des injecteurs. Néanmoins, ce comportement se traduit par une quantité plus élevée de gouttes partiellement solidifiées. Enfin, lorsque la phase de givrage est arrêtée (à $t = 160$ s), en diminuant la pression d'injection de l'eau dans les injecteurs, le rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ diminue jusqu'à $t = 200$ s où des gouttes surfondues réapparaissent, conduisant à un rapport de fluorescence qui s'approche de 1. Là encore, une nouvelle fluctuation se produit en fin de séquence. Les nouvelles conditions d'injection ne sont sans doute pas encore totalement établies. Au vue du rapport $R_{31}/R_{31,0}$ observé durant la séquence de gel (c'est-à-dire entre $t = 45$ s et $t = 160$ s), il est possible d'estimer la proportion des gouttes purement liquides. Comme précédemment, une goutte est considérée purement liquide dès lors que le rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ est inférieur à 1,2. Durant la séquence de givrage, le rapport de fluorescence $R_{31}/R_{31,0}$ est toujours supérieur à 1,2, ce qui signifie que la proportion de goutte purement liquide est nulle. Enfin, il est possible d'estimer la proportion d'eau solide pendant la phase de givrage selon le même traitement de données que celui présenté sur la Figure 4.15. Le seuil S_m de l'équation 4.30 est donc pris égale à 2.2. Durant cette séquence de gel, la fraction de goutte purement solide est estimée à 55%. Ce qui signifie, que la proportion de goutte mixte (i.e. liquide/solide) est de 45%. Enfin, comme précédemment en se servant de la linéarité du logarithme du rapport de fluorescence avec la fraction de glace, il est possible d'estimer la fraction de glace volumique moyenne durant la séquence de gel. Elle est ici estimée à 88%. Les données des fractions de gouttes liquides, mixtes, solides et de la fraction volumique moyenne de glace sont résumés dans le Tableau 4.6 :

<i>Fraction de gouttes 100% liquides</i>	0%
<i>Fraction de gouttes mixtes</i>	45%
<i>Fraction de gouttes 100% solides</i>	55%
<i>Fraction volumique moyenne de glace</i>	88%

TABLEAU 4.6 – Caractérisation de la granulométrie des injecteurs utilisées dans la soufflerie givrante DGA.

Pour terminer, il est possible de déterminer l'évolution de la fraction de glace au cours du temps durant la séquence de givrage. La Figure 4.24 représente dans l'axe de droite l'évolution de la fraction de glace moyenne cumulée au cours du temps. On observe que cette fraction de glace cumulée est maximum au début de séquence de gel et qu'elle décroît au cours du temps du fait de l'apparition de gouttes mixtes dans la veine d'essais.

4.3 Conclusion du chapitre

La technique de mesure de LIF3c2d a tout d'abord été utilisée pour la caractérisation de gouttes évoluant dans un environnement froid à faible vitesse. L'étude d'un train de gouttes monodispersées a permis de tester la mesure de température de gouttes surfondues et de les comparer avec un modèle de transfert thermique permettant de prendre en compte l'effet de l'interaction entre les gouttes. Ensuite, la technique de mesure a été testée pour estimer la fraction de glace dans une population de gouttes évoluant dans un environnement froid. La technique de mesure a ensuite été utilisée pour la caractérisation de gouttes en conditions givrantes proches de celles rencontrées en aéronautique. L'objectif a été de tester la nouvelle chaîne LIF3c2d dans ces conditions et également de pouvoir apporter quelques éléments de réponse sur la représentativité des conditions givrantes reproduites par une soufflerie givrante dans le cas de SLD (diamètre des gouttes supérieures à 50 μm). Les mesures ont été réalisées sur le site de la DGA Essais-Propulseurs à Saclay dans une soufflerie à recirculation nommée Petit Anneau Givrant (PAG). Les mesures de LIF3c2d ont permis d'analyser l'influence de la température de l'air, de la vitesse de l'écoulement, de l'humidité relative, de la teneur en eau et de la taille des gouttes sur la température des gouttes. Il a ainsi été possible de montrer la difficulté d'obtenir des conditions givrantes représentatives de celles rencontrées dans l'atmosphère dans le cas de SLD à l'équilibre thermodynamique avec la phase porteuse. Notamment, l'influence de la vitesse des gouttes, de l'humidité, de la teneur en eau et de la vitesse de l'écoulement sur les conditions obtenues dans la veine d'essais en termes de température de gouttes. Par ailleurs, il a été possible de déterminer la fraction de glace en temps réel lors d'un cycle de givrage, ce qui est particulièrement nouveau et utile pour la caractérisation des conditions créées dans une soufflerie.

4.4 Références

- [1] B. Abramzon and W. Sirignano. Droplet vaporization model for spray combustion calculations. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 32(9) :1605–1618, 1989. 104
- [2] G. Castanet, L. Perrin, O. Caballina, and F. Lemoine. Evaporation of closely-spaced interacting droplets arranged in a single row. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 93 :788–802, 2016. XVIII, 110

- [3] V. Deprédurand. *Approche expérimentale de l'évaporation de sprays de combustibles multicomposant*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009. [109](#)
- [4] V. Deprédurand, P. Miron, A. Labergue, M. Wolff, G. Castanet, and F. Lemoine. A temperature-sensitive tracer suitable for two-colour laser-induced fluorescence thermometry applied to evaporating fuel droplets. *Measurement Science and Technology*, 19(10) :105403, 2008. [110](#)
- [5] C. J. Hickey, R. Raspet, and W. V. Slaton. Effects of thermal diffusion on sound attenuation in evaporating and condensing gas-vapor mixtures in tubes. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 107(3) :1126–1130, 2000. [109](#)
- [6] M. Jain, R. S. Prakash, G. Tomar, and R. Ravikrishna. Secondary breakup of a drop at moderate weber numbers. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 471(2177) :20140930, 2015. [111](#), [120](#)
- [7] A. Labergue, J.-D. Pena-Carillo, M. Gradeck, and F. Lemoine. Combined three-color {LIF}-{PDA} measurements and infrared thermography applied to the study of the spray impingement on a heated surface above the {Leidenfrost} regime. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 104 :1008–1021, 2017. [123](#)
- [8] S. Optique and J. J. Kielar. THÈSE interférométrique pour les applications aéroporées Présentée et soutenue par. 2016. [99](#)
- [9] L. Perrin. Etude expérimentale de l' évaporation à haute température de gouttes de combustible en régime de fortes interactions à l' aide de méthodes optiques. 2014. [108](#), [110](#)
- [10] L. Perrin, G. Castanet, and F. Lemoine. Characterization of the evaporation of interacting droplets using combined optical techniques. *Experiments in Fluids*, 56(2), 2015. [109](#)
- [11] S. Prakash and W. Sirignano. Theory of convective droplet vaporization with unsteady heat transfer in the circulating liquid phase. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 23(3) :253–268, 1980. [104](#)
- [12] W. Ranz, W. R. Marshall, et al. Evaporation from drops. *Chem. eng. prog*, 48(3) :141–146, 1952. [104](#)
- [13] S. Saengkaew, G. Godard, and G. Grehan. Global Rainbow Technique : Temperature evolution measurements of super-cold droplets. *ICLASS 2018, 14 th Triennial International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Chicago, IL, USA, July 22-26, 2018*, pages 1–7, 2018. [120](#), [121](#), [122](#), [124](#)
- [14] S. E. Wood, M. B. Baker, and B. D. Swanson. Instrument for studies of homogeneous and heterogeneous ice nucleation in free-falling supercooled water droplets. *Review of Scientific Instruments*, 73(11) :3988–3996, 2002. [99](#)

Chapitre 5

Solidification d'une goutte impactant une paroi sous-refroidie

Sommaire

5.1 Dispositif expérimental	129
5.1.1 Impact de gouttes sur paroi sous-refroidie	129
5.1.2 Montage optique	130
5.1.3 Contrôle de l'humidité	132
5.2 Caractérisation dynamique de la morphologie du front de glace par PLIF rapide	133
5.2.1 Mesure de l'épaisseur liquide	134
5.2.2 Traitement des images	135
5.2.3 Reconstruction du front de glace	137
5.3 Étude de la solidification d'une goutte sans phénomène de surfusion . .	138
5.3.1 Modélisation de la solidification d'une goutte	139
5.3.1.1 Le problème de Stefan 1D à deux phases	139
5.3.1.2 Simulation numérique du problème de solidification à deux dimensions	140
5.3.1.3 Couplage thermique entre le substrat et la goutte	143
5.3.2 Solidification d'une goutte impactant un substrat de conductivité thermique élevée	145
5.3.3 Solidification d'une goutte impactant une paroi de faible conductivité thermique	150
5.3.4 Étude de la formation de la pointe	152
5.4 Étude de la solidification d'une goutte avec phénomène de surfusion . .	154
5.4.1 Modélisation de la solidification	154
5.4.1.1 Solidification d'un liquide complètement surfondu avant solidification	155
5.4.1.2 Solidification d'un liquide partiellement surfondu	160
5.4.2 Solidification d'une goutte impactant une paroi en Duraluminium	164
5.4.2.1 Comparaisons des temps de solidification expérimentaux et numérique	164
5.4.2.2 Dynamique du front de solidification	165
5.4.2.3 Étude de la formation de la pointe	167
5.5 Conclusions du chapitre	168
5.6 Références	170

Introduction

Les phénomènes de givrage qui se produisent sur les avions en vol constituent un danger majeur dans l'aéronautique. L'accumulation de glace est causée par l'impact et la solidification de gouttes d'eau surfondues à la surface de l'avion. Les problèmes de sécurité qui en résultent sont majeurs : visibilité réduite, blocage des tubes de Pitot et réduction des performances de vol par modification des performances aérodynamiques. Étant donnée l'importance de cette question, des études sur le givrage de gouttes sont entreprises pour approfondir la compréhension des mécanismes de solidification. Différentes études ont été menées pour contribuer à l'identification des facteurs jouant un rôle dans le processus de solidification, comme la température de la surface impactée [9], la taille des gouttes [8], la rugosité et la mouillabilité de la surface [7] [19], l'angle entre la surface et le vecteur vitesse de la goutte impactante [10]. En outre, une part importante des recherches actuelles visent à développer des surfaces innovantes permettant de réduire suffisamment l'adhésion de la goutte et ainsi diminuer le givrage sur le substrat [22]. La modélisation de la solidification d'une goutte impactant une surface sous-refroidie reste très difficile en raison de la complexité inhérente à l'obtention de données fiables et quantitatives sur la fraction de glace, la forme et la position du front de glace dans une goutte à partir d'expériences représentatives. Fondamentalement, la solidification d'une goutte surfondues peut être divisée en deux phases. Une phase de recalescence et une phase d'évolution d'un front de solidification planaire ou sphérique. Récemment, une nouvelle technique optique basée sur la réflexion interne totale [11] a été utilisée pour la détection directe de sites de nucléation lors d'un impact de goutte. Il a été mis en évidence certains des mécanismes d'interaction entre l'impact des gouttes et le changement de phase. Par exemple, elle a révélé que la morphologie de la solidification peut être modifiée de façon spectaculaire en raison de l'advection des cristaux de glace, du centre vers le bord de la goutte, en conjonction avec l'étalement. La forme finale d'une goutte se solidifiant a fait l'objet de recherches approfondies. Dans des conditions spécifiques, une goutte d'eau déposée sur une plaque sous-refroidie gèle et conduit à une goutte de glace avec une "pointe" comme l'illustre la Figure 2.15. L'extrémité pointue apparaît au sommet de la goutte qui est la dernière région à se solidifier. Ce phénomène est assez singulier étant donnée que la tension superficielle du liquide est censée aplanir toute singularités sur l'interface air-goutte. Néanmoins, il n'y a toujours pas d'explication satisfaisante à la formation de la pointe. Certains ont attribué la formation d'une pointe conique à la dilatation de l'eau lors de la solidification, en raison de la densité plus faible de la phase solide que de la phase liquide. Un modèle basé sur des considérations géométriques, en particulier un front de glace horizontal pendant le processus de solidification, a suggéré que le rapport de densité ψ entre les phases liquide et solide doit être inférieur à un seuil limite de 0,75 pour observer une pointe [2]. Cependant, ce seuil n'est pas satisfaisant, car des pointes ont aussi été observées avec un rapport de densité $\psi = 0,92$ [17]. Des observations récentes de Marín et al. [17] suggèrent que l'angle de la pointe est indépendant de la température du substrat et de l'angle de mouillage. En se basant sur plusieurs mesures de l'angle de contact dans une cellule de Hele-Shaw, ils ont souligné que le front de glace développe une forme sphérique qui se termine perpendiculairement à l'interface solide/air. Cependant, ces mesures doivent être confirmées pour d'autres conditions de solidification. En revanche, certains auteurs ont fait valoir que l'angle de contact au point de tri-jonction glace/liquide/air pourrait dépendre du taux de solidification [2]. Récemment, Zhang et al. [29] ont affirmé qu'une variation temporelle de l'angle de contact à la jonction triple serait cohérente avec les observations expérimentales. Mais dans leur cas,

les observations étaient uniquement basées sur des images en vue de côté de la goutte durant la phase de solidification, donc sans aucune possibilité d'accéder à l'intérieur de la goutte et donc de connaître la forme globale du front de glace. L'objectif ici est donc de développer une technique expérimentale basée sur la LIF pour reconstruire l'évolution du front de glace à l'intérieur d'une goutte et ainsi obtenir des informations sur la géométrie du front de solidification, notamment au point de tri-jonction glace/liquide/air.

5.1 Dispositif expérimental

Cette section décrit le montage expérimental permettant de réaliser l'impact d'une goutte sur une paroi sous-refroidie. Nous rappelons qu'une paroi sous-refroidie est une paroi à une température inférieure à la température de solidification de l'eau ($T_{sol} = 0\text{ °C}$). Afin de pouvoir décrire toute l'évolution temporelle de l'impact d'une goutte, certains auteurs ont réalisés un grand nombre d'expériences d'impacts de gouttes en décalant temporellement l'acquisition du signal [4] [5]. Dans le cas d'une paroi sous-refroidie, il est évident que la solidification de la goutte rend impossible l'étude d'un grand nombre d'impacts répétés sur une même surface. En effet, entre chaque impact, il est essentiel d'être en mesure de nettoyer la surface et de retirer la goutte solidifiée à l'impact précédent. Ajoutons que, dans le cas de l'impact de goutte sur paroi sous-refroidie, il est obligatoire d'être en mesure de suivre l'impact d'une goutte unique au cours du temps du fait du caractère stochastique du phénomène de solidification.

5.1.1 Impact de gouttes sur paroi sous-refroidie

Le dispositif d'impact (Figure 5.1) est composé d'une première partie permettant la génération d'une goutte de diamètre constant et d'une seconde partie d'impact composée d'une surface contrôlée en température. La goutte d'eau est générée par une aiguille de diamètre extérieur $d_a = 400\text{ }\mu\text{m}$ reliée à une micro-pompe. La goutte se détache de l'aiguille lorsque la force de tension superficielle dépasse le poids de la goutte et dont le diamètre est donnée par :

$$d = \left(\frac{6 d_a \sigma}{\rho_L g} \right)^{(1/3)} \quad (5.1)$$

Cela se produit dans nos expériences lorsque le diamètre de la goutte est égal à 2,6 mm. Afin de contrôler la vitesse d'impact (u) de la goutte, et donc le We d'impact, la distance h séparant l'aiguille et la surface est ajustable. La vitesse d'impact d'une goutte en chute libre est donnée par :

$$v = \sqrt{2 g h} \quad (5.2)$$

Le contrôle de la hauteur de chute permet donc celui de la phase d'étalement de la goutte. La surface d'impact est composée de deux parties. La première consiste en un échangeur de chaleur dans lequel circule un fluide caloporteur refroidie par un groupe froid. La seconde partie est composée d'un substrat solide (de diamètre 2,54 mm et d'épaisseur 5 mm) sur lequel se produit l'impact des gouttes est inséré directement dans une cavité cylindrique évidée à la surface du bloc métallique. Afin d'étudier l'influence du substrat, différents types de substrats peuvent être interchangeables. Dans le cas de cette étude, deux substrats aux propriétés thermiques très différentes ont été testés : un substrat en Duraluminium (bon conducteur de la chaleur) et en N-BK7 (mauvais conducteur de la chaleur). Les propriétés thermophysiques de ces deux substrats sont présentées dans le Tableau

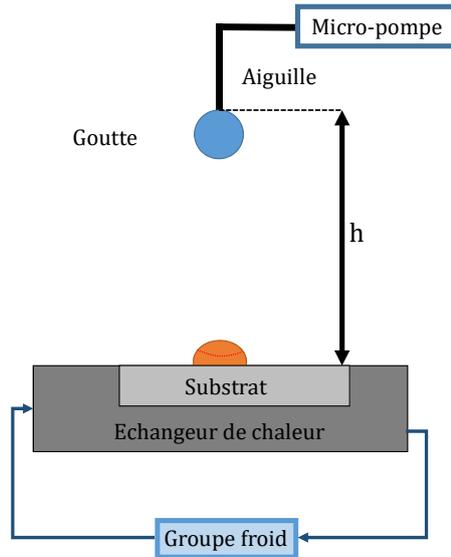


FIGURE 5.1 – Dispositif d'impact d'une goutte sur un substrat sous-refroidi.

5.1.

	ρ [$kg.m^{-3}$]	k [$W.m^{-1}.K^{-1}$]	Cp [$J.kg^{-1}.K^{-1}$]	D [$m^2.s^{-1}$]	e [$J.K^{-1}.m^{-2}.s^{-1/2}$]
<i>Duraluminium</i>	2700	145	897	$0,6 \times 10^{-5}$	$1,9 \times 10^4$
<i>N – BK7</i>	2510	1,114	858	$5,2 \times 10^{-7}$	$1,6 \times 10^3$
<i>Eau (20 °C)</i>	1000	0,6	4180	$1,5 \times 10^{-7}$	$1,6 \times 10^3$
<i>Glace (0 °C)</i>	917	2.2	2050	$1,2 \times 10^{-6}$	2×10^3

TABEAU 5.1 – Propriétés thermophysiques des substrats étudiés et de l'eau (liquide et glace).

Un thermocouple de surface (sonde thermocouple R2920) appliqué sur le substrat avant chaque impact permet une mesure de la température de surface avant chaque impact.

5.1.2 Montage optique

Pour obtenir des données quantitatives sur la solidification, une technique de mesure basé sur la fluorescence induite par laser planaire (PLIF) est développée. La Figure 5.2 présente le dispositif expérimental permettant l'étude de l'impact d'une goutte sur une paroi sous-refroidies par PLIF rapide. Le signal de fluorescence est collecté par une caméra rapide (Phantomn V710) qui observe les gouttes en vue du dessus. Ensuite, les images de fluorescence sont analysées pour déterminer l'épaisseur de l'eau liquide et donc la position du front de solidification. Un miroir incliné est placé au dessus du substrat afin d'obtenir des images de l'impact en vue de dessus. Un laser Nd-YAG à fréquence doublée continue (Ventus Laser Quantum®, @532 nm; P=2,5 W) est utilisé pour induire la fluorescence. La rhodamine 6G (R6G) a été choisie comme traceur fluorescent pour de nombreuses raisons. Ce colorant a une grande solubilité dans l'eau et sa dépendance en température est assez faible lorsqu'elle est excitée à 532 nm [4]. De plus, la grande efficacité quantique de la R6G (environ 0,95 [13]) et sa forte absorption à 532 nm sont avantageuses pour maximiser le signal de fluorescence. En outre, la grande solubilité de la R6G

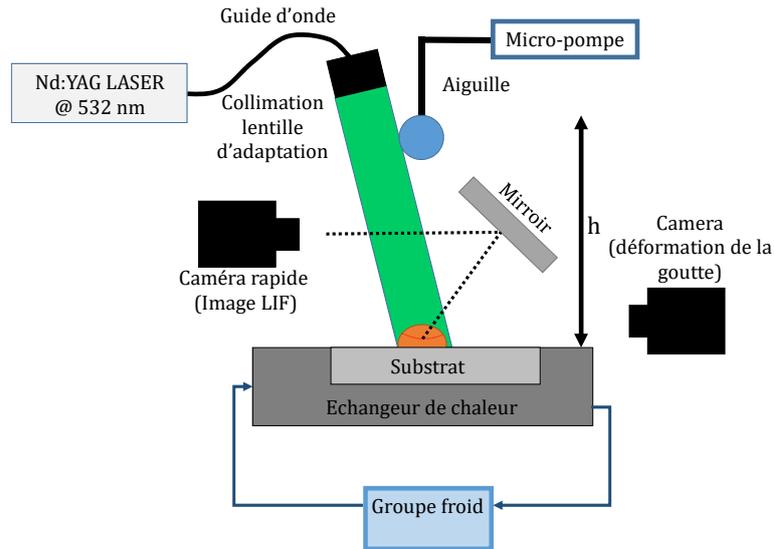


FIGURE 5.2 – Dispositif expérimental pour la mesure de l'évolution du front de glace d'une goutte impactant une paroi sous-refroidies par PLIF rapide.

permet de supposer que la thermophorèse et la diffusophorèse resteront négligeables lors du changement de phase de l'eau [16]. Ainsi, la concentration de R6G sera considérée comme constante et uniforme dans les phases liquide et solide. Un filtre passe-haut, transmettant les longueurs d'onde supérieures à 542 nm, est monté devant l'objectif de la caméra pour éliminer la contribution de la diffusion laser et ainsi détecter uniquement la contribution du signal fluorescent (Figure 5.3). Le faisceau laser est transmis par un guide

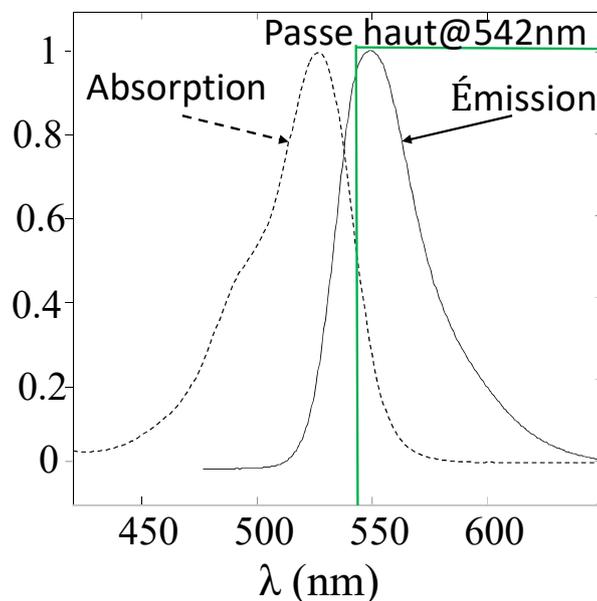


FIGURE 5.3 – Spectre d'absorption et de fluorescence de la rhodamine 6G, normalisés par leur maximum.

d'onde constitué d'un faisceau de fibres optiques pour illuminer par le dessus la goutte après son dépôt sur le substrat. De plus, ce guide d'onde est composé d'un ensemble de 10 fibres optiques qui suppriment la cohérence du faisceau laser et donc élimine les phénomènes de Speckel sur la surface de la goutte (Figure 5.4). Ainsi, un meilleur rapport signal/bruit peut être obtenu. Une seconde caméra peut être placée perpendiculairement

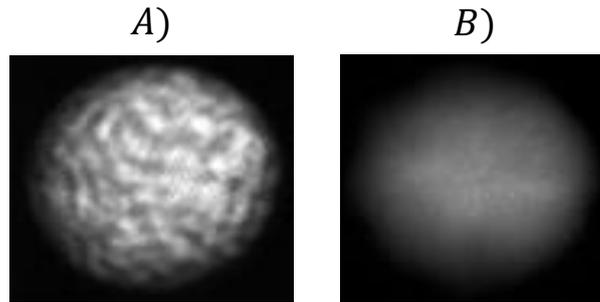


FIGURE 5.4 – Signal de fluorescence émis par une goutte sans utilisation du guide d'onde A) et avec utilisation du guide d'onde B).

à la surface pour permettre le suivi temporel de la phase d'impact et de solidification par vue de côté.

Le dispositif expérimental complet (génération de la goutte, substrat et optiques) peut être mis en contact direct avec l'air ambiant sans contrôle de l'humidité. Ainsi, une fine couche de givre se développe rapidement sur le substrat avant chaque impact. Loin d'être un inconvénient, la présence de cette couche de givre permet d'obtenir une grande reproductibilité du phénomène de solidification. La solidification commence de manière instantanée après l'impact de la goutte sur la surface solide. Il n'y a donc pas de surrefroidissement de l'eau liquide car dès lors que la température devient égale à celle de solidification du liquide, les premiers sites de nucléation peuvent apparaître. Aucun phénomène de recalescence n'a été observé dans les expériences sur une paroi à humidité non contrôlée. La couche de givre, qui ne dépasse pas quelques dizaines de microns d'épaisseur, est enlevée régulièrement de sorte que son épaisseur reste négligeable lorsque la goutte impact le substrat. Dans ces conditions d'impact très reproductibles, il est ainsi possible de répéter l'expérience en réalisant des mesures par ombroscopie par le côté afin d'obtenir des informations sur la déformation de la goutte durant la phase de solidification. Toutefois, un second dispositif expérimental a été mis en place afin de pouvoir contrôler l'humidité de l'air ambiant. L'objectif est alors de réaliser des impacts sur un substrat sec et ainsi changer fondamentalement les conditions initiales avant la solidification.

5.1.3 Contrôle de l'humidité

Afin de contrôler les conditions d'humidité au voisinage de la zone d'impact, une boîte étanche parallélépipédique (Figure 5.5) de dimension $500 \times 400 \text{ mm}^2$ a été réalisée. Le dispositif optique présenté sur la Figure 5.2 est placé à l'intérieur de la boîte excepté les caméras qui restent quand elles sont placées à l'extérieur de la boîte. Trois hublots en BK7 de dimension $7 \times 7 \text{ cm}^2$ permettent le passage du laser et la visualisation de la goutte par les deux caméras. Le contrôle de l'humidité est réalisé à l'aide d'un balayage à l'azote avec un débit de 6 L.min^{-1} et l'humidité relative dans l'enceinte est mesurée par un capteur d'humidité relative (WiFi-500 Sensor Series). Après chaque impact, il est nécessaire de retirer la goutte solide fixée au substrat et de nettoyer la surface du substrat. Ainsi, des gants (types "boîte à gants") fixés sur la paroi sont utilisés pour réaliser ces différentes étapes tout en conservant l'humidité relative voulue dans l'enceinte. Dans le cas d'impact sur paroi sèche, le phénomène de solidification n'est plus reproductible (Chapitre 2). Il est donc essentiel de pouvoir simultanément les mesures de LIF par-dessus et les mesures de côté pour pouvoir, avec une seule et même expérience, corréler l'évolution du signal de fluorescence avec l'évolution de la hauteur de la goutte (dilatation volumique durant le processus de solidification). Pour cela, une seconde caméra rapide (Phantom miro) est

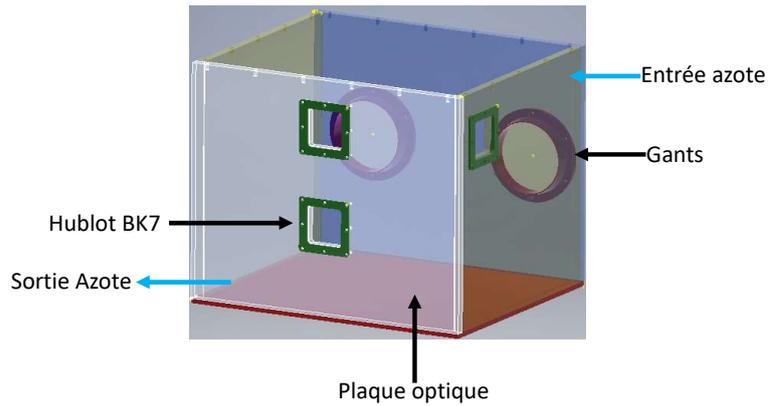


FIGURE 5.5 – Schéma de la boîte étanche.

placée perpendiculairement au substrat. Elle est munie d'un filtre Notch (bande de coupure de 10 nm @532nm) et est synchronisée avec la caméra en vue de dessus.

5.2 Caractérisation dynamique de la morphologie du front de glace par PLIF rapide

L'objectif est donc de reconstruire le front de glace à partir du signal de fluorescence. Une caractéristique importante de la méthode est que le signal de fluorescence émis dans les zones gelées est négligeable devant celui de la phase liquide. Ce phénomène, déjà observé précédemment dans le cas du kionred et de la rhodamine 560, a aussi été observé pour d'autres traceurs [24] [16]. Il est donc possible de mesurer l'épaisseur de l'eau

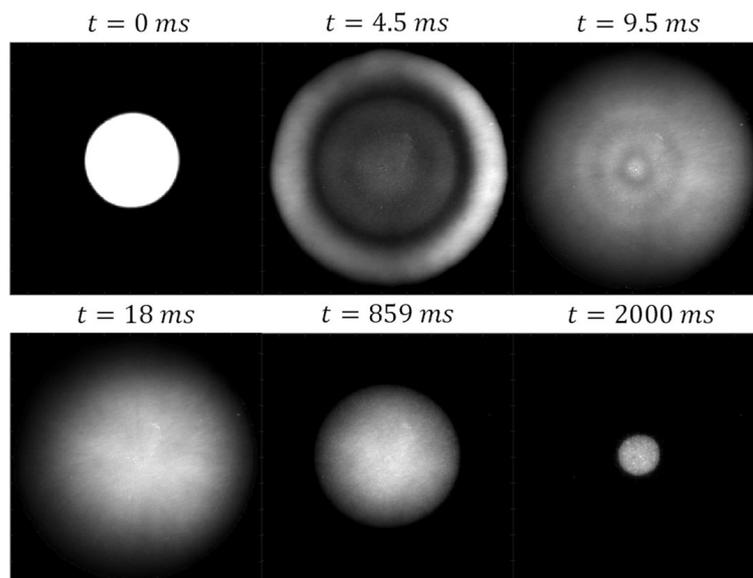


FIGURE 5.6 – Image de fluorescence d'une goutte impactant un substrat de Duraluminium sous-refroidi à $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ à humidité non contrôlée. La température initiale de la goutte est de $18\text{ }^{\circ}\text{C}$ et le nombre de Weber d'impact est de 65. Les images ont été obtenues avec le dispositif de la Figure 5.2.

liquide restante au-dessus du front de glace en se basant sur l'intensité du signal de fluorescence [24]. Il s'agit toutefois d'une méthode de reconstruction indirecte qui implique

un traitement des images de fluorescence spécifique et rigoureux. La Figure 5.6 présente des exemples d'images PLIF obtenues dans le cas d'une goutte se solidifiant sur un substrat en Duraluminium avec présence initiale d'une couche de givre sur la paroi. La goutte entre en contact avec le substrat solide à $t = 0$ s puis la phase d'étalement dure environ 4,5 ms. Pendant la phase initiale de l'impact (entre $t = 4,5$ ms et $t = 9,5$ ms), des variations spatiales de l'intensité de la fluorescence sont observées caractéristiques des variations de l'épaisseur du liquide pendant le processus d'étalement.

À $t = 4,5$ ms, il est possible d'identifier le bord de la goutte et certaines ondes capillaires qui se propagent à la surface de la lamelle liquide dans la région centrale. Après environ 10 ms, les oscillations de surface s'arrêtent et la goutte est à l'équilibre sur le substrat solide. Par la suite, le champ de fluorescence évolue à un rythme beaucoup plus lent. L'évolution la plus notable est une réduction du volume d'émission de la fluorescence correspondant à la solidification progressive se concentrant vers le centre de la goutte.

5.2.1 Mesure de l'épaisseur liquide

Le signal de fluorescence émis par un volume élémentaire dV dans un angle solide $d\Omega$ et centré autour d'un point M situé dans la phase liquide de la goutte peut s'écrire comme :

$$dF(M) \approx I_0(M) \phi \epsilon c dV \frac{d\Omega}{4\pi} \quad (5.3)$$

Avec $I_0(M)$ l'intensité locale de l'excitation laser, ϕ le rendement quantique de fluorescence, ϵ le coefficient d'absorption à la longueur d'onde du laser et c la concentration en traceur fluorescent. Une approximation paraxiale est faite pour décrire la transmission de l'émission de fluorescence vers la caméra. Comme le montre la Figure 5.7, seuls les rayons lumineux émergeant parallèlement à l'axe optique de la caméra sont supposés atteindre le capteur de la caméra. La Figure 5.7 (gauche) montre un rayon lumineux de fluorescence émergeant à l'interface liquide/air en un point C dans le champ de vision de la caméra. Rigoureusement, ce rayon émergeant correspond à la fluorescence émise tout le long du chemin optique entre D et C, où le point D est situé sur le front de glace appartenant au même rayon lumineux. En dessous du point D, l'émission de fluorescence de la phase so-

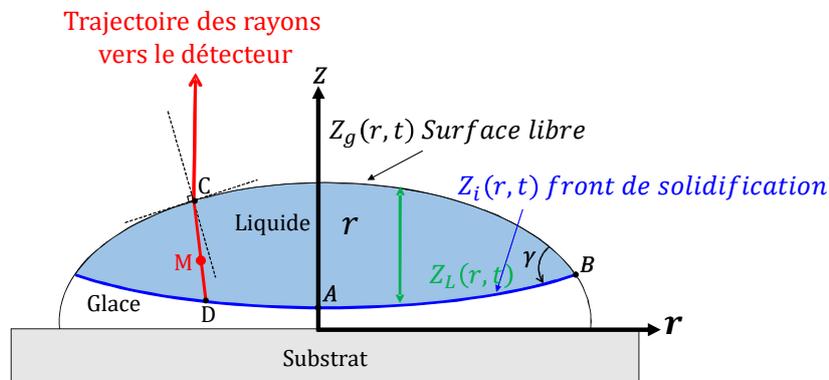


FIGURE 5.7 – Schéma d'une goutte en solidification et définitions des principaux paramètres géométriques.

lède peut être totalement négligée. En négligeant la réabsorption de la fluorescence sur le chemin optique DC, le signal de fluorescence collecté par un pixel donné du capteur de

la caméra peut être déterminé par :

$$I_f = t_c \int_C^D dF(M) \quad (5.4)$$

avec t_c le coefficient de transmission au point C et $dF(M)$ le signal de fluorescence élémentaire émis en un point M (équation 5.3). La forme relativement plate des gouttes déposées permet d'effectuer d'autres simplifications. Pour une goutte sessile déposée en douceur sur une couche de glace, l'angle de contact est d'environ 80° . Cependant, dans notre cas, du fait de la propagation initiale du front de solidification de la goutte à l'impact, l'angle de contact se réduit à une valeur beaucoup plus faible, environ 17° dans le cas de l'impact sur une couche de givre. Dans ces conditions, l'application des formules de Fresnel montre que t_c est proche de 1 pour toutes les positions à la surface de la goutte. La forme légèrement plate de la goutte permet également de considérer que l'effet de lentille, dû à la courbure de la surface libre, reste très limité. Ainsi, la distance entre C et D est à peu près égale à l'épaisseur du liquide, notée Z_L sous le point C. L'équation 5.4 suppose aussi une réabsorption négligeable de la fluorescence sur le trajet du rayon lumineux dans la goutte. Pour respecter cette hypothèse, la concentration en rhodamine 6G a été fixée à une valeur de $5 \times 10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$. La réabsorption peut être estimée à l'aide de la loi de Beer-Lambert. Connaissant le coefficient d'absorption et la longueur du chemin optique dans ce cas précis, le maximum du coefficient d'absorption sur la bande spectrale de détection choisie est $\epsilon = 6 \times 10^{-4} \text{ L/mol.cm}$ à 542 nm [18]. Pour un trajet optique de 1 mm, qui constitue un majorant, la réabsorption est inférieure à 1%. En pratique dans le cas d'un impact sur une paroi avec présence de givre, l'épaisseur de la goutte est inférieure à 500 μm , conduisant à une erreur minimum de 0,5%. Il convient de noter que l'épaisseur du liquide diminue avec le temps en raison de la solidification, atténuant encore l'effet de la réabsorption. L'absorption affecte également l'intensité du laser incident (champ d'excitation de la fluorescence). Un calcul similaire à la longueur d'onde d'excitation ($\epsilon = 9 \times 10^{-4} \text{ L/mol.cm}$ 532 nm [18]) montre également que l'absorption du laser est inférieure à 4% pour un trajet optique de 1 mm et 2% pour un trajet optique de 500 μm . Par conséquent, le signal de fluorescence collecté par la caméra s'écrit finalement comme :

$$I_f(x, y) = K_{opt} I_0 \psi \epsilon c Z_L(x, y) \quad (5.5)$$

Dans cette expression, K_{opt} est une constante optique dépendant de la transmission des différents dispositifs optiques, qui reste invariable lors des expériences. $I_0(x, y)$ représente la valeur locale de l'intensité d'excitation laser. En prenant une référence $I_{f,ref}$ où l'épaisseur du liquide est $Z_{L,ref}$, l'épaisseur du liquide peut-être évaluée à tout moment pendant la solidification par :

$$Z_L(x, y) = Z_{L,ref} \frac{I_f}{I_{f,ref}} \quad (5.6)$$

Il est alors possible de déterminer l'épaisseur du liquide Z_L en utilisant une image de référence prise sous la même distribution spatiale de l'excitation laser $I_0(x, y)$. Pour cela nous verrons par la suite comment sont obtenus expérimentalement $I_{f,ref}$ et $Z_{L,ref}$ dans le cas d'une goutte impactant un substrat.

5.2.2 Traitement des images

Les principales étapes du post-traitement des images de fluorescence sont illustrées sur la Figure 5.8. Elles consistent à :

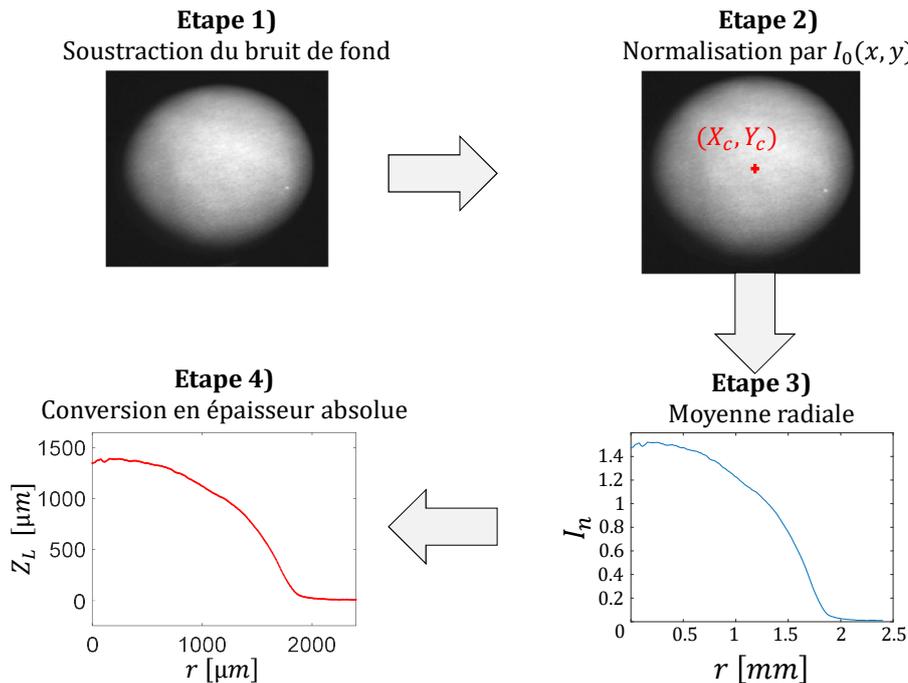


FIGURE 5.8 – Les différentes étapes du post-traitement des images

- Étape 1 : l'image de fluorescence brute est soustraite au bruit de fond. Ce bruit de fond est obtenu lorsque qu'aucune goutte n'est présente sur le substrat.
- Étape 2 : selon l'équation 5.5, l'intensité de fluorescence dépend de l'intensité locale du laser. Une image de la distribution de l'intensité du laser est mesurée avant la mesure en positionnant une fine plaque de PMMA fluorescente d'épaisseur uniforme au même endroit que la goutte. La non-uniformité de l'éclairage laser est corrigée en divisant l'image de la goutte par l'image de référence (obtenue sur la plaque fluorescente de PMMA) de la plaque. En principe, après cette étape, le niveau de gris de l'image normalisée I_n dépend uniquement de l'épaisseur du liquide.
- Étape 3 : La distribution radiale de I_n est extraite de l'image précédente. Une moyenne axisymétrique est effectuée ce qui permet d'améliorer le rapport signal/bruit.
- Étape 4 : Une mise à l'échelle géométrique est nécessaire car I_n ne fournit qu'une mesure relative de l'épaisseur du liquide. Ce facteur d'échelle, désigné par S_F , peut être déterminé à partir du volume initial des gouttes (V_0) :

$$S_F = \frac{\int_0^{+\infty} 2\pi r I_n(r) dr}{V_0} \quad (5.7)$$

Suite à cette étape, il est possible de connaître la valeur de $Z_{L,ref}$ avant solidification dans l'équation 5.6.

La méthode précédente a été testée pour reconstruire la forme d'une goutte préalablement déposée sur une surface isotherme (Figure 5.9). Le profil d'épaisseur reconstruit est comparé à celui extrait d'images obtenues directement par ombroscopie avec la seconde caméra en vue de côté (Figure 5.2), un éclairage homogène étant fourni par un panneau de LED. L'écart maximal est observé sur le bord de la goutte (ligne de contact liquide/substrat) qui peut être attribué à la réflexion de la fluorescence sur la surface du substrat.

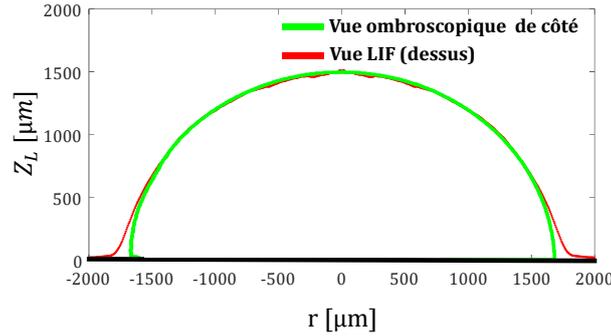


FIGURE 5.9 – Comparaison entre le profil d'une goutte mesuré par LIF en vue de dessus et celui mesuré par ombroscopie en vue de côté. Cas d'une goutte déposée sur une surface isotherme en Duraluminium.

5.2.3 Reconstruction du front de glace

L'objectif principal consiste à connaître l'épaisseur de glace Z_S . Cependant, la méthode décrite précédemment ne permet d'accéder qu'à l'épaisseur de la couche de liquide à l'intérieur de la goutte. En première approximation, pour déterminer Z_S , la dilatation volumique due à la solidification peut être négligée. En connaissant le profil de la goutte Z_g dans un plan de coupe passant par l'axe de symétrie à $t = t_0$ (t_0 est pris juste après la fin des oscillations de surface), la hauteur Z_S du front de solidification à une position radiale r peut être évaluée par :

$$Z_S(r, t) = Z_g(r, t_0) - Z_L(r, t) \quad (5.8)$$

Comme le front de solidification n'a pas eu le temps de se propager de manière significative durant la phase initiale d'étalement (qui ne dure que quelques dizaines de millisecondes), il est possible de déduire $Z_g(r, t_0)$ du signal de fluorescence, comme décrit sur la Figure 5.8 (en connaissant le volume initial de la goutte). Afin de tenir compte de la dilatation volumique du fait du changement de phase liquide/solide dans la reconstruction du front de glace, une caméra supplémentaire est utilisée. Dans le cas de l'impact sur une couche de givre, la visualisation sur le côté est réalisée par ombroscopie à l'aide d'une caméra (Pulnix® JAI CCD Camera), tandis que dans le cas de l'impact sur une paroi sèche la visualisation est réalisée par LIF en vue de côté avec une caméra rapide (Phantom Miro). La vue de côté permet d'obtenir des images latérales de la goutte à partir desquelles il est possible de déduire la forme et la hauteur réelle de la goutte. En notant Z_g la hauteur de la surface de la goutte obtenue à partir des images latérales, la position du front de glace Z_S à la position r peut donc être déterminée par :

$$Z_S(r, t) = Z_g(r, t) - Z_L(r, t) \quad (5.9)$$

L'équation 5.9 est similaire à l'équation 5.8 à l'exception du fait que $Z_g(r, t)$ est maintenant la hauteur de la goutte à chaque instant. A titre d'exemple, la Figure 5.10 présente la propagation du front de glace dans le cas d'une goutte impactant une surface en Duraluminium pour une température du substrat à -10 °C avec un Weber d'impact de 65. La reconstruction du front de solidification, basée sur les équations 5.8 et 5.9, donne des résultats comparables au début de la solidification mais, progressivement, le front de solidification apparaît plus haut lorsque la dilatation volumique est prise en compte. L'erreur commise en négligeant la dilatation volumique dans la reconstruction devient donc significative pendant la deuxième moitié du processus de solidification.

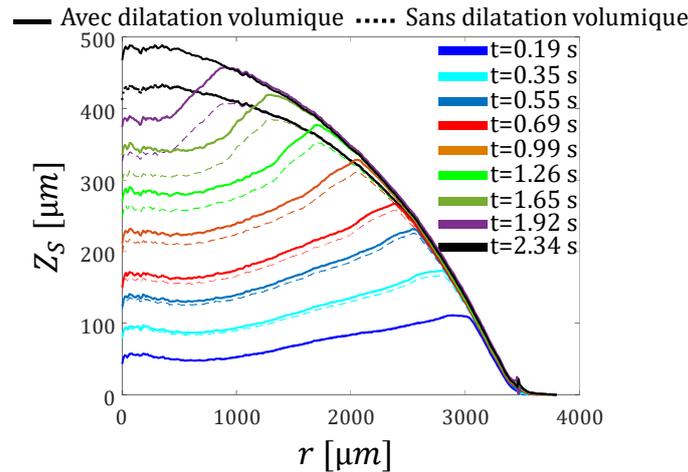


FIGURE 5.10 – Comparaison entre le profil du front de solidification obtenu avec ou sans prise en compte de la dilatation volumique. Expérience réalisée dans le cas où l'humidité n'est pas contrôlée avec une température de substrat de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et un nombre de Weber de 65.

5.3 Étude de la solidification d'une goutte sans phénomène de surfusion

Commençons par nous intéresser à l'impact de gouttes sur une surface sous-refroidie avec présence d'une couche de givre. Dans ce cas, la solidification démarre dès que la température du liquide est égale à $0\text{ }^{\circ}\text{C}$. Aucun phénomène d'état de surfusion n'est donc observé. Afin de déterminer l'influence de la nature du substrat sur la forme du front de glace, les deux substrats présentés dans le Tableau 5.1 sont utilisés. Dans un premier temps, des images ombroscopiques sont utilisées pour visualiser la forme de la goutte durant son impact (Figure 5.11 et 5.12). Pour ces deux substrats, la température initiale de la paroi est de $T_0 = -10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et la vitesse d'impact est de $v = 1,35\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ($We = 65$).

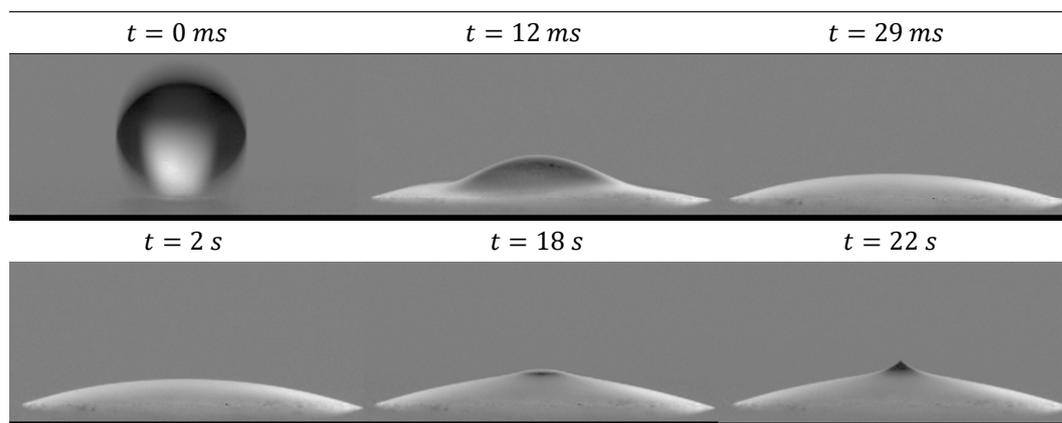


FIGURE 5.11 – Images ombroscopiques de la solidification d'une goutte impactant une surface en NBK-7 sous-refroidie à une température de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et avec un Weber incident de 65.

Au cours de la phase initiale de l'impact, l'étalement de la goutte est principalement contrôlé par l'inertie du liquide ($We > 1$) et la même évolution de d'étalement est observée pour les deux substrats en raison de la présence initiale de givre. À la fin de l'étalement (environ 5 ms après le début de l'impact), le diamètre maximal d'étalement est d'environ 2,5 fois le diamètre initial. Après avoir atteint l'étalement maximal, aucun recul notable

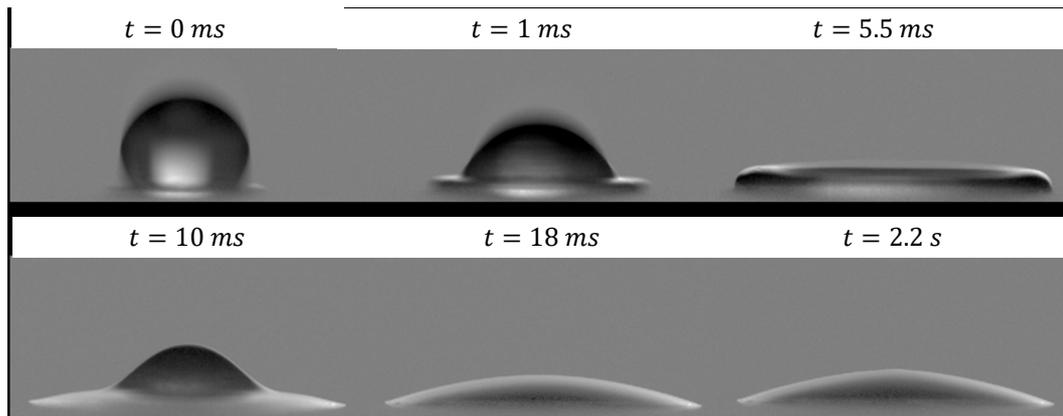


FIGURE 5.12 – Images ombroscopiques de la solidification d'une goutte impactant une surface en Duraluminium sous-refroidie à une température de $-10 \text{ }^\circ\text{C}$ et avec un Weber incident de 65.

de la goutte ne se produit. En raison de la couche de givre initiale, la solidification peut commencer immédiatement au niveau de la ligne de contact triple lorsque l'étalement du liquide ralentit, ce qui revient à fixer la ligne triple sur le substrat. La solidification est un phénomène beaucoup plus lent que la phase d'étalement de la goutte. Il y a en effet une différence de deux ordres de grandeur sur la durée de ces deux processus, ce qui permet de les étudier séparément. La durée de la solidification des gouttes dépend principalement du substrat. Des essais préliminaires ont montré que le temps de solidification est de 22 s pour le N-BK7 et de 2,2 s pour le Duraluminium. Par ailleurs, une autre différence notable entre les deux substrats peut être observée : apparition d'une pointe à la fin de la phase de solidification dans le cas du N-BK7 (Figure 5.11). En revanche, cette pointe est presque absente dans le cas du Duraluminium (Figure 5.12). La formation de la pointe est clairement liée à la durée du processus de solidification et donc à la vitesse de propagation du front de solidification. De plus amples explications seront données dans la suite. Bien que le dispositif expérimental permette d'étudier l'effet de la vitesse d'impact, il a été décidé de prendre une même vitesse d'impact pour toute l'étude à humidité non contrôlée ($v = 1,35 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $We = 65$). Pour des nombres de Weber plus élevés (généralement de l'ordre de 130), des comportements de solidification remarquablement différents ont été signalés, comme la formation d'une calotte de glace en forme "d'œuf sur le plat" [25]. Ces situations mériteraient d'être étudiées plus en détail à l'avenir.

5.3.1 Modélisation de la solidification d'une goutte

Le problème de solidification de l'eau appartient à la classe des problèmes de Stefan dans lesquels une interface entre deux phases distinctes se déplace en fonction du temps. La position du front de solidification n'est pas connue à l'avance mais doit être déterminé dans le cadre de la solution du problème. Pour commencer, le problème de Stefan monodimensionnel à deux phases est rappelé car une solution analytique peut être déterminée : cette solution sera utilisée pour valider une approche numérique bidimensionnelle qui sera mise en œuvre pour prendre en compte la géométrie de la goutte et le transfert de chaleur avec la paroi.

5.3.1.1 Le problème de Stefan 1D à deux phases

Le problème monodimensionnel de Stefan est examiné en premier lieu. Le problème peut être représenté comme un liquide semi-infini occupant le domaine $x > \infty$ à la tem-

pérature initiale T_∞ . Dans le cas présent, le problème de Stefan à deux phases avec une phase liquide initiale à une température T_∞ supérieure au point de solidification T_{sol} est considéré. Le liquide est refroidi du côté $x = 0$ où la température est imposée à $T_0 < T_{sol}$ (Figure 2.13). En conséquence, la température diminue pour atteindre le point de solidification et le liquide commence à se solidifier. Pour résoudre ce problème, les hypothèses habituelles suivantes sont adoptées : (1) la distribution de la température et les transferts de chaleur sont décrits par l'équation de conduction thermique dans les deux phases, (2) une interface supposée infiniment mince (ou front de solidification) sépare les deux phases, (3) la température de l'interface est connue et est égale à la température de solidification (T_{sol}), (4) le milieu diphasique est considéré comme semi-infini. En outre, tout changement de volume dû à la variation de densité de l'eau durant la solidification est ignoré (5). Dans ce problème à deux phases, la distribution de la température dans les deux phases est contrôlée par la conduction thermique, mais la position $X(t)$ de l'interface liquide/solide est inconnue. La résolution complète de ce problème est présentée dans la section 2.1.3.2, et la solution de ce problème est donnée par :

$$X(t) = 2\zeta \sqrt{D_S t} \quad (5.10)$$

avec ζ la solution de l'équation transcendante (équation 2.42) et D_S la diffusivité thermique de la glace.

5.3.1.2 Simulation numérique du problème de solidification à deux dimensions

Lorsque la géométrie du domaine est bidimensionnelle ou tridimensionnelle, la résolution du problème de Stefan doit être effectuée numériquement. Par ailleurs, la vitesse d'impact modifie le diamètre d'étalement de la goutte mais son effet sur l'écoulement interne devient rapidement négligeable, car le processus de solidification dure plusieurs secondes tandis que l'énergie cinétique initiale est dissipée sur une durée beaucoup plus courte. Une couche limite visqueuse se développe progressivement pendant le processus d'étalement à partir de la surface solide en raison de l'absence de glissement [14] [20] [6] et dont l'épaisseur évolue en fonction du temps comme :

$$1,88\sqrt{\nu t} \quad (5.11)$$

avec ν la viscosité cinématique de l'eau liquide. Dans le cas de l'impact d'une goutte sur une couche de givre, l'épaisseur de la goutte étalée est d'environ 400 μm . La couche limite visqueuse atteint cette hauteur en 0,04 s. Ce temps est faible comparé à la durée du processus de solidification. Cette estimation ne tient pas compte de la formation du bourrelet de la goutte. En effet, pendant la phase d'étalement, une grande partie du liquide va également dans le bourrelet, formé en raison des forces capillaires sur le bord de la goutte. Dans ce bord, le flux de liquide de la lamelle vers le bourrelet est très tourbillonnaire, ce qui conduit à une grande efficacité de dissipation de l'énergie cinétique (Figure 5.13). Ainsi, la durée des effets liés à la dissipation visqueuse est sans doute encore plus petit que 0,04s. Dans le cas de l'impact sur une couche de givre, aucune rétraction de l'extrémité de la goutte n'est observée. La ligne triple est ici figée lorsque le diamètre d'étalement a atteint son maximum. Dans une telle situation, seule une petite partie de l'énergie surfacique créée pendant la phase d'étalement peut être restituée par la suite grâce aux oscillations de surface. Aucun signe d'oscillations de surface ne peut être observé après 20 ms dans le cas d'impact sur une couche de glace (Figure 5.6). Puis, pendant la solidification, la goutte adopte une forme d'équilibre qui évolue lentement avec le temps uniquement en raison de la dilatation volumique. Par conséquent, en se basant sur la discussion ci-dessus, il

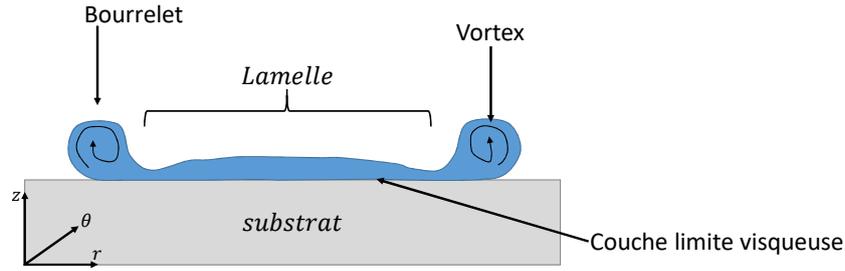


FIGURE 5.13 – Schéma des phénomènes dissipatifs intervenant lors de l'étalement d'une goutte impactant une surface mouillante.

semble que les problèmes hydrodynamiques associés à l'impact de la goutte et celui de la dynamique du front de glace puissent être traités séparément. En négligeant la convection du liquide à l'intérieur de la phase liquide, l'équation thermique peut être écrite dans les coordonnées cylindriques (r, θ, z) comme suit :

$$\frac{dT}{dt} = D \left(\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(r \frac{dT}{dr} \right) + \frac{d^2T}{dz^2} \right) \quad (5.12)$$

avec D la diffusivité thermique du milieu (liquide ou solide). Les propriétés thermophysiques de l'eau liquide ou de la glace sont considérées comme indépendantes de la température. Leurs valeurs sont indiquées dans le Tableau 5.1. Un paramètre, jouant le rôle d'indicateur de phase μ (solide ou liquide), est introduit pour distinguer les phases liquide et solide (dépendant de la température locale), est alors introduit :

$$\mu(T) = \begin{cases} 0 & \text{si } T < T_{sol} \\ 1 & \text{si } T \geq T_{sol} \end{cases} \quad (5.13)$$

Ainsi, les propriétés thermophysiques du mélange liquide/glace sont exprimées à l'aide de l'indicateur de phase μ . La diffusivité thermique D est calculée comme suit :

$$D(\mu) = D_S (1 - \mu) + \mu D_L \quad (5.14)$$

Pour tenir compte du dégagement de chaleur lors de la solidification, l'expression suivante est utilisée pour la capacité thermique massique :

$$Cp(\mu) = Cp_S (1 - \mu) + \mu Cp_L + L \frac{d\mu}{dT} \quad (5.15)$$

avec L la chaleur latente de solidification. Pour ces simulations numériques, la dilatation volumique induit par la solidification n'est pas prise en compte. En d'autres termes, la géométrie de la goutte n'est pas mise à jour entre les différents pas de temps de la résolution numérique. Par conséquent, il n'est pas possible de prendre en compte le champ de vitesse induit par le changement de volume dans l'équation de la chaleur. Zhang et al. [28] ont développé un modèle théorique décrivant la forme de la goutte. Mais leurs simulations étaient toujours limitées aux formes initiales et finales de la goutte sans mise à jour de sa géométrie pendant les étapes de la simulation. À notre connaissance, seuls Vu et al. [26] ont mis en œuvre une géométrie variable des gouttes en utilisant une méthode de front-tracking. Néanmoins, ils ne sont parvenus qu'à reproduire partiellement la pointe en fin de solidification. Ici, la simulation de la solidification de la goutte a été réalisée par la méthode des éléments finis et implémentée sous le logiciel COMSOL Multiphysics®. Un maillage triangulaire non structuré et un pas de temps constant a été utilisé pour la

résolution. La principale difficulté associée à la résolution numérique est de capturer le mouvement de l'interface liquide-solide. Dans la description ci-dessus, le front de glace est une surface infiniment mince qui sépare des phases adjacentes : ainsi, les solutions des équations différentielles partielles qui gouvernent le phénomène et leurs dérivées peuvent souffrir de discontinuités à travers l'interface de solidification. Pour atténuer ce problème, une fonction linéaire continue par morceaux est utilisée pour le paramètre μ :

$$\begin{cases} \mu = 0 & \text{si } T < (T_{sol} - \frac{\Delta T}{2}) \\ \mu = \frac{T - T_{sol}}{\Delta T} + \frac{1}{2} & \text{si } |T - T_{sol}| \leq \frac{\Delta T}{2} \\ \mu = 1 & \text{si } T > T_{sol} + \frac{\Delta T}{2} \end{cases} \quad (5.16)$$

Une valeur de ΔT est choisie égale à 1,2 °C pour la résolution. Dans la pratique, il a été constaté que cette valeur minimisait la différence entre les résultats numériques et la solution analytique. Le solveur non-linéaire utilisé dépendant du temps, est basé sur une "backward differentiation formula" (BDF) et une méthode de "damped Newton" (Newton amortie) pour assurer un traitement approprié de la discontinuité thermique spécifique. La Figure 5.14 présente une comparaison entre la solution analytique du problème de Stefan à deux phases 1D décrite par les équations 2.44 et 2.47 et l'approche numérique 2D axisymétrique (2D-axi) décrite ci-dessus. Pour ce test, un domaine de calcul

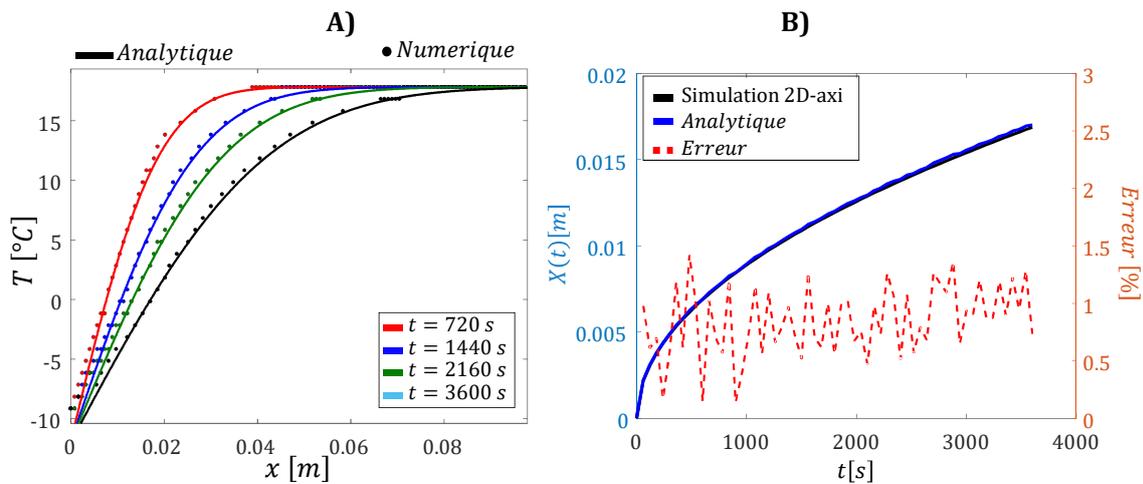


FIGURE 5.14 – Comparaison entre le modèle analytique 1D (équation 2.44 et 2.47) et la solution numérique 2D-axi pour le profil de température A) et la position de l'interface liquide/solide B) pour une température initiale de 18 °C et une température de substrat constante de -10 °C. Le domaine de calcul à une longueur de 100 cm et une largeur de 50 cm.

d'une longueur de 100 cm et une largeur de 50 cm ont été fixés. La température a été fixée à $T_0 = -10$ °C à ($x = 0$) alors que l'eau liquide était initialement à $T_\infty = 18$ °C. L'erreur moyenne sur la position du front de solidification est inférieure à 1% comme le montre la Figure 5.14 B). La Figure 5.15) présente l'évolution de la hauteur du front de solution au centre de la goutte en fonction du temps pour différentes taille de maillage. La convergence est obtenue pour des éléments de taille inférieure ou égale à 10^{-5} m, car il n'y a plus de changement notable dans la solution numérique (Figure 5.15). En conclusion, la simulation numérique axisymétrique 2D-axi est en accord avec la solution analytique 1D du problème de Stefan et sera utilisée pour étudier l'interaction thermique entre la paroi solide et la goutte.

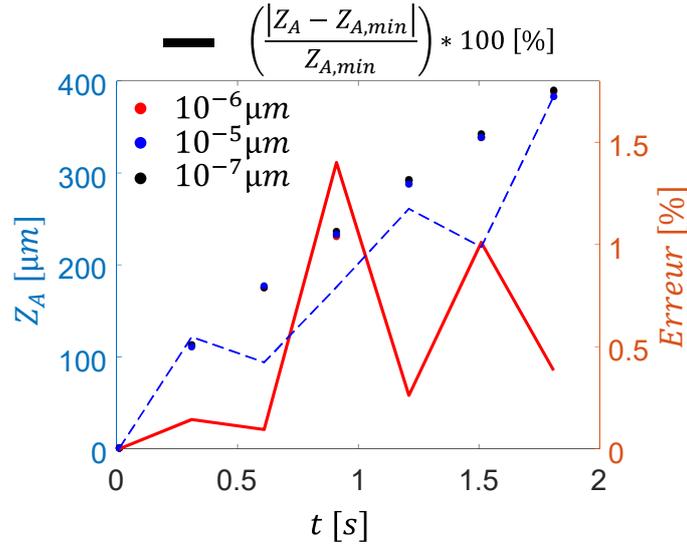


FIGURE 5.15 – Axe de gauche : Évolution de la position de l’interface liquide/solide au centre de la goutte pour différentes tailles de maillage. Axe de droite : évolution de l’erreur avec comme référence la hauteur du front lorsque le maillage est le plus fin. Les simulations sont réalisées dans le cas d’une goutte de 400 μm de hauteur et de 3500 μm de rayon, pour une température de surface de $T_0 = -10$ °C.

5.3.1.3 Couplage thermique entre le substrat et la goutte

Les propriétés thermiques du substrat peuvent avoir un effet très important sur la vitesse de solidification de l’eau [25]. Il est ainsi indispensable de prendre en compte les transferts thermiques entre le substrat et le liquide. Pour cela, il est nécessaire de prendre en compte les transferts de chaleur (à la fois dans le substrat solide et dans la goutte déposée). La Figure 5.16 présente le domaine de calcul ainsi que les différentes conditions aux limites des milieux mis en jeu dans ces simulations (substrat, eau liquide et glace). Un flux de chaleur nul est imposé à l’interface entre l’air ambiant et la goutte et entre l’air et le substrat solide (lignes violettes dans la Figure 5.16) :

$$\frac{dT}{dn} = 0 \quad (5.17)$$

où n est la normale à la surface dirigée vers l’extérieur du domaine de calcul. Cette condition est justifiée par le fait que le transfert de chaleur par convection naturelle à l’interface eau/air peut être négligée par rapport au flux de chaleur mis en jeu au niveau de l’interface goutte/substrat. En effet, dans le cas d’une goutte déposée sur une surface solide, un coefficient d’échange d’environ $8,5 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ est obtenu dans notre cas. Malgré cette faible valeur du coefficient d’échange, des simulations réalisées ont montré que le fait de négliger la convection naturelle sur le bord de la goutte était bien justifié. La continuité du flux de chaleur et de la température est appliquée à l’interface entre la goutte et le substrat solide, ainsi qu’entre le substrat et son support maintenu à une température constante (lignes rouges sur la Figure 5.16) :

$$k^+ \frac{dT}{dn^+} = k^- \frac{dT}{dn^-} \quad (5.18)$$

$$T^+ = T^- \quad (5.19)$$

Le bord extérieur du support est aussi maintenu à la température initiale du substrat T_0 (lignes vertes dans la Figure 5.16) :

$$T = T_0 \quad (5.20)$$

Il convient de souligner que la physique sous-jacente du problème de Stefan n'est pas

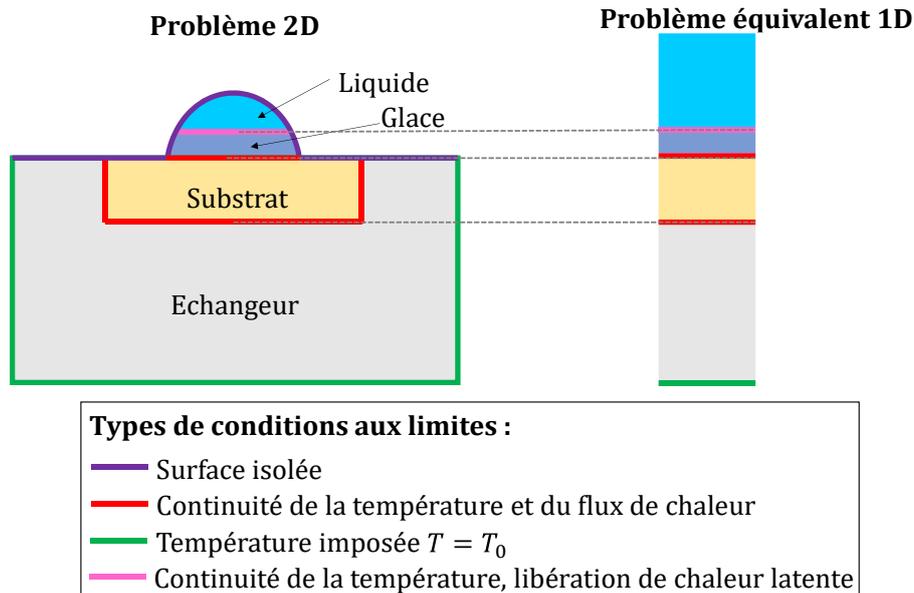


FIGURE 5.16 – Domaine de calcul et conditions aux limites prises en compte dans la résolution numérique de la solidification d'une goutte.

modifiée par l'ajout d'une ou plusieurs couches solides sous la goutte se solidifiant. Pour le problème 1D semi-infini équivalent (également présenté en Figure 5.16), une solution auto-similaire reste valable et la position $X(t)$ du front de glace peut être déterminée par [25] :

$$X(t) = \sqrt{D_{eff} t} \quad (5.21)$$

où D_{eff} est la diffusivité effective qui prend en compte les propriétés thermiques et l'épaisseur des différentes couches composant aussi bien la paroi solide que le milieu liquide en cours de solidification [25]. Cependant, une expression analytique peut difficilement être fournie. La valeur de D_{eff} peut être obtenue numériquement en effectuant une simulation 1D. Pour cela, on considère un domaine liquide suffisamment étendu dans l'espace pour obtenir une solution comparable au cas semi-infini sur la période de temps considérée. L'évolution temporelle de la position du front de glace obtenue par la simulation est ensuite ajustée par une racine carrée du temps et la valeur de D_{eff} est évaluée. Dans le cas présent, les simulations sont entreprises avec une épaisseur du substrat de 5 mm, une température du substrat de $-10\text{ }^{\circ}\text{C}$ et une température d'eau initiale de $10\text{ }^{\circ}\text{C}$. En utilisant cette approche, et en considérant une condition de température imposée à la surface, une valeur de $D_{eff} = 8 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ est trouvée. Dans le cas d'un substrat en Duraluminium, la valeur de D_{eff} est de $7,5 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et dans le cas d'un substrat en N-BK7 $D_{eff} = 2,5 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Par conséquent, les vitesses de solidification seront donc très différentes pour les deux substrats. La valeur de D_{eff} obtenue dans le cas du Duraluminium est assez proche de la solution du problème de Stefan 1D à deux phases (équation 2.44) qui conduit à $D_{eff} = 8 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Cela peut être attribué à l'effusivité thermique du Duraluminium (Tableau 5.1) qui est beaucoup plus élevée que celle de la glace (Tableau 5.1), contribuant à maintenir la température de contact entre le Duraluminium et la glace proche de T_0 pendant tout le processus de solidification. Or ce n'est pas le cas pour le substrat en NBK-7 (pour laquelle D_{eff} est environ 3 fois plus faible) car ce matériau a une effusivité thermique légèrement inférieure à celle de la glace (Tableau 5.1).

5.3.2 Solidification d'une goutte impactant un substrat de conductivité thermique élevée

Nous commencerons par présenter les résultats obtenus dans le cas de la goutte déposée sur le substrat en Duraluminium, c'est-à-dire pour un matériau bon conducteur de la chaleur. Les fronts de solidification obtenus expérimentalement sont comparés avec les simulations 1D semi-infinies (équation 2.44) et les simulations 2D-axi. La taille du substrat considéré dans les simulations 2D-axi est la même que dans les expériences (diamètre de 25,4 mm et épaisseur de 5 mm). Le pas de temps de la résolution est de 10 ms. La plus grande taille des éléments de maille triangulaire est de 1 μm pour la goutte et de 15 μm pour le substrat solide et le support. Comme le montre déjà la Figure 5.10, le front

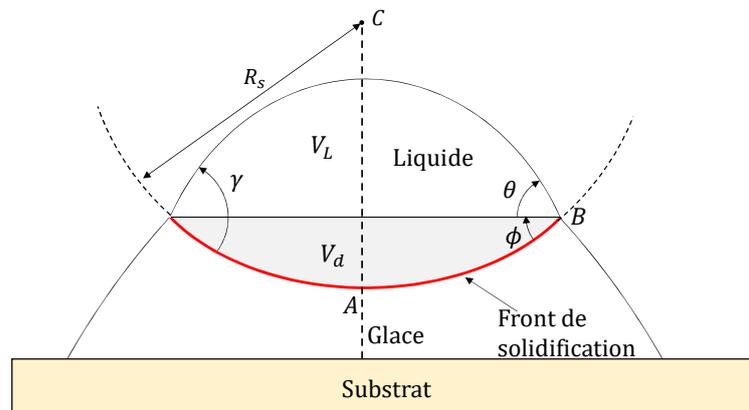


FIGURE 5.17 – Schéma des principaux paramètres du front de solidification sphérique.

de glace prend une forme concave pendant la solidification. Dans le développement qui suit (Figure 5.17), le point A fait référence à la position du front de glace au centre de la goutte et le point B à la tri-jonction entre le front de glace, la phase liquide et l'air. γ représente l'angle entre le front de solidification et la surface libre de la goutte, il peut être décomposé en deux angles θ et ϕ (Figure 5.17). Lorsque la goutte impacte le substrat en Duraluminium, le processus de solidification commence sur le bord de la goutte au point B . Dans la suite, pour les impacts sur le substrat en Duraluminium la température de la paroi sera de $T_0 = -10\text{ }^\circ\text{C}$ et la température initiale de la goutte $T_\infty = 18\text{ }^\circ\text{C}$ pour un Weber d'impact de 65. La Figure 5.18 (A) présente l'évolution temporelle de la position verticale Z_B . L'analyse des résultats expérimentaux montre que Z_B (position verticale du point B) évolue en suivant approximativement une racine carrée du temps ($Z_B \propto \sqrt{t}$), ce qui est conforme aux résultats de la littérature pour la solidification de gouttes sessiles [29]. Comme le montre la Figure 5.18 (A), les simulations 1D et 2D-axi sont capables de reproduire assez bien l'évolution temporelle de Z_B . Cependant, l'évolution de Z_B déduite de la solution analytique 1D est plus lente que celle observée expérimentalement et numériquement. La différence peut être principalement attribuée au caractère finis de la géométrie non prise en compte dans le modèle 1D. Le meilleur ajustement des données expérimentales est obtenu pour $D_{eff,exp} = 1,08 \times 10^{-7}\text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ tandis que la solution analytique 1D semi-infinie sans dilatation volumique est de l'ordre de $D_{eff,m} = 7,5 \times 10^{-8}\text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Il est possible de noter que $\left(\frac{D_{eff,m}}{D_{eff,exp}}\right)^{(0,5)} \approx 0,88$, ce qui est proche de $\psi = 0.917$ (avec ψ le rapport des masses volumiques entre les phases liquide et solide). De plus, si l'on reconstruit le front de glace en ne tenant pas compte de la dilatation volumique (c'est-à-dire en utilisant l'équation 5.8 au lieu de l'équation 5.9) l'accord avec la simulation 2D-axi est meilleure, du fait que celle-ci ne prend pas en compte la dilatation vo-

lumique. La Figure 5.18 B) présente l'évolution de la position radiale R_B du point B. En considérant que la forme de la goutte déposée puisse être assimilée à une calotte sphérique de rayon R , R_B devrait suivre une loi en r^2 [17] :

$$R_B = \sqrt{r^2 - (Z_B - Z_C)^2} \quad (5.22)$$

avec Z_C la position verticale du centre C de la calotte sphérique positionné sur la surface libre de la goutte. En remplaçant Z_B par $\sqrt{D_{eff} t}$, on obtient :

$$R_B^2 - r^2 = -\left(\sqrt{D_{eff} t} - Z_C\right)^2 \quad (5.23)$$

L'évolution temporelle de R_B prévue par l'équation 5.23 est représentée sur la Figure 5.18 B) en prenant $D_{eff,exp} = 1,08 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, valeur obtenue expérimentalement avec Z_B (en tenant compte de la dilatation volumique dans la reconstruction du front de solidification). L'équation 5.23 permet un bon ajustement des données expérimentales. La simulation 2D-axi est également capable de reproduire assez correctement l'évolution de R_B malgré les écarts précédemment observés pour Z_B sur la Figure 5.18 A). La technique de

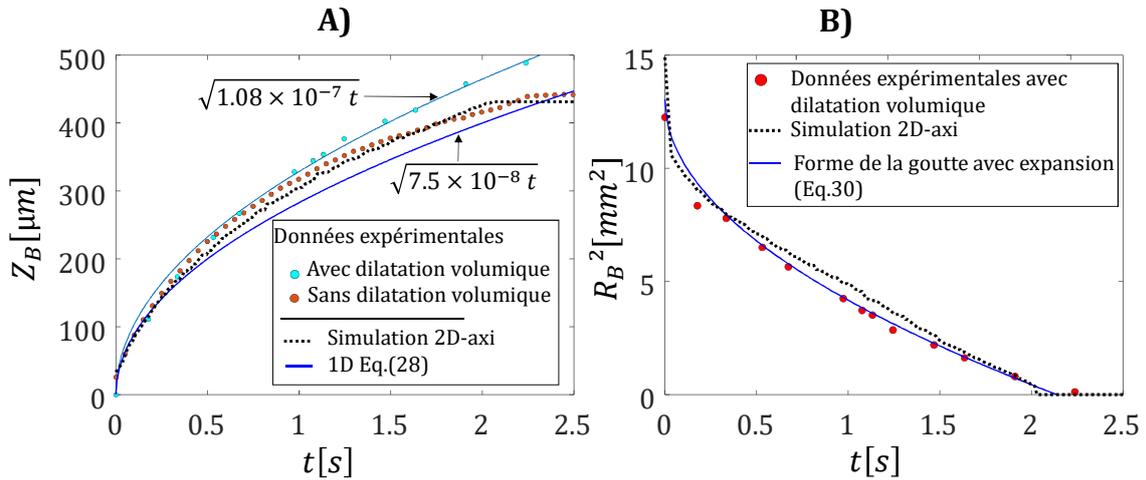


FIGURE 5.18 – Évolution de l'épaisseur du front de solidification A) et de la position radiale B) du front de glace à la tri-jonction air/liquide/solide (point B) en fonction du temps pour $T_0 = -10 \text{ °C}$ et $T_\infty = 18 \text{ °C}$.

PLIF rapide permet non seulement d'obtenir des informations sur l'évolution de Z_B mais aussi sur le front de solidification à l'intérieur de la goutte, information qui ne peut pas être obtenue par ombroscopie. La Figure 5.19 présente l'évolution temporelle du front de solidification au point A (sur l'axe de la goutte en $r = 0$) pour les mêmes conditions expérimentales que celle de la Figure 5.18. L'analyse des données expérimentales révèle que Z_A évolue comme $t^{0,75}$. La simulation 2D-axi est capable de reproduire assez fidèlement l'évolution temporelle de Z_A . Cependant, aux tout derniers instants de la solidification, typiquement pour $t > 2,1 \text{ s}$, une accélération soudaine du front de solidification est observée. Ainsi, la dilatation volumique inhérente à la solidification en est probablement la cause, puisque cette accélération n'est pas capturée par la simulation en 2D-axi. Si le front de glace est reconstruit expérimentalement sans tenir compte de la dilatation volumique (équation 5.8) comme dans les simulations, il est intéressant de noter que l'accord entre les données expérimentales et les simulations 2D-axi est améliorée. L'étude de l'influence de la température du substrat sur la dynamique du front de solidification au centre de la goutte est également particulièrement intéressante. Pour cela, des expériences similaires

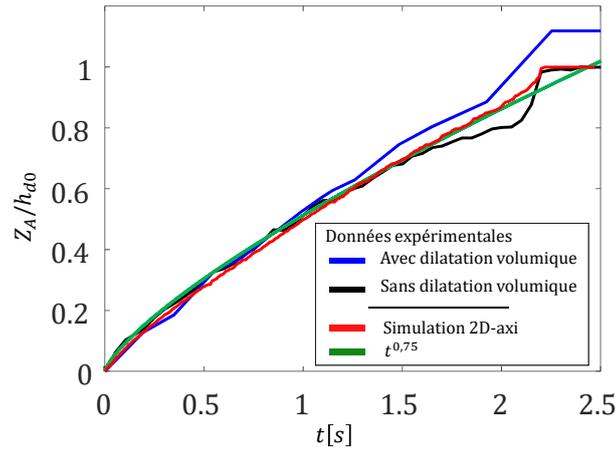


FIGURE 5.19 – Évolution de l'épaisseur du front de glace au centre de la goutte (point A) en fonction du temps.

à celle présentées précédemment sont réalisées pour deux autres température de substrat ($T_0 = -11\text{ °C}$ et $T_0 = -13\text{ °C}$). Pour chaque expériences sont ajoutés les résultats obtenus par simulation 2D-axi et l'ajustement obtenu par une loi en $t^{0,75}$ (Figure 5.20). Les simulations et expériences semblent valider le fait que le front de solidification au centre de la goutte évolue en $t^{0,75}$. L'évolution de Z_A en $t^{0,75}$ est liée à la nature tridimensionnelle

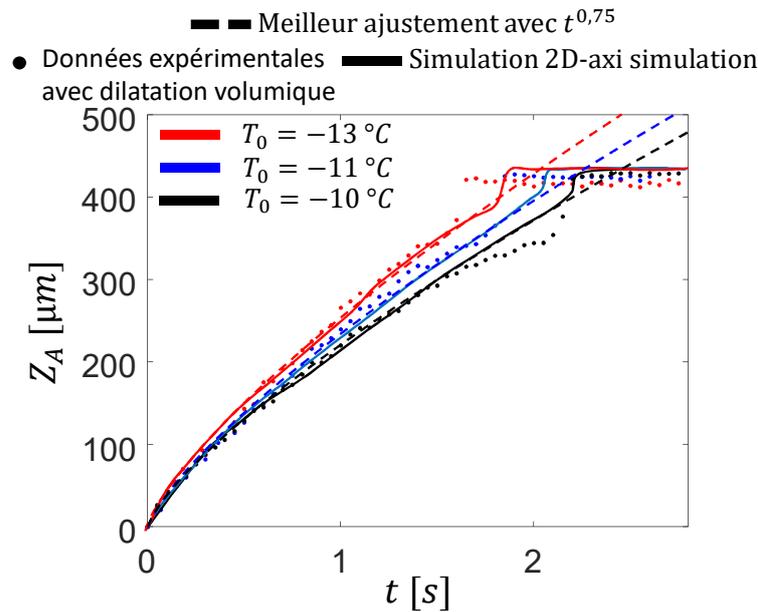


FIGURE 5.20 – Évolution de la position du front de glace au centre de la goutte (point A) obtenue numériquement et expérimentalement en fonction du temps pour différentes températures de surface. L'ajustement par une loi en $t^{0,75}$ est ajoutée pour chaque expérience.

du transfert de chaleur dans la goutte. Afin d'étudier l'effet de la taille de la goutte sur l'évolution du front de solidification au centre de la goutte, des simulations sont réalisées en augmentant les dimensions (radiale et épaisseur) de la goutte. La Figure 5.21 représente l'évolution temporelle de Z_A obtenus numériquement pour deux tailles de goutte différents ($\times 1$ pour des dimensions de goutte expérimentale et $\times 10$ en ayant multipliée ces dimensions par 10). Les simulations confirment que le transfert de chaleur devient de plus en plus unidirectionnel au centre de la goutte ($r = 0$) quand la taille de goutte

augmente. Lorsque les dimensions deviennent suffisamment grandes, Z_A aura tendance à évoluer en $t^{0,5}$, comme dans le modèle 1D semi-infini. Par conséquent, l'exposant de

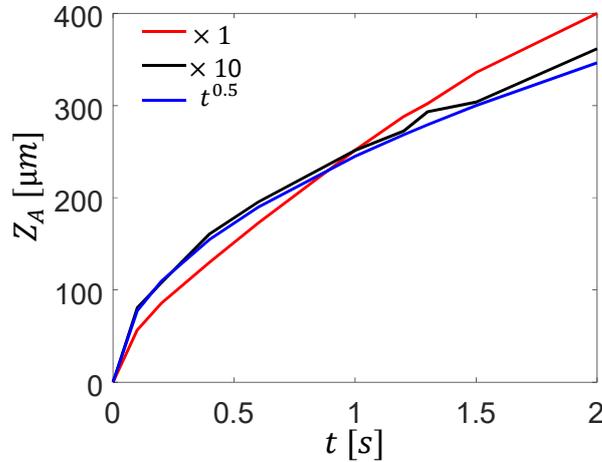


FIGURE 5.21 – Évolution de la position du front de glace au centre de la goutte (point A) obtenue numériquement pour une géométrie de goutte identique à celle présentée à la Figure 5.18 ($\times 1$) et pour une multiplication par dix de toutes les grandeurs géométriques de la goutte ($\times 10$).

puissance de 0,75 ne semble pas universel mais fonction de la taille et de la forme de la goutte déposée. L'accent a ensuite été mis sur l'analyse de la forme du front de glace et

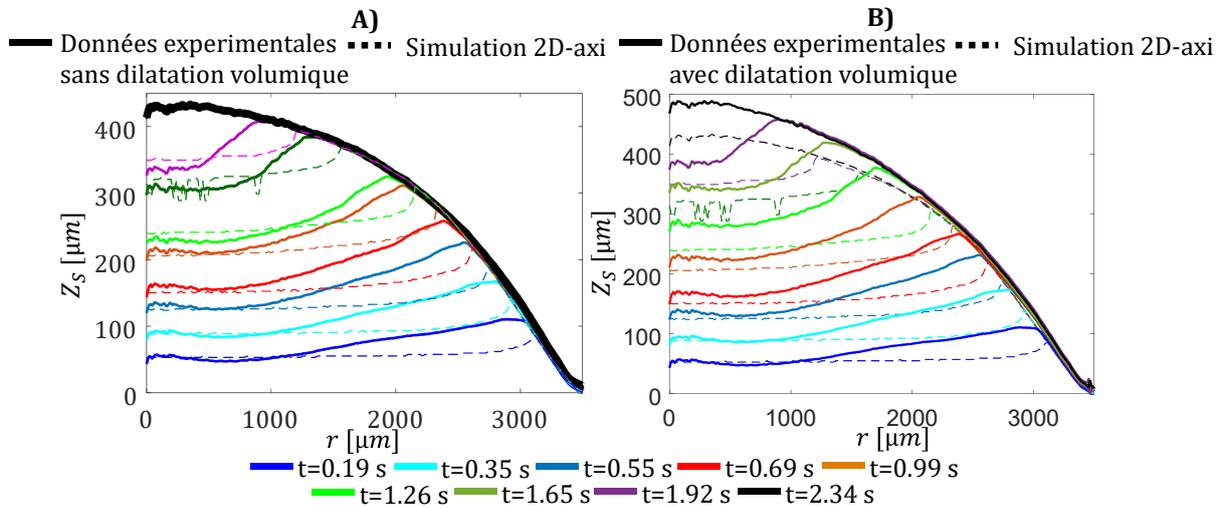


FIGURE 5.22 – Position du front de solidification déterminée expérimentalement A) en négligeant la dilatation volumique et B) en prenant en compte la dilatation volumique. Comparaisons avec des simulations 2D-axi. Les conditions de givrage sont les mêmes que celles présentées sur la Figure 5.18.

de l'évolution de la masse de glace m_s au cours du temps. La Figure 5.22 montre la position du front de glace déterminée par la simulation 2D-axi et les mesures LIF à différents instants. Comme nous l'avons déjà remarqué, la position du front de glace est assez bien prédite par la simulation, surtout si la dilatation volumique est négligée dans la reconstruction expérimentale du front de solidification (Figure 5.22 A)).

Cependant, pour la simulation, le front de glace est plat dans la majeure partie de la région centrale de la goutte alors qu'expérimentalement la forme est pratiquement sphérique. Afin de vérifier le caractère sphérique du front de solidification, un ajustement du

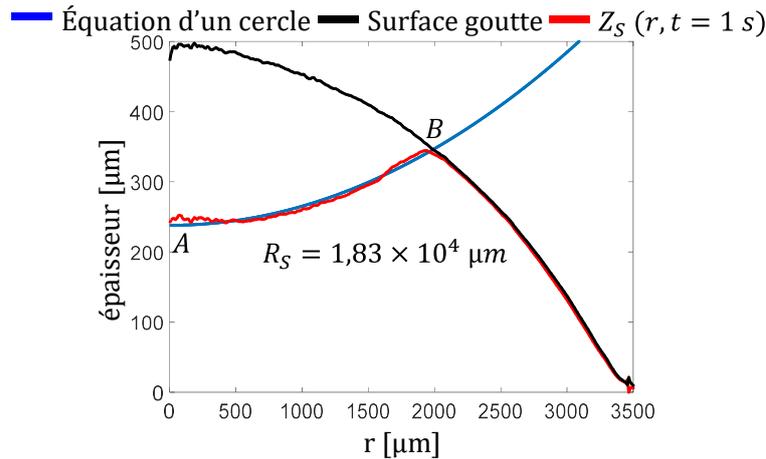


FIGURE 5.23 – Profil expérimental du front de glace à $t = 1$ s pour une goutte impactant un substrat en Duraluminium. R_S représente le rayon de courbure du cercle d'ajustement.

front par un cercle est réalisé à chaque instant. La Figure 5.23 présente cet ajustement du front expérimental par un cercle à un instant donné. La forme sphérique observée est conforme aux observations de Marín et al. [17] obtenues dans le cas d'une cellule de Hele-Shaw. La Figure 5.24 présente l'évolution temporelle de la masse de glace. Cette

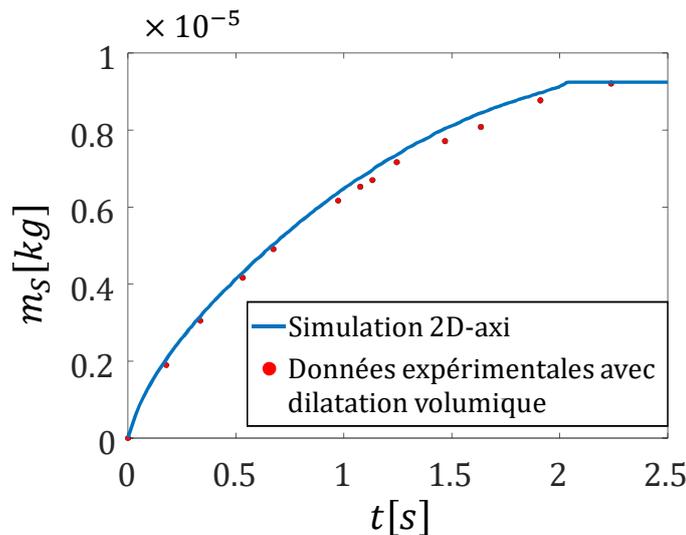


FIGURE 5.24 – Évolution temporelle de la masse de glace obtenue numériquement et expérimentalement. Les conditions expérimentales sont les mêmes que celles présentées à la Figure 5.18.

masse est déterminée en calculant le volume inclus sous le front de glace par intégration numérique. Pour les simulations, la densité de la glace est égale à celle du liquide car la dilatation volumique due au changement de phase ne peut être prise en compte dans le modèle. Un bon accord peut être observé entre les résultats numériques et ceux obtenus expérimentalement. Cela tendrait à dire que l'utilisation de la simulation 2D-axi permettrait de connaître avec une assez bonne précision l'évolution de la masse de glace au cours du temps sur une surface d'aile d'avion par exemple. Pour effectuer les comparaisons avec le modèle 2D-axi, il a été nécessaire de décaler dans le temps le début de la solidification. Cependant, ce décalage temporel, d'environ 15 ms, est assez modéré et peut s'expliquer par la présence de la fine couche de givre déjà présente sur le substrat avant l'impact des gouttes qui se comporte comme un isolant thermique. Des simula-

tions numériques ont montré que la couche glace agit comme isolant thermique et que la distance parcourue en 15 ms par le front de glace est d'environ 50 μm . Ce temps indique donc que la couche de givre présente avant impact est de l'ordre de 50 μm .

5.3.3 Solidification d'une goutte impactant une paroi de faible conductivité thermique

Après le cas du substrat de bonne conductivité thermique, la goutte impacte sur un substrat en N-BK7, d'une conductivité thermique 130 fois plus faible. La Figure 5.25 présente les résultats numériques et expérimentaux obtenus dans les mêmes conditions de givrage que dans le cas du Duraluminium (température initiale de la paroi T_0 de $-10\text{ }^\circ\text{C}$ et température initiale de la goutte T_∞ de $18\text{ }^\circ\text{C}$). Deux différences principales par rapport au cas du Duraluminium peuvent être clairement observées : la dynamique de solidification est beaucoup plus lente et le front de solidification prend la forme d'une cavité beaucoup plus profonde. Ces différences notables peuvent s'expliquer à partir de l'ana-

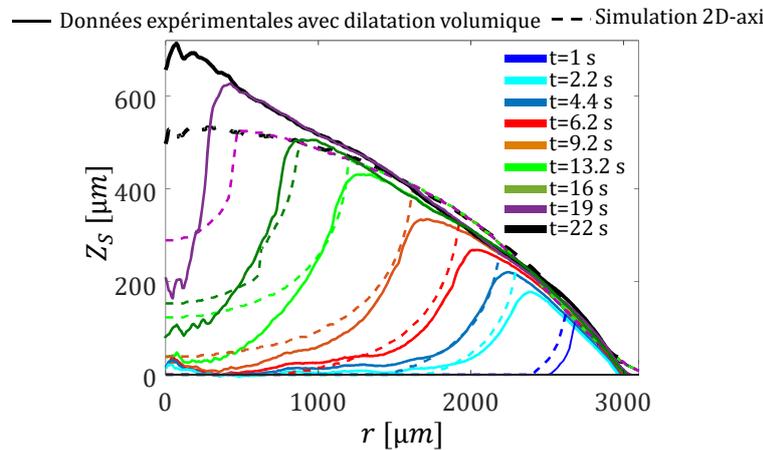


FIGURE 5.25 – Position du front de solidification déterminée en prenant en compte la dilatation volumique et d'une simulation 2D-axi dans le cas de l'impact d'une goutte à une température initiale de $18\text{ }^\circ\text{C}$ sur un substrat en N-BK7 à une température de $T_0 = -10\text{ }^\circ\text{C}$ et pour un Weber de 65.

lyse des transferts de chaleur entre le substrat et la goutte. Immédiatement après le dépôt de la goutte, la température à l'interface entre la goutte et la paroi atteint la température de contact thermique T_c définie par :

$$T_c = \frac{T_0 e_s + T_\infty e_L}{e_L + e_p} \quad (5.24)$$

où e_L et e_p sont respectivement l'effusivité thermique de l'eau liquide et du substrat ($e = \sqrt{k \rho C p}$). L'application de l'équation 5.24 conduit à une température de contact $T_c = 7\text{ }^\circ\text{C}$ dans le cas du substrat en N-BK7. Cette température de contact positive empêche donc la formation de glace pendant un certain temps. La Figure 5.26 A) représente l'évolution de la température à la surface du substrat (calculée par la simulation numérique 2D-axi) et permet de constater qu'une durée d'environ 10 s est nécessaire pour que la température de surface du substrat atteigne $0\text{ }^\circ\text{C}$ en $r = 0$. En revanche, la température de surface du substrat ne devient jamais positive au bord de la goutte (Figure 5.26 B)). Ce délai dans l'initiation de la solidification entre le centre et le bord de la goutte implique une propagation du front de solidification principalement radiale pendant les 10 premières secondes

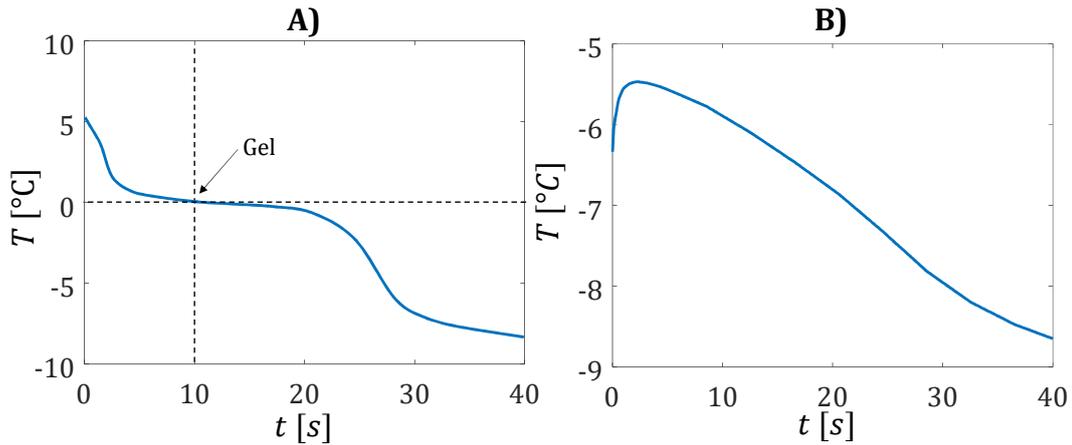


FIGURE 5.26 – Évolution de la température de surface du substrat en N-BK7 : A) au centre de la goutte, B) sur le bord de la goutte ($r = 3,2$ mm). Les conditions de givrage sont les mêmes que celles présentées sur la Figure 5.25.

après l'impact. Par conséquent, la vitesse de propagation verticale du front de glace est extrêmement faible, voire nulle, dans la région centrale (Figure 5.25). Ce processus se traduit

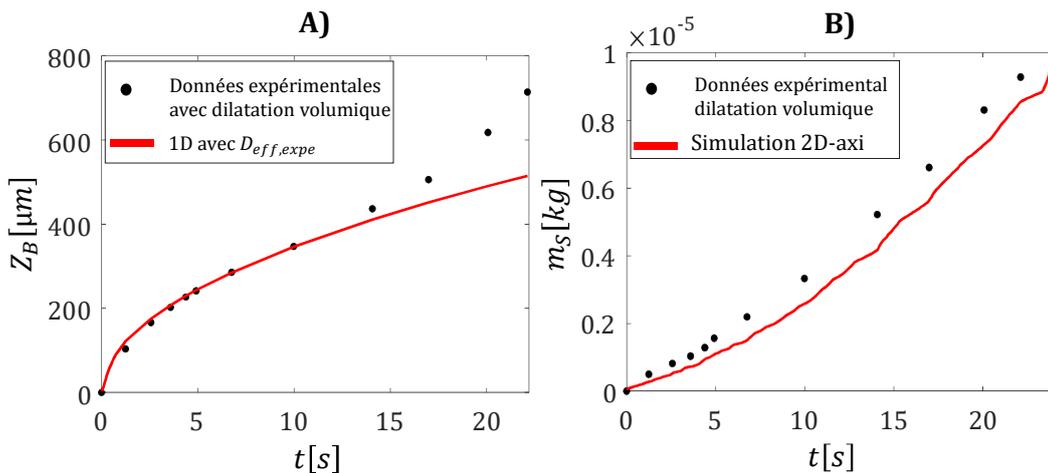


FIGURE 5.27 – Évolution temporelle de A) la position du front de glace à la tri-jonction air/liquide/solide (point B), et B) de la masse de glace obtenue numériquement et expérimentalement. Les conditions de givrage sont les mêmes que celles présentées sur la Figure 5.25.

alors par une concavité plus prononcée du front (et donc de l'angle γ sur la figure 5.17) qui contribue fortement à la formation d'une pointe. Par ailleurs, il est rappelé que cette pointe n'a jamais été observée dans le cas du Duralumin. Au contraire, la température de contact T_c pour le Duraluminium dans les mêmes conditions de givrage est d'environ -8 °C, ce qui indique que la solidification peut commencer immédiatement au centre de la goutte.

La Figure 5.27 A) représente l'évolution temporelle de Z_B . Aux temps courts, l'évolution de Z_B est assimilable à une racine carrée du temps, mais à partir de $t = 15$ s, la vitesse du point B augmente. Cette accélération se produit au cours de la dernière étape de la solidification lorsque la pointe se forme au sommet de la goutte. Évidemment, puisque la simulation 2D-axi ne tient pas compte de la dilatation volumique, cet effet n'est pas pris en compte dans les résultats de la simulation. La Figure 5.27 B) présente l'évolution temporelle de la masse de glace. Même si la simulation ne prédit pas parfaitement la forme

du front de glace, la masse de glace semble être évaluée assez correctement.

Cependant, il semble intéressant de noter que le front de solidification dans le cas du substrat en N-BK7 reste également sphérique comme pour le Duraluminium. La Figure 5.28 représente le front de solidification ajusté par un cercle à un instant donné.

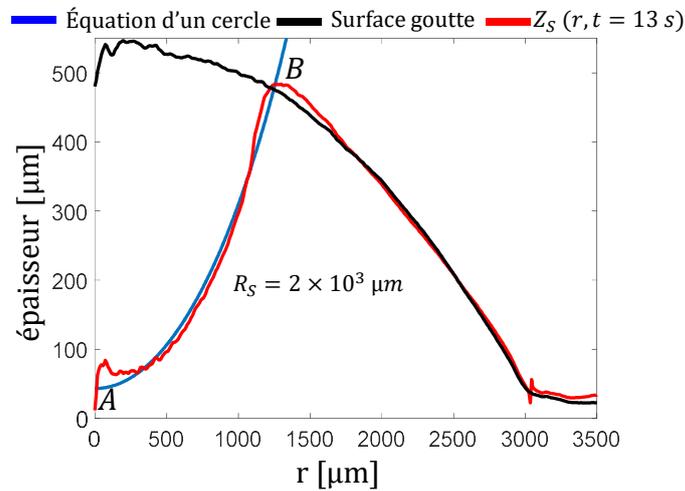


FIGURE 5.28 – Profil expérimental du front de glace à $t = 13 \text{ s}$ pour une goutte impactant le substrat en N-BK7. R_S représente le rayon de courbure du cercle ajusté au front de solidification.

5.3.4 Étude de la formation de la pointe

La formation de la pointe peut être décrite en tenant compte de la forme sphérique du front de solidification [17]. Pour les deux substrats, il a été vérifié que la forme du front de solidification était sphérique (Figures 5.28 et 5.23). Il est ainsi possible, en connaissant l'angle γ au niveau de la tri-jonction air/liquide/glace, de déterminer l'angle de la pointe. En considérant que le front est sphérique, il est possible d'exprimer une relation reliant les angles θ et γ [17] (la démonstration complète se trouve dans la section 2.1.3.3) :

$$f(\gamma - \theta) + f(\theta) = \psi \left(f(\gamma - \theta) + \frac{\pi}{3} \tan(\theta) \right) \quad (5.25)$$

En supposant que l'extrémité pointue est un cône d'angle α (Figure 2.15), l'équation précédente peut être utilisée pour déterminer sa valeur ($\alpha = \pi - 2\theta$) [17] [29]. Cependant, une condition supplémentaire sur l'angle γ au niveau de la tri-jonction solide/liquide/air (point B) est nécessaire pour résoudre le problème. Différentes possibilités ont été examinées dans la littérature, mais elles négligent généralement le fait que le front de glace soit sphérique. Snoeijer et al. [23] ont considéré qu'aucun point d'inflexion ne peut exister au niveau de la triple jonction. Cette hypothèse, combinée à un front de solidification horizontal et plat, leur permet de trouver une expression pour l'angle θ dépendant uniquement du rapport de densité ψ . D'autres conditions au niveau de la triple jonction ont été examinées par Anderson et al. [2], toujours dans le cas d'un front de solidification plat. Elles comprennent un angle de contact constant θ_0 , une ligne de contact fixée à la paroi, une évolution constante de l'angle ou encore une variation non linéaire de γ . La variation non linéaire de γ au cours du temps a été considéré, par ces auteurs, comme étant la condition la plus appropriée pour des rapports de densité ψ réalistes. Récemment, les observations de Marín et al. [17] ont suggérées que l'angle de la pointe α est indépendant de la température du substrat et de l'angle de contact de la goutte avec la surface. Dans leurs

conditions expérimentales, ils ont mesuré une valeur de α égale à environ 140° , quelque soient les conditions de gel. Dans la suite, nous étudierons l'évolution de l'angle γ et du

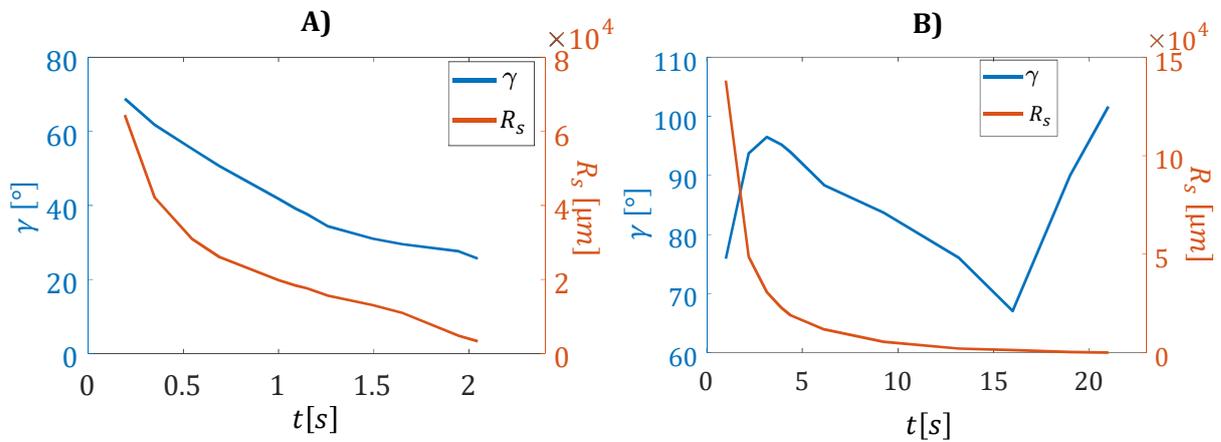


FIGURE 5.29 – Évolution du rayon de courbure R_s et de l'angle γ pour un substrat en A) Duraluminium, B) N-BK7 à une température de $T_0 = -10^\circ\text{C}$.

rayon du cercle équivalent R_s du front de solidification en fonction du temps pour les impacts sur un substrat en Duraluminium et en N-BK7. γ est obtenu à partir des Figures 5.22 B) et 5.25 tandis que R_s est obtenu en ajustant à chaque instant le front de solidification par un cercle équivalent. La Figure 5.29 présente l'évolution de l'angle de contact γ à la tri-jonction (point B) ainsi que le rayon de courbure R_s du front de solidification pour les deux substrats et les mêmes conditions d'impact que décrite précédemment. Pour les deux substrats, la dynamique de solidification induit un changement significatif de l'angle γ et du rayon de courbure R_s . Une diminution de R_s au cours du temps peut être observée pour les deux substrats. Cette diminution se caractérise par une augmentation du rayon de courbure du front de solidification au cours du temps. Dans le cas du substrat en Duraluminium γ diminue continuellement au cours du temps et atteint une valeur finale de 27° , ce qui conduit, sur la base de l'équation 5.25, à une valeur de α proche de 166° , alors qu'aucune formation de pointe (c'est-à-dire $\alpha = 180^\circ$) n'est observée expérimentalement. Cela signifie que le modèle de formation de la pointe n'est pas universel mais qu'il permet une assez bonne estimation de l'angle de pointe (erreur de 14° dans le cas du Duraluminium). Dans le cas du N-BK7, la valeur initiale de γ est sensiblement plus élevée en raison du fait que la solidification commence sur le bord de la goutte. La pointe émerge aux alentours de $t = 17\text{s}$ après que γ ait atteint sa valeur minimale d'environ 70° . La formation de l'extrémité pointue est associée à une forte augmentation de γ . À la fin du processus de solidification, γ est proche de 100° , ce qui est en accord relatif avec la valeur de $\gamma = 90^\circ$ observé dans [17]. En effet, une précision de $\pm 5^\circ$ est attendue dans l'estimation actuelle de γ . Avec cette valeur finale de γ , un angle de cône α de 125° peut être prédit par l'équation 5.25. Cette valeur est en bon accord avec la mesure de α obtenue à partir d'images en vue de côté (environ $120^\circ \pm 5^\circ$). Des études et mesures supplémentaires seraient nécessaires pour déterminer si des informations sur le front de solidification au sein de la goutte pourraient servir de conditions générales au point de tri-jonction pour résoudre le problème de la dynamique de solidification d'une goutte [29].

Comme précisé précédemment, les résultats obtenus jusqu'à maintenant ont été obtenus dans une atmosphère à humidité non contrôlée avec présence d'une fine couche de givre sur le substrat avant l'impact de la goutte. Cette couche de givre permet de s'affranchir de la phase de recalescence qui peut fortement modifier la forme du front de la

seconde phase de solidification [10]. Il est donc maintenant intéressant de s'intéresser à l'impact de gouttes sur une paroi sous-refroidie sèche.

5.4 Étude de la solidification d'une goutte avec phénomène de surfusion

Intéressons-nous maintenant aux impacts de gouttes sur une paroi sous-refroidie avec contrôle de l'humidité. Par la suite, toutes les expériences seront réalisées sur un substrat en Duraluminium. Afin de déterminer numériquement le temps de solidification numériquement, il est maintenant nécessaire de modifier le modèle précédent afin de prendre en compte le phénomène de surfusion induisant de fortes modifications dans la propagation du second front de solidification. Pour rappel, le premier front de solidification correspond à la phase de recalescence (dendrites) et se déroule durant un temps d'environ 5 ms tandis que le second front de solidification s'étend sur une durée bien plus longue dépendant de la hauteur de liquide à solidifier. Ces nouvelles expériences seront réalisées en utilisant le montage présenté sur la Figure 5.5. Les images en vue de côté seront obtenues par LIF en plaçant un filtre coupe bande (filtre notch centrée sur la fréquence de coupure de 532 nm de largeur 10 nm, OD6) devant la seconde caméra rapide (Figure 5.2).

5.4.1 Modélisation de la solidification

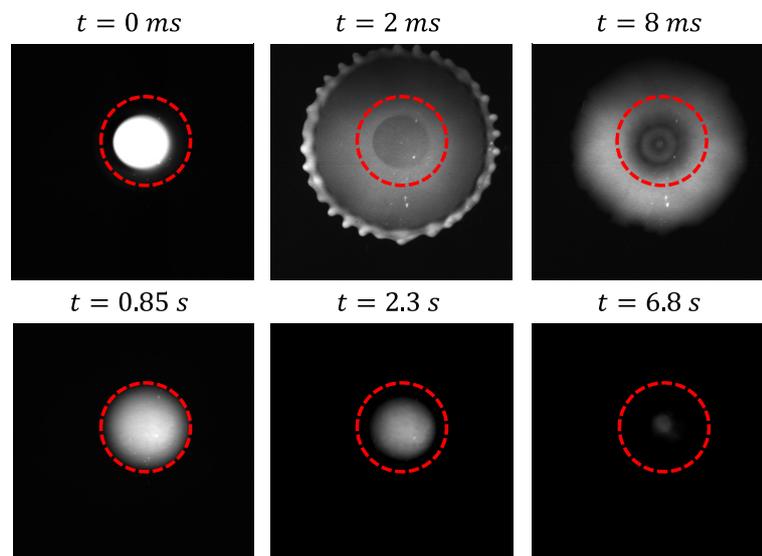


FIGURE 5.30 – Images de fluorescence en vue de dessus d'une goutte impactant un substrat de Duraluminium sous-refroidi à $-11\text{ }^{\circ}\text{C}$ dans une ambiance à humidité contrôlée. La température initiale de la goutte est de $16\text{ }^{\circ}\text{C}$ et le Weber d'impact est de 60. Le cercle en pointillés rouge correspond au diamètre de la goutte avant la phase de solidification.

La phase d'impact d'une goutte sur une paroi sous-refroidie sèche est totalement différentes de celle sur une paroi avec présence de givre. En effet, lors de l'impact sur une paroi sèche, une phase de rétraction de la goutte, après avoir atteint son étalement maximale, peut être observée. La Figure 5.30 présente une séquence d'images LIF en vue de dessus d'une goutte impactant le substrat de Dualuminium, sans présence de givre, à une température de $-11\text{ }^{\circ}\text{C}$ et pour un Weber de 260. L'existence d'une phase de rétraction avant solidification peut être observée, ce qui induit alors à une hauteur de goutte

plus importante avant solidification que dans le cas avec givre. Il est aussi possible de noter l'apparition de digitations sur le bord de la goutte à $t = 2 \text{ ms}$ du fait d'instabilités de Kelvin-Helmoltz [15]. Dans le cas de l'impact d'une goutte sur une paroi sèche, le liquide

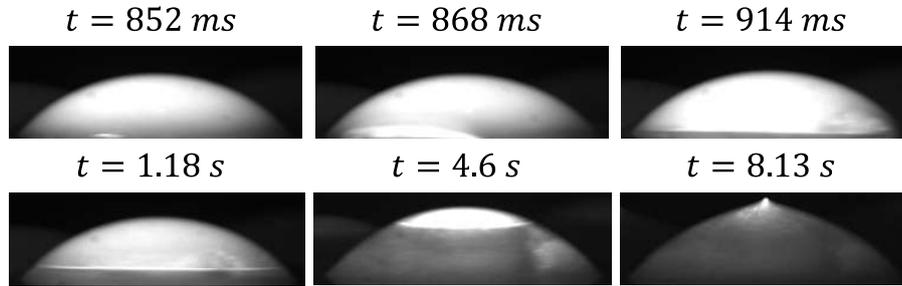


FIGURE 5.31 – Images de fluorescence en vue de côté de la solidification d'une goutte impactant une surface en Duraluminium dans les mêmes conditions que présentées sur la Figure 5.30.

reste surfondu durant la phase d'impact et une phase de recalescence peut être observée. Celle-ci est bien visible sur la Figure 5.31 dans le cas de l'impact précédent mais en utilisant les images en vue de côté. La phase de nucléation débute à $t = 852 \text{ ms}$ et il s'en suit une phase de propagation des dendrites dans le milieu liquide (recalescence) jusque $t = 914 \text{ ms}$, traduisant le passage du liquide à 0°C . La solidification se poursuit avec la seconde phase de solidification caractérisée par l'évolution du front de solidification dans un milieu liquide/solide ayant une fraction de glace χ_S dépendant de la température du liquide avant solidification :

$$\chi_S = \frac{C_{pL} \rho_L (T - T_{sol})}{\rho_S L} \quad (5.26)$$

Il est possible de distinguer deux cas de solidification en fonction de l'état de la goutte avant la phase de nucléation : i- la goutte est entièrement surfondue avant solidification ii- la goutte est partiellement surfondue avant solidification. Ces deux cas vont par la suite être tour à tour envisagés.

5.4.1.1 Solidification d'un liquide complètement surfondu avant solidification

Dans le cas d'une goutte à une température inférieure à 0°C avant la phase de solidification, c'est-à-dire pour une goutte complètement surfondue, la solidification se décompose en différentes étapes présentées à la Figure 5.32 :

- La goutte, au contact de la surface froide de température T_0 , se refroidit durant un temps t_{nucl} . Durant ce temps, les transferts thermiques entre la goutte et la surface sont purement conductifs.
- à l'instant $t = t_{nucl}$ - un gradient de température est présent dans la goutte. t_{nucl} est pris de telle sorte que la goutte soit totalement surfondue mais pas homogène en température.
- à l'instant $t = t_{nucl}^+$ le front de dendrite s'est propagé dans le milieu. Le temps de propagation est négligé devant le temps de solidification complet du milieu. Suite à la recalescence, le milieu sera considéré à une température homogène $T = 0^\circ\text{C}$ contenant une fraction de glace χ_S non homogène car elle dépend de la température du liquide avant la phase de recalescence.
- Le second front de solidification se déplace dans un milieu contenant une fraction de glace χ_S à une température homogène de 0°C .

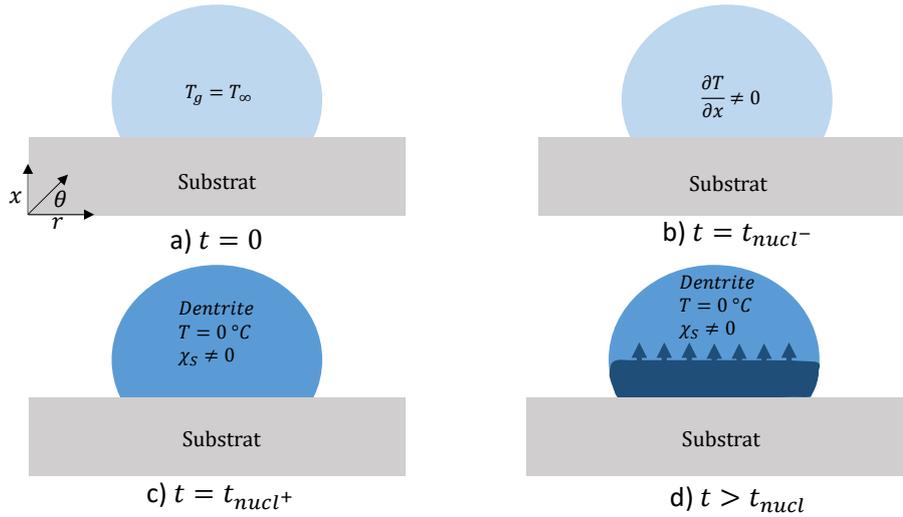


FIGURE 5.32 – Schéma du processus de solidification d'une goutte totalement surfondue avant la phase de recalescence.

Par la suite, le problème de solidification sera modélisé avec l'approximation de géométrie 1D (Figure 5.33). La première étape consiste à résoudre le problème de conduction de

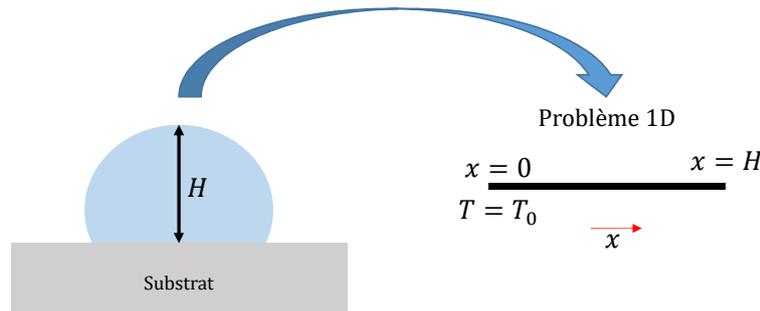


FIGURE 5.33 – Domaine de calcul et conditions aux limites prises en compte dans la résolution numérique 1D de la solidification d'une goutte.

la chaleur dans le milieu liquide pendant le temps t_{nucl} (Figure 5.32 a-b)) permettant ainsi d'obtenir la température du milieu avant la phase de recalescence. L'équation à résoudre est :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (5.27)$$

Un flux nul est considéré en $x = x_\infty$:

$$\left. \frac{dT}{dx} \right|_{x=x_\infty} = 0 \quad (5.28)$$

La température de surface est imposée en $x = 0$:

$$T(0, t) = T_0 \quad (5.29)$$

Il convient donc de résoudre les équations précédentes durant un temps t_{nucl} . A $t = t_{nucl+}$, le milieu est à une température homogène de 0 °C avec une fraction de glace $\chi_S(x)$ dépendant du champ de température à t_{nucl-} (avant recalescence). Cette fraction de glace $\chi_S(x)$ est obtenue en utilisant l'équation 5.26.

A titre d'exemple, à l'issue de cette résolution, la Figure 5.34 A) présente le profil de température dans le cas d'un milieu liquide de $x_\infty = 1$ mm à une température initiale de $T_\infty = 13$ °C, une température de surface de $T_0 = -15$ °C et pour un temps avant recalescence t_{nucl} de 4 s. Le profil de la fraction de glace, calculée à partir de l'équation 5.26,

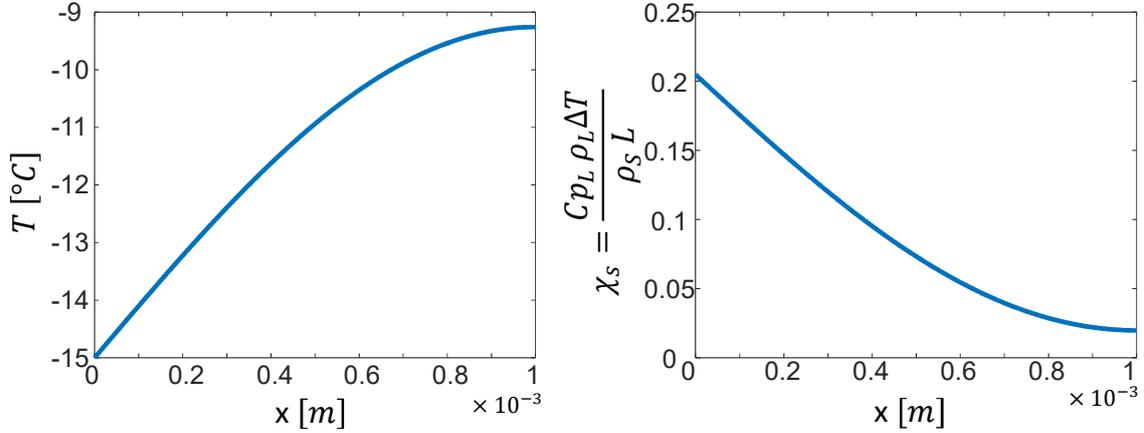


FIGURE 5.34 – A) Profil de température calculé numériquement pour une longueur de domaine de 1 mm, une température initiale de $T_\infty = 13$ °C, une température de surface $T_0 = -15$ °C et un temps avant nucléation t_{nucl} de 4 s, B) profil de fraction de glace obtenu après la phase de recalescence dans les conditions A).

est présenté à la Figure 5.34 B). Par la suite, il est nécessaire de déterminer l'évolution du front de solidification dans le milieu dendrifié. Le modèle précédent (Section 5.3.1.2) implémenté sur COMSOL ne peut plus être employé comme tel dans le cas d'un front de solidification évoluant maintenant dans un milieu à la température de solidification du liquide. En effet, précédemment, l'état du milieu (liquide ou solide) était déterminé par l'indicateur de phase μ , ce qui est impossible dans le cas présent. Il est donc nécessaire de mettre en place un nouveau modèle permettant la résolution de l'évolution du front de solidification dans un milieu initialement à la température de solidification présentant un gradient de fraction de glace. Le problème de solidification consiste à résoudre les équations suivantes pour un temps $t > t_{nucl}$ dans le cadre d'une hypothèse 1D :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_L \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad (5.30)$$

Le milieu est initialement à une température homogène de 0 °C :

$$T(x, t = 0) = T_{sol} \quad x > 0 \quad (5.31)$$

La température de surface est considéré constante :

$$T(0, t) = T_0 \quad (5.32)$$

Afin de fermer le problème, il est nécessaire d'écrire la condition de Stefan à l'interface liquide/solide :

$$-\rho L (1 - \chi_S(x)) \frac{\partial X}{\partial t} = k_S \left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{X(t)^-}, \quad t > 0 \quad (5.33)$$

avec k_S la conductivité thermique de la phase solide. La chaleur latente (L) est pondérée par la fraction de glace volumique $\chi_S(x)$ afin de prendre en compte la diminution de l'énergie nécessaire à la formation de l'interface liquide/solide. Comme vu au Chapitre 2,

une solution analytique peut être obtenue en introduisant un changement de variable autosimilaire $\zeta = x/\sqrt{t}$. La Figure 5.35 présente un exemple typique de l'évolution du front de solidification obtenu en résolvant le problème classique 1D de Stefan, dans le cas d'un milieu semi-infini pour une température initiale de 0 °C, une fraction de glace constante de 0,2 et une température de substrat maintenue à -15 °C. Afin de résoudre le problème numériquement, le changement de variable $\zeta' = x/X(t)$ et $M = X(t)^2$ est introduit dans l'équation 5.30 :

$$M \frac{\partial T}{\partial t} - \frac{\zeta'}{2} \frac{dM}{dt} \frac{dT}{d\zeta'} = D_L \frac{\partial^2 T}{\partial \zeta'^2} \quad (5.34)$$

L'équation précédente est résolue par différences finies à l'aide d'un algorithme utilisant

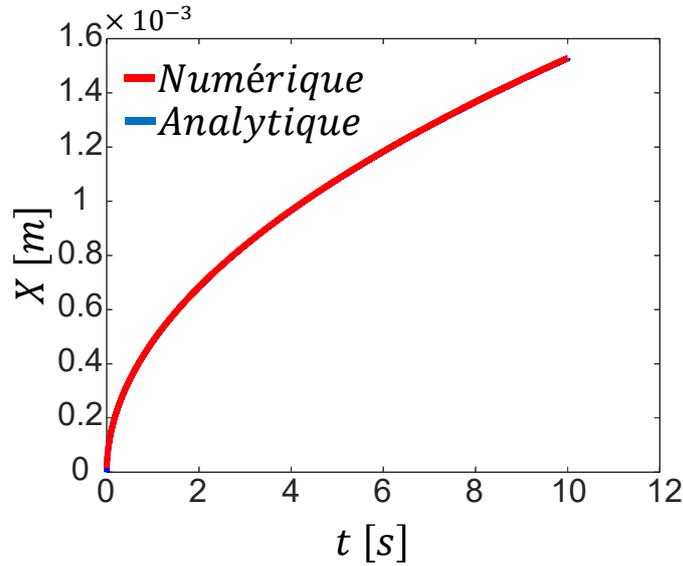


FIGURE 5.35 – Comparaison entre le modèle analytique 1D et la solution numérique 1D pour l'évolution temporelle de la position de l'interface liquide/solide dans le cas d'un milieu présentant une fraction de glace initiale de 0,2, une température du milieu de 0 °C et une température de surface de $T_0 = -15$ °C.

la méthode de Crank-Nicolson et avec une condition de Stefan en $\chi' = 1$:

$$\frac{\rho L(1 - \chi_S(x))}{2 k_S} \frac{dM}{dt} = - \frac{dT}{d\zeta'} \quad (5.35)$$

La température à l'interface liquide/solide est fixée à la température de solidification du liquide :

$$T = T_{sol} \quad \text{en} \quad \zeta' = 1 \quad (5.36)$$

La température de surface en $x = 0$ est fixée à T_0 :

$$T = T_0 \quad \text{en} \quad \zeta' = 0 \quad (5.37)$$

La solution numérique du problème de solidification issue d'une résolution implémentée sur Matlab est comparée à la solution analytique dans le cas d'un milieu liquide à une température initiale de 0 °C contenant une fraction de glace constante de 0,2 et une température de substrat constante de -15 °C (Figure 5.35). Comme montrée à la Figure 5.35 la résolution numérique du nouveau modèle permet une bonne résolution du problème de solidification dans un milieu à la température de solidification d'un liquide et contenant une fraction de glace. La Figure 5.36 présente l'effet de l'évolution de la fraction de glace

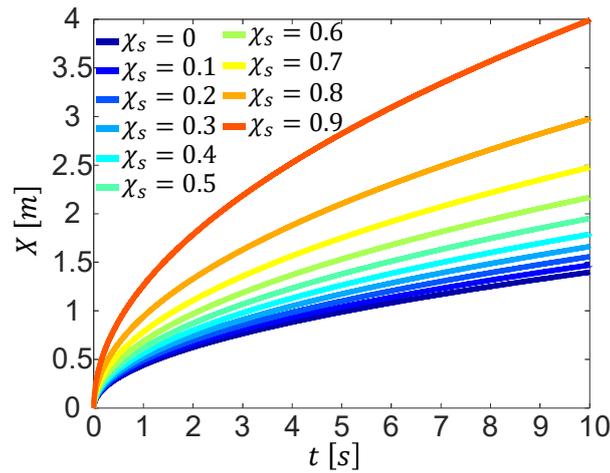


FIGURE 5.36 – Évolution temporelle de la position de l'interface liquide/solide pour différentes fractions de glace dans le milieu.

dans le milieu mixte dans la gamme $[0; 0,9]$ sur l'évolution temporelle du front de solidification pour une température de substrat constante de -15 °C . La vitesse de solidification du front est dépendant de la fraction de glace présente dans le milieu pendant la phase de solidification. Intéressons-nous maintenant à l'évolution du front de solidification dans le cas d'une fraction de glace variable dans l'espace telle que celle issue de la Figure 5.34 B). La Figure 5.37 compare l'évolution temporelle du front de solidification dans le cas d'une fraction de glace constante avec celle dans le cas d'une fraction de glace variable dans l'espace. Comme attendu, le front de solidification se déplace plus lentement dans le cas de la fraction de glace variable. En effet, la fraction de glace diminue au cours du temps, induisant alors un ralentissement de la propagation du front dans le milieu. Ce ralentissement provient de la nécessité d'une énergie plus importante pour la création de l'interface liquide/solide dans le cas d'une fraction de glace plus faible. Numériquement,

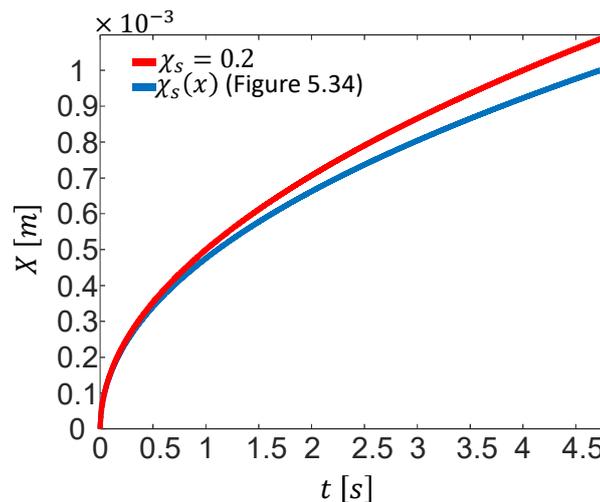


FIGURE 5.37 – Comparaison de l'évolution temporelle de la position de l'interface liquide/solide pour une fraction de glace constante de 0,2 et une fraction de glace variable (présentée sur la Figure 5.34 B)).

il est possible d'étudier l'influence de la hauteur H (Figure 5.33) du milieu et de la température de substrat sur le temps de solidification. La Figure 5.38 présente la durée de la solidification (t_{sol}) en fonction de la température du substrat (variant dans la gamme $[-$

10; $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$) et pour, une hauteur de 0,8 mm, 1 mm et 1,2 mm et un temps avant nucléation de 4 s. Pour une hauteur donnée, le temps de solidification est inversement proportionnel à la température du substrat. Cet effet se caractérise par deux phénomènes :

1. La dépendance de la vitesse de solidification à la température de paroi (équation 5.10).
2. L'augmentation de la fraction de glace avec la diminution de la température du substrat pour un temps avant nucléation constant.

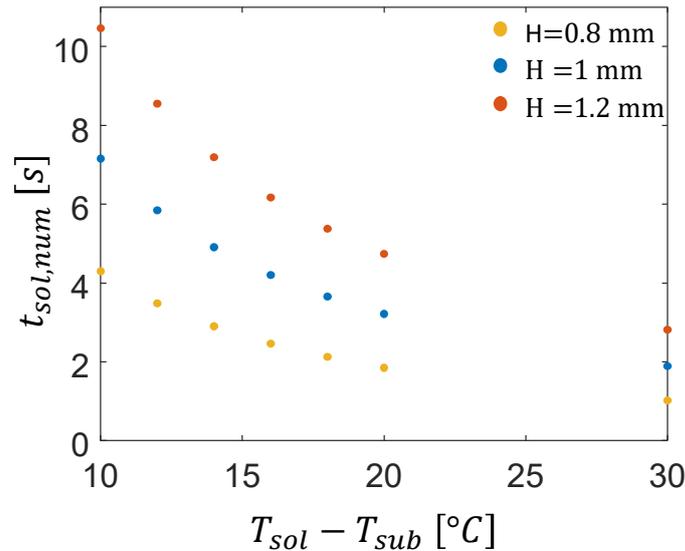


FIGURE 5.38 – Évolution du temps de solidification en fonction de la température de surface pour différentes hauteurs H du milieu liquide et un temps avant nucléation de 4 s.

La Figure 5.38 permet aussi de mettre en évidence que le temps de solidification t_{sol} augmente avec la hauteur H du milieu. En effet, l'augmentation de la hauteur H se caractérise par une augmentation de la résistance thermique entre le milieu liquide et le substrat.

Enfin, la Figure 5.39 présente l'évolution du temps de solidification en fonction de la température du substrat pour différents temps avant nucléation. Le temps de nucléation correspond au temps durant lequel la goutte est supposée échanger de la chaleur par conduction thermique avec le substrat. Ainsi, plus ce temps est long, plus la température de la goutte est faible. Cette dépendance du temps de solidification au temps de nucléation provient de la diminution de la température du liquide avant nucléation et donc de l'augmentation de la fraction de glace (après recalescence) avec l'augmentation de t_{nucl} . L'étude numérique précédente a été menée dans le cas d'un milieu complètement surfondu, ce qui correspondrait après la phase de recalescence à un milieu homogène en température pouvant présenter un gradient de fraction de glace avant la phase d'évolution du second front de solidification. Par la suite, nous allons nous intéresser au cas d'un liquide partiellement surfondu avant la phase de recalescence.

5.4.1.2 Solidification d'un liquide partiellement surfondu

Dans certains cas, il est possible que la goutte ne soit pas totalement surfondu. Le processus de solidification dans ce cas est différent des cas précédents et est résumé à la Figure 5.40 :

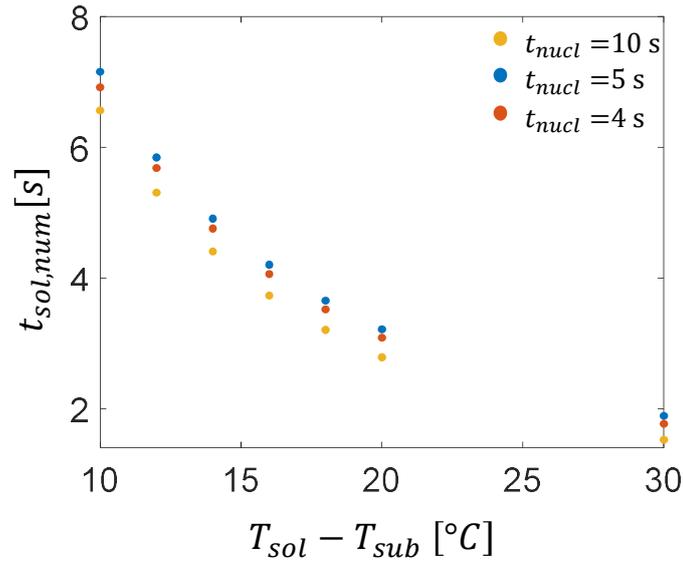


FIGURE 5.39 – Évolution du temps de solidification en fonction de la température de surface du substrat pour une hauteur du milieu $H = 1$ mm et différents temps avant nucléation.

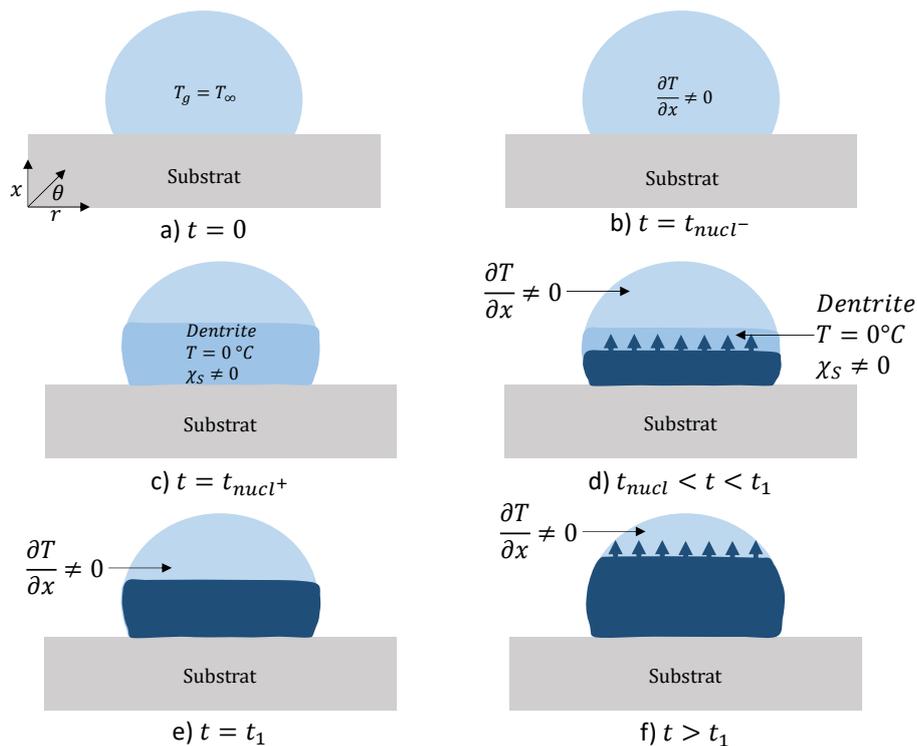


FIGURE 5.40 – Schéma du processus de solidification d'une goutte partiellement surfondue avant la phase de recalescence.

- La goutte, au contact de la surface froide de température T_0 , se refroidit durant un temps t_{nucl} . Durant ce temps, les transferts thermiques entre la goutte et la surface sont purement conductifs.
- à l'instant $t = t_{nucl-}$ un gradient de température est présent dans la goutte. Dans le cas présent $t = t_{nucl-}$ est choisie de telle sorte que la position de l'isotherme $0^{\circ}C$ notée (X_0) soit inférieure à la hauteur maximale de la goutte ($X_0 < H$).
- à l'instant $t = t_{nucl+}$ le front de dendrite s'est propagé dans le milieu jusqu'à l'iso-

therme $0\text{ }^{\circ}\text{C}$. Comme précédemment le temps de propagation des dendrites est négligé devant le temps de solidification complet du milieu. Suite à la recalescence, le milieu sera supposé comme étant composé d'une zone mixte à une température homogène $T = 0\text{ }^{\circ}\text{C}$ contenant une fraction de glace χ_S non homogène et une zone purement liquide présentant un gradient de température.

- d) Le second front de solidification se déplace dans le milieu mixte contenant une fraction de glace $\chi_S(x)$ à une température de $0\text{ }^{\circ}\text{C}$.
- e) Le front de solidification dans le milieu mixte a atteint l'isotherme $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ définie initialement en $x = X_0$.
- f) Le front de solidification se propage maintenant dans un milieu purement liquide présentant un gradient de température. Cette phase de solidification est similaire à celle modélisée en section 5.3.1.2.

Afin de modéliser l'évolution du front de solidification d'un liquide partiellement surfondu, il est nécessaire de coupler les différents modèles de solidification présentés dans les sections 5.3.1.2 et 5.4.1.1. La méthode de résolution du problème de solidification en fonction de la hauteur X_0 est résumée sur la Figure 5.41. La résolution du problème consiste donc, dans une première étape, à considérer un milieu liquide à une température initiale T_{∞} de hauteur H (Figure 5.33) soumis à une condition de température imposée en $x = 0$ égale à T_0 pendant un temps t_{nucl} . Ensuite, pour $t > t_{nucl}$, une température de $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ est imposée avec une fraction de glace (dépendant de la température à $t = t_{nucl}$ pour $x \geq X_0$, X_0 correspondant à la position de l'isotherme $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $t = t_{nucl}$). Le front de solidification est ensuite calculé dans le milieu mixte par la résolution précédente jusque X_0 . Soit $t = t_1$ l'instant où le front de solidification a atteint X_0 , si $X_0 \geq H$ alors le temps de solidification numérique est égale à t_1 , comme dans le cas de la solidification d'un milieu complètement surfondu avant la recalescence. A l'inverse, si $X_0 < H$, il est nécessaire de déterminer l'évolution du front de solidification dans le milieu purement liquide afin de déterminer le temps de solidification complet (égale à t_2). Cette étape est réalisée à l'aide du modèle 1D présenté dans la section 5.3.1.2.

Dans le cas d'une hauteur $H = 1\text{ mm}$ et d'une température de substrat T_0 de $-15\text{ }^{\circ}\text{C}$, l'évolution de la position de l'isotherme X_0 et du temps de solidification obtenu numériquement $t_{sol,num}$ en fonction du temps avant recalescence t_{nucl} est présentée à la Figure 5.42. Une augmentation de X_0 avec le temps t_{nucl} est observée, caractérisé par l'intensification du refroidissement du liquide. Dans le cas de cet exemple, il est intéressant de noter que pour un temps $t_{nucl} < 3\text{ s}$ le milieu est partiellement surfondu tandis que pour un temps $t_{nucl} > 3\text{ s}$, le milieu est totalement surfondu. L'augmentation de X_0 avec le temps avant nucléation t_{nucl} se traduit par une diminution du temps de solidification (Figure 5.42 B)). Le temps de solidification dépend donc fortement du temps avant nucléation ou une augmentation de celui-ci intensifie les transferts de chaleur entre la goutte et le substrat froid, induisant ainsi une augmentation du degré de surfusion de la goutte avant la phase de recalescence. L'augmentation du degré de surfusion induit à son tour une augmentation de la fraction de glace dans le milieu après la phase de recalescence, ce qui conduit à une augmentation de la vitesse de solidification liée au second front. Il est ainsi nécessaire, afin de déterminer l'évolution du front de solidification dans le milieu, de déterminer la température du liquide avant recalescence, permettant ainsi de choisir le type de modélisation à adopter; totalement surfondu ou partiellement surfondu. Dans la suite, afin d'étudier le temps de solidification après le temps de nucléation, nous adopterons le changement de variable $t' = t - t_{nucl}$. Nous définirons H comme la hauteur maximale d'une goutte (hauteur au centre de la goutte en $R = 0$) avant l'apparition du premier germe solide obtenu expérimentalement (Figure 5.33).

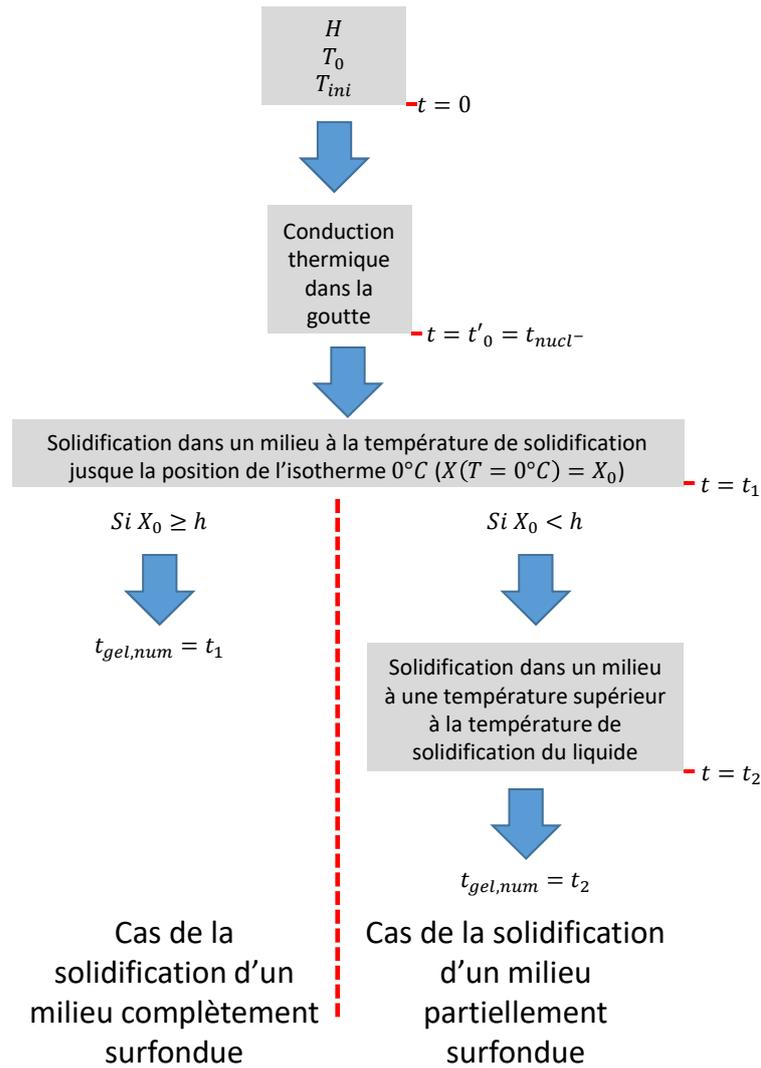


FIGURE 5.41 – Résumé des différents modèles de solidification mis en œuvre en fonction de la hauteur de l'isotherme 0 °C.

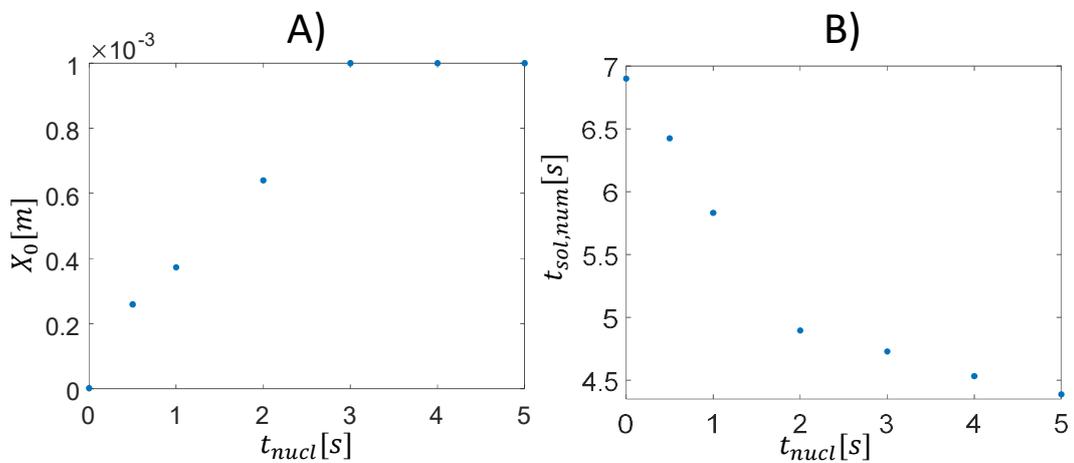


FIGURE 5.42 – A) évolution de la position de l'isotherme 0 °C en fonction du temps avant nucléation. B) Évolution du temps de solidification en fonction du temps avant nucléation.

5.4.2 Solidification d'une goutte impactant une paroi en Duraluminium

5.4.2.1 Comparaisons des temps de solidification expérimentaux et numérique

L'objectif est tout d'abord de comparer les temps de solidification expérimentaux $t_{sol,expe}$ avec ceux obtenus numériquement $t_{sol,num}$. Pour cela, le dispositif expérimental présenté précédemment sur la Figure 5.5 est utilisé à nouveau pour étudier la solidification d'une goutte impactant un substrat solide sous-refroidi en absence d'une couche préalable de givre. Par la suite, le diamètre de la goutte sera de $2,6\text{ mm}$ et la température de la goutte avant impact est fixée à 16 °C . Le phénomène de nucléation sur une paroi sèche étant un phénomène stochastique [27], il est alors impossible de contrôler expérimentalement le temps avant la recalescence. Ainsi, il a été choisi de focaliser l'étude sur les cas de la solidification intervenant après la phase de rétraction ($t_{nucl} > 6\text{ ms}$). Afin de comparer les temps de solidification obtenus à partir du modèle présenté sur la Figure 5.41, différentes expériences sont menées pour différentes températures de surface et différents Weber d'impact (Tableau 5.2).

	$T_0\text{ [°C]}$	$t_{nucl}\text{ [s]}$	$t'_{sol}\text{ [s]}$	$H\text{ [mm]}$
$We = 60$	$[-16; -20]$	$[0, 1; 6, 3]$	$[4, 67; 7, 4]$	$[1, 3; 1, 4]$
$We = 120$	$[-11, 6; -18]$	$[0, 08; 6]$	$[4, 3; 6, 65]$	$[1, 08; 1, 16]$
$We = 160$	$[-11; -17]$	$[0, 0064; 0, 12]$	$[0, 96; 7, 4]$	$[0, 47; 1]$
$We = 260$	$[-11; -17]$	$[0, 072; 4, 4]$	$[2, 84; 6, 4]$	$[0, 8; 1, 12]$

TABLEAU 5.2 – Conditions d'impacts testées.

Rappelons tout d'abord qu'il est impossible de contrôler le temps de nucléation t_{nucl} . Ainsi, il apparaît une variation de la hauteur maximale de la goutte H et de l'angle de contact entre le goutte et le substrat θ_0 . La Figure 5.43 A) présente l'évolution du temps

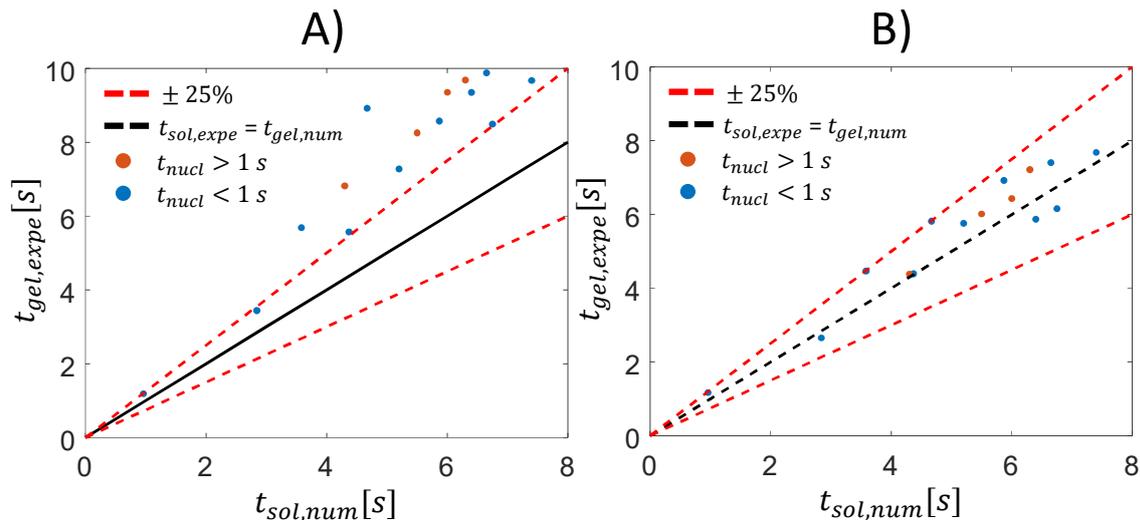


FIGURE 5.43 – Comparaisons entre les temps de solidifications obtenus expérimentalement et numériquement dans le cas A) de la modélisation 1D semi-infini (section 5.3.1.1) et dans le cas B) du modèle développé dans les sections 5.4.1.1 et 5.4.1.2.

de solidification obtenu à partir du modèle de Stefan (section 5.3.1.1), dans le cas d'un front de solidification évoluant dans un milieu à une température égale à la température initiale du liquide, en fonction du temps de solidification observé expérimentalement.

Cette modélisation conduit à des temps de solidification très différents de ceux mesurés expérimentalement. Ceci montre qu'il est indispensable de prendre en compte le refroidissement de la goutte avant la nucléation. Ainsi, la Figure 5.43 B) compare les temps de solidification expérimentaux avec ceux obtenus numériquement en utilisant la démarche présentée dans la section 5.4.1.1 et 5.4.1.2. L'utilisation du modèle prenant en compte les phénomènes de surfusion et de recalescence permettent de diminuer significativement la différence entre les temps de solidifications expérimentaux et ceux calculés à l'aide des simulations numériques. Globalement, les temps de solidification obtenus numériquement restent toutefois supérieurs à ceux obtenus expérimentalement. Ces différences peuvent s'expliquer par différents phénomènes :

- Comme constaté à partir de la Figure 5.42 B), le temps de solidification dépend du temps écoulé avant l'apparition du premier germe solide. En particulier, ce temps diminue avec l'augmentation du temps de refroidissement du liquide au contact du substrat. En effet, la diminution de la température du liquide induit une augmentation de la fraction de glace après la phase de recalescence qui accentue la vitesse de propagation du second front de solidification (Figure 5.36). Le modèle adopté ici considère des transferts purement conductifs entre la goutte et la paroi solide, même durant la phase d'impact. Or, durant la phase d'impact, les transferts de chaleurs entre la goutte et le substrat solide sont augmentés du fait de transferts convectifs dans la goutte [4]. Il est donc possible que la température obtenue numériquement avant la phase recalescence soit supérieure à la température réelle : ainsi de ce fait, le temps de solidification numérique serait plus long que celui mesuré expérimentalement. Afin d'améliorer la modélisation actuelle et ainsi réduire le temps de solidification obtenu numériquement, il serait nécessaire de prendre en compte des effets convectifs dans la goutte.
- Le modèle numérique de solidification ne prend pas en compte les effets convectifs induit par le changement de phase [21] [1]. Il a été montré par Vasiliou et al. [1] que la vitesse du second front de solidification pouvait être 3% plus importante en prenant en compte les effets convectifs induits par la différence de masse volumique entre les phases liquide et solide. De récents travaux menés par Karlsson et al. [12] tendent à montrer qu'il est nécessaire de prendre en compte la convection induite par l'effet Marangoni qui peut modifier le temps de solidification de la goutte.
- Comme montré dans la Section 5.3, le temps de solidification obtenus à partir de la résolution du problème 1D de Stefan est inférieur à celui obtenu à partir d'un modèle 2D-axi en dimension finie et à celui obtenu expérimentalement. Ces différences ont été mises en évidence dans le cas d'un substrat en Duraluminium pour lequel la diffusivité effective D_{eff} obtenue expérimentalement et en simulation 2D-axi était supérieure à celle obtenue par le modèle 1D semi-infinie.

Il serait donc judicieux d'améliorer la modélisation du phénomène de solidification d'une goutte impactant un substrat solide en prenant en compte les transferts de chaleurs durant la phase d'impact. Pour cela, il sera nécessaire d'analyser l'évolution du front de solidifications dans une goutte au cours du temps.

5.4.2.2 Dynamique du front de solidification

L'objectif est de s'intéresser à la dynamique de solidification reconstruit par LIF dans le cas d'une goutte impactant sur une paroi sèche. Notons que l'ensemble des expériences menées sur des gouttes impactant une paroi en Duraluminium sans présence de givre ont conduit à la formation d'une pointe contrairement au cas où il y a présence de givre.

Le front de solidification est reconstruit dans le cas expérimental d'une goutte à une température initiale T_∞ de 16 °C impactant un substrat en Duraluminium à une température de -14 °C pour un nombre de Weber de 260 et un temps avant nucléation t_{nucl} de 4 s. Les Figures 5.44 A) et 5.44 B) présente respectivement la reconstruction du front de solidification au cours du temps sans prise en compte de la dilatation volumique et avec sa prise en compte. Comme précédemment, il est possible de montrer que le front

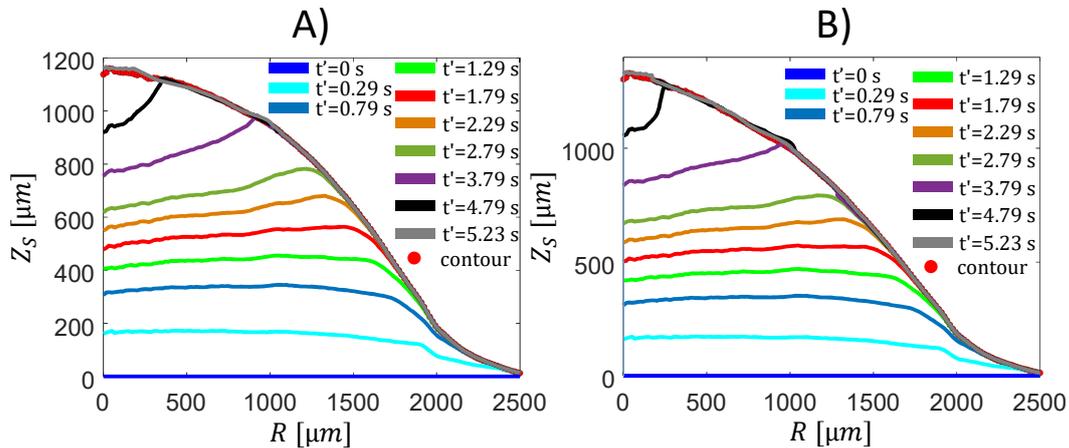


FIGURE 5.44 – Position du front de solidification déterminée A) en négligeant la dilatation volumique B) et en prenant en compte la dilatation volumique pour une goutte impactant un substrat en Duraluminium de température $T_0 = -14$ °C. Le temps avant nucléation t_{nucl} est de 4 s et le Weber d'impact est de 260.

de solidification est sphérique à tout instant et que le rayon de courbure de celui-ci augmente au cours du temps. Concentrons-nous sur l'évolution du front de solidification au centre (point A) et sur le bord de la goutte (point B). La Figure 5.45 A) présente l'évolution temporelle de la position verticale Z_B du point B pour les mêmes conditions que celles présentées sur la Figure 5.44. L'analyse des résultats montre que Z_B évolue en sui-

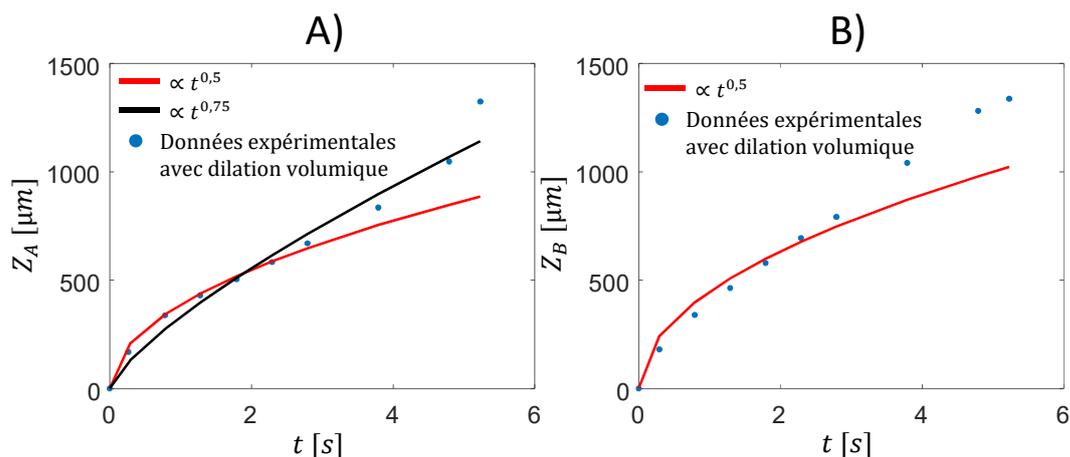


FIGURE 5.45 – Évolution de A) la position du front de glace au centre (point A) et B) à la tri-jonction air/liquide/solide (point B) en fonction du temps pour $T_0 = -14$ °C et $t_{nucl} = 4$ s.

vant approximativement une racine carrée du temps durant les premiers instants du processus de solidification jusqu'à l'apparition de la pointe comme cela avait été observée sur la Figure 5.27 A) dans le cas du substrat en N-Bk7. Notons $D_{eff,1D,T_\infty}$ et $D_{eff,1D,T_{sol}}$ respectivement les valeurs de D_{eff} , dans le cas de la solution analytique de l'évolution

du front de solidification dans un milieu à une température T_∞ et dans un milieu à une température T_{sol} . Les valeurs $D_{eff,1D,T_\infty} = 1,5 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et $D_{eff,1D,T_\infty} = 1,85 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ sont obtenues. Le meilleur ajustement des données expérimentales est obtenu pour $D_{eff,exp} = 2,2 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Cette valeur est bien supérieure à celle obtenue numériquement du fait de la non prise en compte des différents phénomènes décrits ci-dessus qui conduiraient à une augmentation de ce paramètre. Notons qu'après environ 3 s, la vitesse du point B augmente jusqu'à la fin de la solidification et lorsque la pointe se forme au sommet de la goutte. La Figure 5.45 B) présente l'évolution temporelle de la position verticale Z_A du point A . Comme montré numériquement sur la Figure 5.21, l'évolution du front de solidification suit une évolution en racine du temps durant les premiers instants puis s'accélère du fait de la dimension finie du problème.

5.4.2.3 Étude de la formation de la pointe

L'évolution de l'angle γ durant le processus de solidification et son influence sur l'angle de la pointe en fin de solidification a été examinée. Comme précisé auparavant, les recherches menées par Marin et al. [17] tendent à montrer que l'angle γ , et donc aussi l'angle de la pointe α , sont indépendants des conditions de refroidissement et de l'angle de contact que fait la goutte avec le substrat. Récemment les travaux menés par Zhang et al. [29] montrent que γ est dépendant de l'angle de contact θ_0 entre la goutte et le substrat solide. Le modèle adopté permettant la modélisation de l'évolution de l'angle γ au cours du temps est décrit par l'équation 2.54. L'objectif ici est de s'intéresser à l'évolution de γ en fonction de l'angle de contact θ_0 que fait la goutte avec le substrat.

Expérimentalement, la modification de l'angle de contact θ_0 , entre la goutte et le substrat solide, peut être obtenue par le changement de la nature du substrat. Néanmoins, il a été vu dans la section 5.3 que la conductivité thermique de la surface avait une influence sur l'évolution de l'angle γ au cours du temps. Ainsi, afin de maintenir constante la nature du substrat, la modification de l'angle de contact est réalisé en faisant varier le nombre de Weber et ainsi le temps avant nucléation. Ces modifications conduisent à un angle de contact θ_0 avant solidification différent (Tableau 5.3).

	θ_0 [°]	$\alpha_{\text{côté}}$ [°]	α_{LIF} [°]
$We = 60$	70	133	146
$We = 260$	52	134	149
$We = 160$	40	138	154

TABLEAU 5.3 – Valeurs des angles de contacts considérés et des angles de pointe obtenus par LIF et par visualisation direct (LIF en vue de côté).

La Figure 5.46 A) présente l'évolution temporelle de l'angle γ pour trois angles de contact avant solidification. Comme montré sur la Figure 5.9, l'angle θ_0 ne peut être obtenu sans biais par LIF en vue de dessus, cette valeur est donc obtenue à partir des images en vue de côté. Une dépendance de γ par rapport à l'angle de contact initial est donc observée, ce qui est conforme à la littérature [29]. Afin de déterminer une tendance universelle pour l'évolution de γ en fonction du temps, Zhang et al. [29] proposent une normalisation par rapport à l'angle de contact θ_0 . Ainsi, la Figure 5.46 B) présente l'évolution de la racine carré du rapport entre l'angle à la tri-jonction et l'angle de contact entre la goutte et le substrat solide en fonction d'un temps normalisé ($\tau = t'/t'_{sol}$), avec t'_{sol} l'instant correspondant à la solidification complète de la goutte.

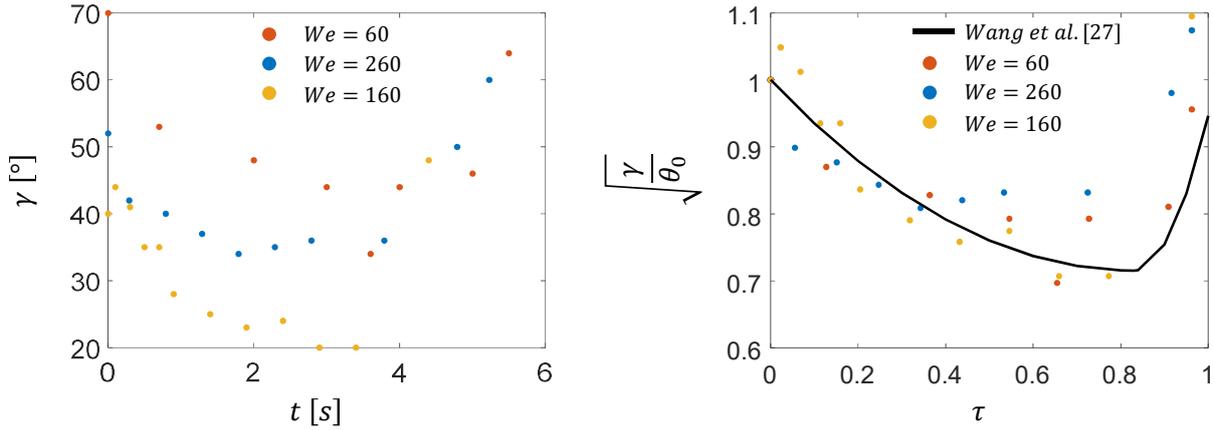


FIGURE 5.46 – A) Évolution de l'angle γ en fonction du temps après nucléation ($t' = t - t_{nucl}$) pour les différents angle de contact obtenus. B) Évolution de la racine carré du rapport entre l'angle γ et l'angle de contact θ_0 en fonction du temps normalisé ($\tau = t' / t'_{sol}$)

Sur la Figure 5.46 la loi empirique proposé par Zhang et al. [29] pour la modélisation de l'angle de contact γ présenté dans l'équation 2.54 est ajouté. Il est possible de constater que la tendance obtenue par les mesures LIF semble être en bon accord avec celle proposée par Zhang et al. [29] malgré une dispersion des données expérimentales. Il apparaît donc que la variation de l'angle γ est dépendante de l'angle de contact θ_0 . Le Tableau 5.3 présente les valeurs de α_{LIF} et $\alpha_{côté}$: α_{LIF} est obtenu à partir des mesures de l'angle γ (équation 5.25) tandis que $\alpha_{côté}$ est obtenu directement par les images en vue de côté. La valeur de la pointe α_{LIF} diminue lorsque l'angle de contact θ_0 augmente. Cette diminution pourrait se traduire par une disparation de la pointe pour des angles de contact très faibles (équation 5.25 où α tend vers 180° quand γ tend vers 0°) comme observée dans la section 5.3 où l'angle de contact était de 17° . Malheureusement, cette remarque ne permet pas d'expliquer l'existence d'une pointe dans le cas du N-BK7. Les valeurs de α_{LIF} obtenues sont globalement supérieures à celle obtenues par vue de côté. Cette différence provient du fait que le modèle adopté permet de prédire l'angle de la pointe α_{LIF} en connaissant la valeur de γ en fin de solidification. Or, γ varie au cours du temps et cette variation est d'autant plus marquée en fin de solidification. Un modèle adoptant une variation de l'angle γ au cours du temps [29] permet d'obtenir des valeurs d'angle de pointe légèrement supérieures à celles obtenues en prenant l'angle γ en fin de solidification. Les travaux menés ici ont permis de mettre en évidence l'influence de la nature du substrat ainsi que de l'angle de contact sur la dynamique du front de solidification conduisant à la formation d'une pointe. Notons que, afin de proposer un modèle plus général au point de tri-jonction pour résoudre le problème du front de solidification, davantage de mesures sont nécessaires. Cela permettrait de déterminer l'effet de l'angle de contact, de la vitesse de solidification, de la présence de contaminant dans l'eau [3], des transferts convectifs internes [12] ou encore de la nature du substrat sur la dynamique de formation de la pointe.

5.5 Conclusions du chapitre

Une nouvelle approche expérimentale basée sur la fluorescence induite par laser a été développée pour reconstruire dynamiquement le front de glace à l'intérieur d'une goutte d'eau impactant un substrat sous-refroidi. Cette méthode met à profit la faible émission

de fluorescence de la rhodamine 6G lorsqu'elle est incorporée dans la phase solide (glace). Comme le signal de fluorescence issu de la glace est négligeable, les images en vue de dessus d'une goutte déposée peuvent être considérées pour mesurer l'épaisseur de la couche de liquide. Durant le processus de solidification, le volume de la goutte augmente du fait de la différence de masse volumique entre les phases liquide et solide de l'eau. Une seconde caméra est ainsi nécessaire pour fournir des images en vue de côté de l'interface liquide/gaz afin de tenir compte de l'augmentation du volume des gouttes pendant la solidification. Cette nouvelle technique a permis d'observer comment la dynamique de solidification influence la forme du front de glace. La solidification d'une goutte a été étudiée dans une configuration défavorisant la génération d'une phase surfondue (présence de givre) tandis qu'une seconde étude à portée sur une configuration favorisant la génération d'une phase surfondue (paroi sèche). Dans les deux configurations, il a été observé expérimentalement que le front de glace prend une forme sphérique.

Dans la première configuration, l'étude de deux matériaux, à savoir le Duraluminium et le verre N-BK7, indique une influence très nette des propriétés thermiques du substrat solide sur l'évolution du front de glace, notamment la diffusivité et l'effusivité thermiques. La vitesse de solidification est radicalement différente pour ces deux substrats. De grandes différences sur les rayons de courbures du front et sur l'angle formé par le front de solidification avec la surface libre du liquide au sommet de la goutte sont observées. En raison de la faible effusivité thermique du N-BK7, une augmentation de la température de la surface solide est observée juste après l'impact de la goutte. Cette augmentation entraîne un retard important dans l'apparition du givrage au centre de la goutte par rapport à son bord. Le front de glace se transforme en une cavité sphérique dont l'aspect est beaucoup plus profond que dans le cas du Duraluminium. Cette géométrie est propice à la formation d'une pointe en fin de solidification lorsque le volume se dilate. La modélisation de ces différents phénomènes reste difficile; un défi majeur consiste à intégrer la dilatation volumique dans les modèles théoriques et dans les simulations. Sans traitement spécifique pour la dilatation volumique, les modèles 1D et 2D-axi sont capables de reproduire certaines des observations expérimentales. Ces modèles simplifiés sont relativement bons pour prédire la masse de glace, le temps de solidification, la position du point de tri-jonction et la profondeur de la cavité dans le cas de substrats hautement conducteurs de la chaleur telle que le Duraluminium. Cependant, ils ne parviennent pas du tout à reproduire la forme sphérique du front de glace et l'angle entre le front de glace et la surface libre.

Dans la seconde configuration, les impacts ont été essentiellement étudiés sur une paroi hautement conductrice en Duraluminium. Lors de l'impact sur une paroi sèche, il a été observé l'apparition d'une phase de recalescence traduisant la présence d'une phase surfondue avant la nucléation. Dans cette configuration, la première observation par rapport au cas précédent porte sur la présence systématique d'une pointe en fin de solidification, phénomène qui n'avait pas été observé précédemment pour le substrat en Duraluminium. L'apparition de la pointe est liée à un rayon de courbure plus important du front de solidification dans cette configuration. Un modèle 1D de solidification prenant en compte l'évolution du front de solidification dans un milieu homogène en température, mais présentant un gradient de fraction de glace suite à la phase de recalescence, a permis d'obtenir des temps de solidification proche de ceux observés expérimentalement. La mesure de l'angle au niveau de tri-jonction a permis de mettre en avant la dépendance de ce paramètre à l'angle de contact entre la goutte et la paroi solide avant la phase de recalescence.

5.6 Références

- [1] Vasilios_Alexiades__Alan_D_Solomon_Mathematical_modeling_of_melting_and_freezing_processes__1993.pdf. 165
- [2] D. M. Anderson, M. Grae Worster, and S. H. Davis. The case for a dynamic contact angle in containerless solidification. *Journal of Crystal Growth*, 163(3) :329–338, 1996. 128, 152
- [3] F. Boulogne and A. Salonen. Drop freezing : fine detection of contaminants by measuring the tip angle. *Applied Physics Letters*, 116(10) :103701, 2020. 168
- [4] W. Chaze. Transferts de chaleur et de masse lors de l'impact d'une goutte sur une paroi chaude en régime d'ébullition en film - Application de diagnostics optiques et modélisation. 2017. 129, 130, 165
- [5] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet, and F. Lemoine. Spatially and temporally resolved measurements of the temperature inside droplets impinging on a hot solid surface. *Experiments in Fluids*, 58(8), 2017. 129
- [6] J. Eggers. M. a. fontelos, c. josserand and s. zaleski. *Phys. Fluids*, 22(062101) :625, 2010. 140
- [7] P. Hao, C. Lv, and X. Zhang. Freezing of sessile water droplets on surfaces with various roughness and wettability. *Applied Physics Letters*, 104(16), 2014. 128
- [8] T. Inada, H. Tomita, and T. Koyama. Ice nucleation in water droplets on glass surfaces : From micro- to macro-scale. *International Journal of Refrigeration*, 40 :294–301, 2014. 128
- [9] Z. Jin, S. Jin, and Z. Yang. An experimental investigation into the icing and melting process of a water droplet impinging onto a superhydrophobic surface. *Science China : Physics, Mechanics and Astronomy*, 56(11) :2047–2053, 2013. 128
- [10] Z. Jin, D. Sui, and Z. Yang. The impact, freezing, and melting processes of a water droplet on an inclined cold surface. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 90 :439–453, 2015. 128, 154
- [11] P. Kant, R. B. Koldewej, K. Harth, M. A. van Limbeek, and D. Lohse. Fast-freezing kinetics inside a droplet impacting on a cold surface. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 117(6) :2788–2794, 2020. 128
- [12] L. Karlsson, A.-L. Ljung, and T. S. Lundström. Comparing internal flow in freezing and evaporating water droplets using piv. *Water*, 12(5) :1489, 2020. 165, 168
- [13] R. F. Kubin and A. N. Fletcher. Fluorescence quantum yields of some rhodamine dyes. *Journal of Luminescence*, 27(4) :455–462, 1982. 130
- [14] G. Lagubeau, M. A. Fontelos, C. Josserand, A. Maurel, V. Pagneux, and P. Petitjeans. Spreading dynamics of drop impacts. *Journal of Fluid Mechanics*, 713 :50–60, 2012. 140
- [15] J. Liu, H. Vu, S. S. Yoon, R. A. Jepsen, and G. Aguilar. Splashing phenomena during liquid droplet impact. *Atomization and Sprays*, 20(4), 2010. 155

- [16] M. Marcellini, C. Noirjean, D. Dedovets, J. Maria, and S. Deville. Time-Lapse, in Situ Imaging of Ice Crystal Growth Using Confocal Microscopy. *ACS Omega*, 1(5) :1019–1026, 2016. [131](#), [133](#)
- [17] A. G. Marín, O. R. Enríquez, P. Brunet, P. Colinet, and J. H. Snoeijer. Universality of tip singularity formation in freezing water drops. *Physical Review Letters*, 113(5) :1–5, 2014. [128](#), [146](#), [149](#), [152](#), [153](#), [167](#)
- [18] A. Nag and D. Goswami. Solvent effect on two-photon absorption and fluorescence of rhodamine dyes. *Journal of Photochemistry and Photobiology A : Chemistry*, 206(2-3) :188–197, 2009. [135](#)
- [19] L. Oberli, D. Caruso, C. Hall, M. Fabretto, P. J. Murphy, and D. Evans. Condensation and freezing of droplets on superhydrophobic surfaces. *Advances in Colloid and Interface Science*, 210 :47–57, 2014. [128](#)
- [20] I. V. Roisman. Inertia dominated drop collisions. ii. an analytical solution of the navier–stokes equations for a spreading viscous film. *Physics of Fluids*, 21(5) :052104, 2009. [140](#)
- [21] M. Schremb, T. Weibert, and C. Tropea. Experimental {Investigation} of {Supercooled} {Water} {Drops} {Impacting} onto a {Smooth} {Ice} {Surface} : {Interaction} of {Fluid} {Flow} and {Phase} {Change}. page 13, 2017. [165](#)
- [22] M. Schwarzer, T. Otto, M. Schremb, C. Marschelke, H. T. Tee, F. R. Wurm, I. V. Roisman, C. Tropea, and A. Synytska. Supercooled Water Drops Do Not Freeze during Impact on Hybrid Janus Particle-Based Surfaces. *Chemistry of Materials*, 31(1) :112–123, 2019. [128](#)
- [23] J. H. Snoeijer and P. Brunet. Pointy ice-drops : How water freezes into a singular shape. *American Journal of Physics*, 80(9) :764–771, 2012. [152](#)
- [24] H. Strausky, J. R. Krenn, A. Leitner, and F. R. Aussenegg. Sliding plastics on ice : Fluorescence spectroscopic studies on interfacial water layers in the μm thickness regime. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 66(5) :599–602, 1998. [133](#)
- [25] V. Thiévenaz, T. Seón, and C. Josserand. Solidification dynamics of an impacted drop. *Journal of Fluid Mechanics*, 874(Jones 1996) :756–773, 2019. [139](#), [143](#), [144](#)
- [26] T. V. Vu, G. Tryggvason, S. Homma, and J. C. Wells. Numerical investigations of drop solidification on a cold plate in the presence of volume change. *International Journal of Multiphase Flow*, 76 :73–85, 2015. [141](#)
- [27] L. Wang, W. Kong, F. Wang, and H. Liu. Effect of nucleation time on freezing morphology and type of a water droplet impacting onto cold substrate. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 130 :831–842, 2019. [164](#)
- [28] C. Zhang and H. Liu. Effect of drop size on the impact thermodynamics for supercooled large droplet in aircraft icing. *Physics of Fluids*, 28(6), 2016. [141](#)
- [29] X. Zhang, X. Liu, J. Min, and X. Wu. Shape variation and unique tip formation of a sessile water droplet during freezing. *Applied Thermal Engineering*, 147(November) :927–934, 2019. [128](#), [145](#), [152](#), [153](#), [167](#), [168](#)

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

6.1 Conclusions

Ce travail de doctorat s'inscrit dans la problématique générale de l'étude expérimentale des phénomènes de surfusion et de solidification de gouttes d'eau. Une grande partie de ces travaux de thèse s'inscrit dans le cadre du projet ANR NUAGE (Nouveaux Outils pour la caractérisation de conditions Aéronautiques GivrantEs), dont l'objectif principal est de développer des diagnostics non-intrusifs pour la caractérisation de SLD (Supercooled Large Droplet, c'est-à-dire des gouttes surfondues plus grosse que $50\ \mu\text{m}$) dans des conditions aéronautiques givrantes. L'introduction générale présentée au Chapitre 1 et l'étude bibliographique réalisée dans le Chapitre 2 laissent apparaître le besoin de diagnostics optique permettant la caractérisation de gouttes surfondues. Notamment, ce besoin de diagnostics optiques est nécessaire pour la caractérisation de gouttes surfondues évoluant dans les souffleries givrantes afin de vérifier et contrôler la représentativité des conditions givrantes recrées et donc valider les essais de certifications. Un second besoin relève de la nécessité de mesurer la dynamique du front de solidification à l'intérieur d'une goutte, afin d'améliorer la modélisation du phénomène de solidification d'une goutte impactant une paroi sous-refroidie. Pour répondre à ces différentes questions, le manuscrit a été divisé en cinq chapitres :

6.1.1 Développement d'une chaîne de Fluorescence Induite par Laser appliquée à l'eau surfondue

Le développement d'une nouvelle chaîne de Fluorescence Induite par Laser (LIF) spécifique à la caractérisation de gouttes surfondues a été présenté dans ce chapitre. La technique de mesure repose sur un mélange de rhodamine 560 et de kion red dissous dans l'eau et excité par une source laser continue de longueur d'onde 532 nm. Le signal de fluorescence est collectée sur 3 bandes spectrales de détection différentes afin de déduire deux rapports de fluorescence, notés R_{12} et R_{31} . Le premier rapport permet de mesurer la température de l'eau liquide et le second de caractériser l'état du milieu (i.e. liquide/solide). Le rapport de fluorescence R_{12} a été calibré sur une goutte suspendue dans un environnement froid jusqu'à une température de $-17\ ^\circ\text{C}$ conduisant à une sensibilité en température de $2,56\ \%/^\circ\text{C}$. La calibration en température est ensuite prolongée pour la mesure de températures plus faible. À l'aide de mesures réalisées par Imagerie de Résonance Magnétique Nucléaire, il a été possible de calibrer le rapport de fluorescence R_{31} en fonction de la fraction de glace présente dans une cuve contenant un volume d'eau donné. Ces mesures ont permis de montrer que le logarithme du second rapport de fluo-

rescence évolue linéairement avec la fraction de glace. Néanmoins, la calibration du second rapport de fluorescence avec la fraction de glace n'est pas universelle et dépend de différents paramètres comme la structure cristalline de la glace formée lors de la solidification et du chemin optique. Il est donc nécessaire, afin de d'estimer la fraction de glace de l'eau, de déterminer les valeurs du signal de fluorescence en phase 100% liquide ainsi qu'en phase 100% solide.

6.1.2 Caractérisation de gouttes surfondues en écoulement

La technique de mesure de LIF3c2d a été utilisée pour la caractérisation de gouttes évoluant dans un environnement froid. Les mesures ont tout d'abord été réalisées sur un train de gouttes monodispersées évoluant à faible vitesse ($v < 10 \text{ m.s}^{-1}$). Cette étude a permis d'étudier l'évolution des transferts de chaleur entre les gouttes et l'air froid ambiant en fonction de la distance entre deux gouttes successives et de montrer l'intensification des échanges de chaleur avec l'augmentation de cette distance. Le second rapport de fluorescence R_{31} a ensuite été utilisé afin de caractériser la proportion de gouttes solides dans un écoulement de gouttes monodispersées. Pour cela, il a tout d'abord été nécessaire de déterminer la valeur du rapport de fluorescence en phase 100% solide pour chaque taille de gouttes testées. La calibration présentée dans le Chapitre 3 est ensuite utilisée pour mettre en évidence l'augmentation de la fraction solide avec la diminution de la taille des gouttes et avec la diminution de la température du milieu ambiant. Ces deux phénomènes induisent une augmentation du refroidissement des gouttes et donc une augmentation de leurs probabilités de se solidifier. La technique de mesure a ensuite été utilisée pour la caractérisation de gouttes évoluant dans la soufflerie givrante du Petit Anneau Givrant (PAG) du centre DGA Essais Propulseurs à Saclay. L'intérêt de cette campagne de mesures dans ces conditions était, dans un premier temps, d'éprouver la technique de mesure en conditions extrêmes et dans un second temps d'apporter des éléments de réponse sur la représentativité des conditions givrantes recrées dans cette IWT en fonction de différents paramètres comme la vitesse de l'écoulement, l'humidité relative, la teneur en eau et la température de l'air. Il a ainsi été possible de mettre en avant la difficulté reproduire, dans le cas de SLD, des conditions givrantes qui soient représentatives (température des gouttes isotherme avec celle de la phase porteuse notamment) de celles rencontrées aux altitudes de vol des avions. Enfin, la technique a permis d'étudier une phase dite de givrage générant des cristaux de glace dans le PAG.

6.1.3 Solidification d'une goutte impactant une paroi sous-refroidie

Des mesures de PLIF rapides ont été réalisées pour permettre la caractérisation de la dynamique du front de solidification à l'intérieur d'une goutte d'eau impactant un substrat solide sous-refroidi. La méthode de mesure consiste à utiliser la perte du signal de fluorescence en phase solide. Ainsi, seule la partie liquide est observée, permettant ainsi de déterminer, à l'aide du signal de fluorescence en vue du dessus d'une goutte la dynamique du front de solidification. Par ailleurs, la déformation de la goutte due à la dilatation volumique a été prise en compte pour reconstruire le profil de la goutte en utilisant une seconde caméra visualisant la goutte de côté. L'évolution du front de solidification a ensuite été testée dans une première configuration défavorisant la génération d'une phase surfondue (présence d'une fine couche de glace sur le substrat) tandis qu'une seconde étude a porté sur une configuration favorisant la génération d'une phase surfondue (paroi sèche). L'étude expérimentale a permis de mettre en évidence la sphéricité du

front de solidification. Dans la première configuration, l'étude de deux matériaux, à savoir le Duraluminium (bon conducteur de la chaleur) et le N-BK7 (mauvais conducteur de la chaleur), indique une influence très nette des propriétés thermiques du substrat sur l'évolution du front de solidification, notamment la diffusivité et l'effusivité thermiques. La concavité du front de solidification plus importante dans le cas du N-BK7 conduit à la formation d'une pointe en fin de solidification. Un modèle de solidification 2D-axi a été mis en place et permet une bonne comparaison avec les fronts de solidification obtenus expérimentalement. Le modèle numérique développé prend en compte le couplage thermique entre la goutte et le substrat, et permet donc de rendre compte de la différence du front de solidification en fonction de l'effusivité thermique du matériau qui a pu être observée expérimentalement.

Dans la seconde configuration, les impacts ont été étudiés sur un substrat en duraluminium sec et sans présence de glace. Dans ce cas, un modèle 1D permet la prise en compte de la phase de recalescence sur la dynamique du second front de solidification. Le modèle 1D permet une assez bonne estimation des temps de solidifications expérimentaux. Enfin, ces mesures sur parois sèches ont permis de mettre en évidence la dépendance de la concavité du front de solidification et de l'angle de la pointe de la goutte en fin de solidification avec l'angle de contact entre la goutte et le substrat.

6.2 Perspectives

Les résultats obtenus dans ce travail ont ouvert de nombreuses perspectives. Elles concernent principalement l'amélioration des diagnostics optiques (LIF3c2d et PLIF), l'amélioration de la modélisation du phénomène de solidification d'une goutte impactant une surface sous-refroidie ou encore le prolongement direct de certains travaux menés durant cette thèse pour permettre de répondre à des questions restées ouvertes.

6.2.1 Diagnostics optiques

Les colorants fluorescents utilisés dans cette étude sont considérés comme toxiques à forte concentration, ce qui peut limiter leurs utilisations pour certaines applications. En effet, dans certaines souffleries givrantes il est impossible de récupérer l'eau injectée et ainsi la traiter par la suite. Afin de pouvoir étendre l'utilisation de la technique actuelle à tout type de soufflerie, il serait donc nécessaire de déterminer un couple de traceurs fluorescents non toxique. Différentes pistes sont possibles comme l'utilisation du mélange de traceurs fluorescents utilisés dans [5] ou encore l'utilisation de l'éosine ou de la fluorescéine couplée avec un autre traceur comme utilisé dans [2].

La technique de LIF3c2d mise en place ici permet la mesure de la température de la partie liquide et la caractérisation du changement de phase. La technique a pour l'instant été limitée à des mesures ponctuelles. Il a été montré dans le Chapitre 5 que la connaissance de la température du liquide est essentielle pour la modélisation de la dynamique du front de solidification. Dans l'avenir, il serait donc intéressant d'utiliser plusieurs caméras rapide (au moins deux) afin de réaliser des mesures de température résolues dans l'espace et dans le temps. Différentes solutions sont possibles pour permettre la mesure du champ de température dans la goutte au cours du temps :

- L'utilisation de deux caméras rapides permettrait d'utiliser les traceurs identifiés dans cette étude (LIF3c2d) afin de mesurer le champ de température d'une goutte impactant un substrat sous-refroidi. Quelques essais préliminaires menés au cours

de la thèse ont permis de montrer la faisabilité d'une telle technique pour des fréquences d'acquisition maximales de 500 images par seconde. Au-delà, l'intensité du signal de fluorescence collectée par les caméras est insuffisants pour permettre une mesure précise.

- Afin de mesurer des champs instantanés de température à l'intérieur d'une goutte, il pourrait être envisagé d'utiliser des sources lasers pulsés nanosecondes. En effet, ce type de source délivre des puissances bien plus élevées que des sources continues. Notons tout de même que l'utilisation de ce type de source laser a pour conséquence de travailler dans le domaine saturé de la fluorescence. Dans ce cas, il est connu que certains traceurs fluorescents comme le kiton red sont soumis à une perte de sensibilité en température [1]. Il serait donc nécessaire, dans l'éventualité de l'utilisation de ce type de mesure, de déterminer des traceurs fluorescents dont la sensibilité en température est indépendante de l'énergie laser incidente (fluorescéine, sulforhodamine 640 ...).

Par ailleurs, il serait intéressant à l'avenir de déterminer le flux de chaleur extrait de la paroi durant l'impact et la solidification de la goutte. Pour cela, des mesures de thermographie infrarouge, comme réalisées dans [1], pourraient être envisagées. Le couplage des mesures du champ de température dans la goutte avec celles de la dynamique du front de solidification et du flux extrait à la paroi permettrait de fermer complètement le problème de solidification d'une goutte impactant une paroi sous-refroidie.

6.2.2 Caractérisation de gouttes en écoulement

Les travaux menés sur la caractérisation de gouttes en écoulements à faible vitesses ont porté sur la mesure de la température et de l'état des gouttes en entrée et sortie de l'environnement froid. Il a été montré que la perte de stabilité du train de gouttes monodispersées induisait une augmentation des échanges entre les gouttes et l'environnement en comparaison avec le cas d'un train de gouttes monodispersées stable. Dans les études futures, afin de caractériser plus finement les transferts de masse et de chaleurs entre les gouttes et l'environnement froid, il serait nécessaire de mesurer temporellement l'évolution de la température et de l'état des gouttes. ces mesures permettraient de mettre en évidence l'influence de la vitesse, de la taille des gouttes et de la température ambiante sur les transferts de masse et de chaleurs. Afin de pouvoir être indépendant de la déstabilisation du train de gouttes monodispersées, il serait judicieux de diminuer davantage la température de l'air. Cela permettrait d'accentuer les échanges entre les gouttes et l'air et ainsi diminuer grandement la distance d'étude et donc de diminuer la probabilité de déstabilisation du jet. L'utilisation d'un circuit d'azote liquide dans la double enveloppe de la colonne permettrait de diminuer fortement la température de l'air.

Les mesures en soufflerie givrante ont montré que la température des gouttes est fortement dépendante au diamètre de celle-ci. Or dans la soufflerie de la DGA (PAG), la caractérisation de la taille des gouttes n'a pas été réalisée lors des expériences menées. Au vu des vitesses d'air rencontrées, des phénomènes d'atomisation secondaires sont susceptibles de se produire, induisant alors des interprétations difficiles sur la température mesurée. Pour cela, il serait intéressant de mettre en place des mesures couplées de LIF et de PDA comme réalisées dans [4] et ainsi accéder à la température des gouttes par classe de taille.

6.2.3 Influence de la nature du substrat sur la solidification d'une goutte impactant sur un substrat sous-refroidi

Les résultats présentés dans le chapitre 5 ont permis de montrer une forte dépendance de la forme du front de solidification avec les propriétés thermiques du substrat. Les recherches actuelles sont focalisées sur la détermination de substrats permettant de limiter au maximum l'accrétion de givre sur le substrat. Afin de comprendre les mécanismes permettant de limiter l'accrétion de givre, il est nécessaire de mettre en place des mesures du champ de température (PLIF2c), de dynamique du front (PLIF) et du flux de chaleur extrait à la paroi (thermographie infrarouge) pendant la phase d'impact d'une goutte sur une paroi sous-refroidie.

L'étude actuelle a été limitée à l'étude de la solidification d'une goutte à une température supérieure à celle de solidification du liquide impactant un substrat sous-refroidi. Afin de se rapprocher du cas réel, il serait intéressant d'étudier l'impact de gouttes incidentes à l'état surfondu sur un substrat sous-refroidi. Pour cela, la technique de mesure de PLIF rapide mis en place dans le Chapitre 5 pourrait être utilisée car le signal de fluorescence est indépendant de la température. Le refroidissement de la goutte avant l'impact pouvant être réalisé en refroidissant l'environnement froid autour de l'aiguille d'injection. Cela permettrait d'obtenir des températures d'injection jusqu'à -17 °C (Figure 3.16).

L'impact d'une goutte individuelle est assez éloigné du cas réel, c'est-à-dire un spray qui impact un substrat sous-refroidi et où des phénomènes d'interaction entre les gouttes peuvent modifier les transferts. Les études futures devraient donc porter sur l'impact simultané plusieurs de gouttes afin de déterminer l'influence de la fréquence d'impact sur la dynamique de solidification des gouttes.

6.2.4 Modélisation de la solidification d'une goutte impactant un substrat sous-refroidi

La modélisation adoptée dans le Chapitre 5 est basée sur différentes simplifications. En effet, les phénomènes convectifs induit par l'impact de la goutte, ou encore par le gradient thermique dans la goutte (effet Marangoni), ont été négligé. Or, ces phénomènes peuvent modifier la dynamique du front de solidification [2] [3].

La méthode de résolution numérique 2D axisymétrique basée sur l'utilisation du paramètre de phase μ ne permet pas la résolution du problème de solidification d'une goutte surfondu. D'autres méthode existent et permettent de s'affranchir des problèmes numériques rencontrés. Ces méthodes sont basées sur le calcul de la position de l'interface liquide/solide selon la condition du bilan énergétique de Stefan.

Enfin, afin de modéliser correctement la dynamique de solidification, il est nécessaire à l'avenir de prendre en compte la déformation de la goutte induite par les différences de masse volumique entre les phases liquide et solide.

6.3 Références

- [1] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet, and F. Lemoine. The saturation of the fluorescence and its consequences for laser-induced fluorescence thermometry in liquid flows. *Experiments in Fluids*, 57(4), 2016. 176
- [2] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet, and F. Lemoine. Spatially and temporally resolved

measurements of the temperature inside droplets impinging on a hot solid surface. *Experiments in Fluids*, 58(8), 2017. [175](#), [177](#)

- [3] L. Karlsson, A.-L. Ljung, and T. S. Lundström. Comparing internal flow in freezing and evaporating water droplets using piv. *Water*, 12(5) :1489, 2020. [177](#)
- [4] A. Labergue, J.-D. Pena-Carillo, M. Gradeck, and F. Lemoine. Combined three-color {LIF}-{PDA} measurements and infrared thermography applied to the study of the spray impingement on a heated surface above the {Leidenfrost} regime. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 104 :1008–1021, 2017. [176](#)
- [5] J. Shah, J. Allegrini, and J. Carmeliet. Impact of buoyancy on urban heat removal at a local scale : a time-resolved piv-lif study in a water tunnel. In *Proceedings 18th International Symposium on Flow Visualization*. ETH Zurich, 2018. [175](#)

Résumé

Les phénomènes de givrage qui se produisent sur les aéronefs en vol peuvent constituer un danger majeur dans l'aéronautique. Les principaux problèmes de sécurité qui en résultent sont une visibilité réduite, un blocage des tubes de Pitot et une réduction des performances aérodynamiques. Dans ce contexte, les aéronefs doivent être certifiés pour différentes conditions de givrage susceptibles d'être rencontrées, notamment en lien avec la présence de gouttes surfondues de diamètres supérieurs à 50 μm dans l'atmosphère. Les étapes de certification sont réalisées à l'aide d'essais normatifs en soufflerie givrantes permettant de recréer des conditions aéronautiques givrantes proche de celles rencontrées en vol. Les objectifs des travaux présentés dans ce manuscrit portent sur la mise en œuvre d'une nouvelle technique optique basée sur la Fluorescence Induite par Laser (LIF) pour la caractérisation de gouttes surfondues : température, détection de leurs états (i.e. liquide, solide ou mixte), caractérisation des gouttes en phase mixte et dynamique du front de solidification dans une goutte impactant un substrat sous-refroidi. Une première technique de LIF, mettant en jeu deux traceurs fluorescents et trois bandes spectrales de détection, permet de mesurer ponctuellement la température de gouttes surfondues en écoulement ainsi qu'estimer la fraction de glace contenue dans une population de gouttes en écoulement. Des mesures réalisées dans des conditions voisines de celles rencontrées en aéronautiques ont été réalisées dans une soufflerie givrante de la DGA Essais-Propulseurs et ont montré la difficulté de reproduire des conditions aéronautiques givrantes réelles (gouttes à l'équilibre thermique avec la phase porteuse). Une seconde technique basée sur l'Imagerie rapide de fluorescence induite par laser (PLIF) a été développée pour l'étude de la solidification d'une goutte impactant un substrat sous-refroidi. Cette nouvelle méthode de PLIF permet d'accéder, pour la première fois, à la dynamique et la morphologie du front de solidification à l'intérieur de la goutte. L'étude a porté sur des impacts de gouttes sur un substrat sec et sur un substrat recouvert d'une couche de glace. Le deuxième cas permet de s'affranchir du phénomène de surfusion de l'eau et donc du caractère aléatoire du déclenchement de la solidification. Les mesures ont montré que l'évolution du front de solidification et les caractéristiques de la pointe formé par la goutte en fin de solidification étaient dépendantes de la nature du substrat (conductivité thermique) et de l'angle de contact goutte/substrat.

Abstract

Icing phenomena that occur on aircraft in flight can be a major hazard in aeronautics. The main resulting safety problems are reduced visibility, pitot tube blockage and reduced aerodynamic performance. In this context, aircraft must be certified for various icing conditions likely to be encountered, particularly in relation to the presence of supercooled droplets with diameters greater than 50 μm in the atmosphere. The certification stages are carried out using standardised icing wind tunnel tests that make it possible to recreate aeronautical icing conditions close to those encountered in flight. The objectives of the work presented in this manuscript concern the implementation of a new optical technique based on Laser-Induced Fluorescence (LIF) for the characterization of supercooled droplets : temperature, detection of their states (i.e. liquid, solid or mixed), characterization of drops in mixed phase and dynamic of the solidification front in a droplet impacting a subcooled substrate. A first LIF technique, using two fluorescent tracers and three spectral bands of detection, allows to measure the temperature of supercooled droplets in flow as well as to estimate the fraction of ice contained in a population of droplets in flow. Measurements carried out in conditions similar to those encountered in aeronautics were performed in an icing wind tunnel of the DGA Essais-Propulseurs and showed the difficulty of reproducing real aeronautical icing conditions (droplets in thermal equilibrium with the carrier phase). A second technique based on Laser Induced Fluorescence Fast Imaging (PLIF) was developed to study the solidification of a droplet impacting a subcooled substrate. This new PLIF method provides, for the first time, access to the dynamics and morphology of the solidification front inside the droplet. The study focused on droplet impacts on a dry substrate and on a substrate covered with an ice layer. The second case allows to get rid of the phenomenon of water supercooling and thus of the random character of the solidification triggering. The measurements showed that the evolution of the solidification front and the characteristics of the tip formed by the droplet at the end of solidification were dependent on the nature of the substrate (thermal conductivity) and the angle of contact between the droplet and the substrate.