HAL
open science

Micro-vélocimétrie par marquage moléculaire adaptée aux écoulements gazeux confinés

Hacene Si Hadj Mohand

To cite this version:

Hacene Si Hadj Mohand. Micro-vélocimétrie par marquage moléculaire adaptée aux écoulements gazeux confinés. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. INSA de Toulouse, 2015. Français. NNT : 2015ISAT0039 . tel-01559868

HAL Id: tel-01559868

https://theses.hal.science/tel-01559868v1

Submitted on 11 Jul 2017

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

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

Université Fédérale
Toulouse Midi-Pyrénées

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse (INSA de Toulouse)

Présentée et soutenue par :
Hacene SI HADJ MOHAND
le mercredi 2 décembre 2015

Titre :

Micro-vélocimétrie par marquage moléculaire adaptée aux écoulements gazeux confinés

---

École doctorale et discipline ou spécialité :
ED MEGEP : Génie des procédés et de l'Environnement

Unité de recherche :
Institut Clément Ader ICA

Directeur/trice(s) de Thèse :

Stéphane COLIN
Christine BARROT

Jury :
Jean-Christophe BATSALE, Professeur à l'Université de Bordeaux, TREFLE, Rapporteur
Christine BARROT, Maitre de conférences à l'IUT-GMP de Toulouse, Examinateur
Stéphane COLIN, Professeur à l'INSA de Toulouse, Examinateur
Aldo FREZZOTTI, Professeur à l'École Polytechnique de Milan, Examinateur
Renée GATIGNOL, Professeur Émérite à l'UPMC de Paris, Rapporteur
Gian Luca MORINI, Professeur à l'université de Bologne, Examinateur
Christophe A. SERRA, Professeur à l'université de Strasbourg, Examinateur

A la mémoire de mon père Amhand

A ma mère Fatime

A mon frère Sofiane, à mes sœurs Mina et Sylia

A Thanina

Remerciements

Ce travail a été réalisé à l'Institut Clément Ader de Toulouse et en partie à l'Ecole Polytechnique de Milan. Je tiens à exprimer ma reconnaissance à tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Je remercie chaleureusement ceux qui m'ont entouré et encadré durant ces trois années : mon directeur de thèse M. Stéphane COLIN, ma codirectrice de thèse Mme Christine BARROT. Je les remercie autant pour leur encadrement scientifique de qualité que pour leur accueil, leur bienveillance et toutes leurs qualités humaines. Je remercie M. Aldo FREZZOTTI, pour m'avoir accueilli chaleureusement dans son équipe à Milan, je le remercie pour m'avoir initié à la simulation des gaz raréfiés et je le remercie pour les discussions physiques qu'on a eues. J'ai beaucoup appris de ces personnes, tant sur le plan scientifique que sur le plan humain je leur exprime ma gratitude.

Je remercie mes rapporteurs de thèse, pour avoir accepté de lire minutieusement ma thèse. Je remercie M. Jean-Christophe BATSALE, pour les discussions physiques qu'on a eues et pour avoir mis à ma disposition son expertise. Je remercie Mme Renée GATIGNOL, pour toutes ses corrections et ses suggestions, qui ont apporté de considérables améliorations à la thèse. Je remercie M. Christophe SERRA et M. Gian Luca MORINI pour avoir accepté d'examiner ma thèse.

J'adresse mes remerciements à toute l'équipe microfluidique de l'ICA, pour la bonne humeur et la bonne ambiance qui règnent dans l'équipe. Merci M. Lucien BALDAS pour ton encouragement et pour avoir partagé avec moi ton expérience d'enseignant. Je remercie M. Marcos ROJAS et Mme Pascale MAGAUD pour la sincère amitié qui ils ont manifestée à mon égard. Je tiens à remercier M. Nicolas LAURIEN pour l'aide qu'il m'a apportée, la manip ne serait pas ce qu'elle est sans lui. Je remercie M. Stéphane ORIEUX pour ses conseils et son aide. Merci Jie pour ton aide et pour ta sympathie durant ces trois années. Je remercie également Mme Fériel SAMOUDA pour m'avoir initié à la MTV.

Je remercie sincèrement les doctorants et collègues, qui ont partagé avec moi ces trois années, ici cités sans aucun ordre : merci Pierre pour m'avoir fait découvrir la plongée ! Merci Tarek et Florian pour être de bons voisins, pour la course à pied et pour tout !

Merci Marc, Aurélien, Dantes, Anne-Catherine et Ion pour votre amitié et pour les superbes randonnées qu'on a partagées.

Mes amis du labo : Ahmed, Shiki, YanFeng, Vivien, Jian Fu, Jean-Emmanuel, l'autre Jean-Emmanuel, Mickaël, Donghai, Victor, Simon, Jérôme, Luis et Christophe, je vous remercie sincèrement pour les belles années qu'on a partagées avec cœur.

Hacene SI HADJ MOHAND

Table des matières

Introduction **1**

Chapitre 1 Généralités sur les micro-écoulements gazeux **7**

1.1 Dimensions caractéristiques 7

1.2 Interactions molécule-molécule 8

1.3 Interactions molécule-paroi 11

1.4 Fonction de distribution des vitesses et propriétés macroscopiques 13

1.5 Effets de raréfaction en micro-écoulements gazeux 13

1.6 Modélisation des écoulements en régime glissant 16
1.6.1 Conditions aux limites de glissement au premier ordre 16
1.6.2 Conditions aux limites de glissement au second ordre 19
1.6.3 Ecoulements entre deux plaques planes parallèles 20
1.6.4 Ecoulements dans un canal de section rectangulaire 22
1.6.5 Approche diffusive 25

1.7 Conclusion 30

Chapitre 2 Expérimentation en micro-écoulements gazeux **33**

2.1 Mesure de pression 33
2.1.1 Mesure de pression avec capteur 33
2.1.2 Mesure de pression par visualisation 36

2.2 Mesure de débit 43
2.2.1 Mesure de débit par la méthode PC 44
2.2.2 Mesure de débit par la méthode VC 46

2.3 Mesure de température 48
2.3.1 Mesure de température avec capteur 48
2.3.2 Mesure de température par visualisation 50

2.4 Mesure de vitesse 52
2.4.1 Micro-vélocimétrie par images de particules (µPIV) 52
2.4.2 Vélocimétrie par marquage moléculaire MTV 58
2.4.3 Applications de la MTV en phase gazeuse 61

2.5 Conclusion 65

Chapitre 3 Banc expérimental de MTV pour les écoulements gazeux confinés **69**

3.1 Description du banc expérimental de MTV 69
3.1.1 Circuit de gaz 70
3.1.2 Système de marquage 71
3.1.3 Système d'acquisition 74

3.2 Acquisition du signal 77
3.2.1 Technique d'acquisition par intégration 77
3.2.2 Influence des paramètres d'acquisition sur la qualité du signal 79

3.3 Propriétés de luminescence des cétones 81

3.3.1 Propriétés photo-physiques de l'acétone 81
3.3.2 Modélisation de la fluorescence 84
3.3.3 Décroissance du niveau du signal de phosphorescence au cours du temps 87
3.3.4 Dépendance de la luminescence de l'acétone vis-à-vis de la pression 89

3.4 Conclusions 96

Chapitre 4 Effet de la diffusion moléculaire sur la MTV 99

4.1 Mise en évidence des effets de diffusion 99

4.2 Simulation de la diffusion des molécules traceuses par DSMC 101
4.2.1 Formulation du problème 101
4.2.2 Résolution numérique du problème 103

4.3 Approximation par l'équation d'advection-diffusion 106
4.3.1 Déduction du déplacement des molécules marquées 107
4..3.2 Décomposition du mouvement des molécules marquées 112
4.3.3 Comparaison entre l'équation d'advection-diffusion et la DSMC 115

4.4 Méthode de reconstruction du profil de vitesse 116

4.5 Validation numérique de la méthode de reconstruction du profil de vitesse 117

4.6 Conclusion 123

Chapitre 5 Etude expérimentale d'écoulements gazeux confinés 125

5.1 Configuration expérimentale 125
5.1.1 Protocole expérimental 125
5.1.2 Caractéristiques du canal 127

5.2 Champs de vitesse et transport de molécules marquées 129
5.2.1 Distribution de vitesse 129
5.2.2 Transport de molécules marquées 131

5.3 Post-traitement des résultats de MTV 133
5.3.1 Extraction du profil de déplacement 134
5.3.2 Extraction du profil de vitesse 136

5.4 Application aux écoulements confinés 138
5.4.1 Ecoulements d'hélium à la pression atmosphérique 138
5.4.2 Comparaison avec des mesures de débit 140

5.5 Vers l'étude d'écoulements en régime glissant 143
5.5.1 Analyse d'écoulements continus à basse pression 143
5.5.2 Nouvelle conception de canal pour les écoulements gazeux à basse pression 145
5.5.3 Détectabilité des molécules marquées à basse pression 147

5.6 Conclusion 148

Conclusions et perspectives 149

Nomenclature

Symboles romains

a	Aire du canal [m^2]
C_1, C_2	Coefficients de glissement au premier et au second ordre
C_f	Coefficient de frottement
d	Diamètre moléculaire moyen [m]
D	Coefficient de diffusion du gaz [m s^{-2}]
D_h	Diamètre hydraulique [m]
d_p	Diamètre d'une particule [m]
E	Energie du laser [J]
E_L	Fluence du laser (énergie par unité de surface) [J m^{-2}]
f	Fonction de distribution des vitesses moléculaires [m^{-6} s^3]
f_D	Coefficient correctif dans l'expression du coefficient de diffusion
f_l	Fréquence de pulses laser [Hz]
G	Gain de l'IRO [%]
G*	Débit massique adimensionnel
$\hbar$	Constante de Planck [m^2 kg s^{-1}]
H	Demi-hauteur du canal [m]
I_f	Niveau d'intensité de fluorescence [J m^{-2} s^{-1}]
I_p	Niveau d'intensité de phosphorescence [J m^{-2} s^{-1}]
$K_{in, out}$	Coefficients de perte de charge en entrée et en sortie du canal
k_b	Constante de Boltzmann [m^2 kg s^{-2} K^{-1}]
Kn	Nombre de Knudsen
K_{coll}	Vitesse de relaxation vibrationnelle [s^{-1}]
k_{nr}	Vitesse de transition non-radiative [s^{-1}]
k_q	Vitesse d'extinction partielle [s^{-1}]
k_r	Vitesse de transition radiative [s^{-1}]
k_λ	Coefficient intervenant dans l'expression du libre parcours moyen
L	Longueur du canal [m]
Lc	Longueur caractéristique du canal [m]
L_s	Multiplicité du spin
m	Masse moléculaire [kg]
$\dot{m}$	Débit massique [kg s^{-1}]

Nomenclature

n	Densité moléculaire [m^{-3}]
n	Vecteur unitaire normal à la paroi
N_i	Nombre d'images moyennées
N_l	Nombre de pulses laser par image
N_T	Nombre de molécules par cellule en simulation par DSMC
Nu	Nombre de Nusselt
N_v	Niveau vibrationnel
p	Pression [Pa]
P	Densité de probabilité liée aux molécules marquées
Pr	Nombre de Prandtl
R	Constante universelle des gaz parfaits [$J\ mol^{-1}K^{-1}$]
r	Vecteur position [m]
R_s	Constante spécifique des gaz parfaits [$J\ kg^{-1}K^{-1}$]
Re	Nombre de Reynolds
$R_{s/b}$	Rapport du signal sur le bruit
S	Spin d'un électron
s	Déplacement de molécule marquée [m]
S_b	Coefficient de sensibilité de l'IRO [count/Photoélectron]
S_f	Niveau de signal de fluorescence [$J\ m^{-2}$]
S_k	Fonction de base pour le déplacement [m]
S_p	Niveau de signal de phosphorescence [$J\ m^{-2}$]
T	Température [K]
t	Temps [s]
t_g	Délai d'ouverture de l'IRO [s]
u	Vitesse hydrodynamique [$m\ s^{-1}$]
U_k	Fonction de base pour la vitesse [$m\ s^{-1}$]
u_m	Vecteur vitesse massique [$m\ s^{-1}$]
u_v	Vecteur vitesse volumique [$m\ s^{-1}$]
v	Vitesse moléculaire [$m\ s^{-1}$]
V	Volume [m^3]
W	Demi-largueur du canal [m]
x,y,z	Coordonnées cartésiennes [m]

Symboles Grecs

μ	Viscosité dynamique [Pa s]
α_λ	Coefficient intervenant dans l'expression de libre parcours moyen
δ	Distance moyenne intermoléculaire [m]
$\Delta s'$	déformation du profil de déplacement [m]
Δt_c	Durée d'exposition de la caméra [s]
Δt_g	Durée d'exposition de l'IRO [s]
Δt_l	Temps limite dans le suivi de molécules marquées [s]
ε	Ecart relatif entre vitesse réelle et vitesse apparente
ε_d	Dispersion sur le déplacement de molécules marquée [m]
ε_v	Ecart entre la vitesse réelle et la vitesse reconstruite
η_0	Rendement quantique du système d'acquisition
λ	Libre parcours moyen [m]
λ_m	Longueur d'onde d'une molécule [m]
ρ	Masse volumique [kg m^{-3}]
σ	Coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement tangentielle
σ_{abs}	Aire d'absorption d'une molécule [m^2]
σ_i	Aire d'une molécule d'espece *i* [m^2]
σ_T	Aire totale de collision [m^2]
τ_f	Durée de vie de la fluorescence [s]
τ_p	Durée de vie de la phosphorescence [s]
υ	Viscosité cinématique [m^2s^{-1}]
φ_f	Rendement quantique de fluorescence
φ_p	Rendement quantique de phosphorescence
χ	Fraction molaire
Ω_D	Intégrale de collision liée à la diffusion
ω_λ	Coefficient intervenant dans l'expression de libre parcours moyen
Π	Rapport de pression amont sur aval

Indices

in	Entrée du canal
out	Sortie du canal
ref	Référence

Acronymes

BGK	Bhatnagar-Gross-Krook
CCD	Charge Coupled Device
CL	Conditions aux Limites
DSMC	Direct Simulation Monte Carlo
IR	Infra-Rouge
IRO	Intensified Relay Optics
LB	Lattice Boltzmann
LDV	Laser Dopler Velocimetry
LIF	Laser Induced Fluorescence
MCP	Micro Channel Plate
MEMS	Micro Electrical Mechanical System
MTM	Molecular Tagging Manometry
MTT	Molecular Tagging Thermometry
MTV	Molecular Tagging Velocimetry
ND :YAG	Neodymium-Doped Yttrium Aluminium Garnet
NS	Navier-Stokes
PC	Méthode à Pression Constante
PEEK	Polyétherétherkétone
PIV	Particle Image Velocimetry
PSCC	Pressure Sensitive Channel Chip
PSMF	Pressure Sensitive Molecular Film
PTU	Programmable Timing Unit
TIS	Transition Inter Système
TNR	Transition Non Radiative
UV	Ultra Violet
VC	Méthode à Volume Constant

Introduction

Les microsystèmes fluidiques gazeux

Ces dernières années ont connu un développement rapide des systèmes microfluidiques. Des dispositifs impliquant des micro-écoulements gazeux sont désormais utilisés dans de nombreux secteurs et concernent notamment l'analyse chimique, le diagnostic biomédical, la métrologie ou l'industrie aérospatiale : on rencontre par exemple ces micro-écoulements au sein de micro-pompes de Knudsen (Seungdo, Gupta et al. 2014), dans des systèmes de génération du vide, dans des micro-valves (Karniadakis, Beskok et al. 2005) éléments de circuits fluidiques, dans des micro-échangeurs (Yang, Gerken et al. 2014) développés pour le refroidissement de circuits électriques ou pour des applications chimiques, dans des capteurs de pression de type capacitif (Daudé, Elandaloussi et al. 2014) ainsi que dans des dispositifs in vitro comme les poumons artificiels (Kovach, LaBarbera et al. 2015).

Du macro au micro-écoulement

La conception et le dimensionnement de ces systèmes microfluidiques nécessitent une compréhension fondamentale du transfert de masse, de quantité de mouvement et d'énergie mis en jeu. Comparés aux écoulements à échelle macroscopique, les micro-écoulements gazeux présentent certaines spécificités. Dans les premiers, le libre parcours moyen (qui représente dans le fluide au repos la distance moyenne parcourue par une molécule entre deux collisions successives) est très petit devant les longueurs caractéristiques du système. Par conséquent le taux d'interactions molécule-molécule est largement supérieur au taux d'interactions molécule-paroi. Ainsi l'équilibre thermodynamique local est vérifié dans tout le système, ce qui se traduit par une continuité des grandeurs thermodynamiques de l'écoulement. Un tel système est décrit par l'approche continue se basant généralement sur les équations de Navier-Stokes-Fourier associées à des conditions limites de continuité de vitesse et de température aux parois.

Cet équilibre rencontré en écoulements macroscopiques usuels peut être rompu si la longueur caractéristique du système Lc et/ou la pression p sont fortement diminuées, ce qui a pour effet d'augmenter le nombre de Knudsen qui est le rapport du libre parcours moyen des molécules λ sur la longueur caractéristique du système, i.e. $Kn = \lambda / Lc$. Ce nombre renseigne sur le degré de

raréfaction du système et permet de délimiter différents régimes dans les écoulements gazeux, *Kn* étant généralement inférieur à 10^{-3} dans le cas d'écoulements macroscopiques usuels.

Quand le nombre de Knudsen devient de l'ordre de 10^{-2}, suite à une diminution de la taille du système (micro-écoulement) ou à une diminution de pression (écoulement raréfié), il apparaît dans une mince couche adjacente à la paroi un déficit de collisions intermoléculaires. Cette couche, dite de Knudsen, est d'une épaisseur proche du libre parcours moyen. En son sein, des discontinuités des grandeurs thermodynamiques de l'écoulement sont observées. Cet état de déséquilibre thermodynamique local se traduit macroscopiquement par un saut de vitesse et de température entre le fluide et la paroi, nécessitant alors la modification des conditions aux limites usuelles. En augmentant encore le nombre de Knudsen à des valeurs supérieurs à 10^{-1}, les discontinuités précédemment observées dans une couche mince adjacente à la paroi s'étendent à tout le système. A ce stade, l'approche continue n'est plus valable et l'adoption d'une approche cinétique moléculaire basée sur l'équation de Boltzmann est désormais nécessaire.

Analyse des écoulements gazeux

Le développement de la cinétique des gaz a commencé au 18ème siècle avec les travaux de Bernoulli (1700-1782) qui ont permis d'apporter une explication à la loi de Boyle-Mariotte (qui stipule que la densité et la pression d'un gaz sont directement proportionnelles à température constante). Au 19ème siècle, Clausius (1822-1888), Maxwell (1831-1879) et Boltzmann (1844-1906) ont complété et achevé la théorie cinétique des gaz sous la forme que nous connaissons aujourd'hui (Shen 2005). Au début du 20ème siècle, Chapman (1888-1970) et Enskog (1884-1947) ont séparément fait le lien entre l'approche moléculaire et l'approche continue, respectivement en 1910 et 1920, en établissant les équations de Navier-Stokes à partir des équations de Boltzmann. Par la suite, les travaux de Knudsen (1871-1949) ont apporté les premières observations expérimentales dans les écoulements gazeux raréfiés. Dans ses expériences sur des écoulements de gaz dans des tubes, Knudsen (Knudsen 1909) a montré que le débit volumique divisé par la différence de pression entre l'entrée et la sortie d'un tube, lorsqu'il est exprimé en fonction du nombre de Knudsen moyen dans le tube, présente un minimum correspondant à un nombre de Knudsen proche de l'unité. Ce phénomène est connu sous le nom de paradoxe de Knudsen, dont l'analyse fine est encore d'actualité de nos jours (Tatsios, Stefanov et al. 2015). La seconde moitié du 20ème siècle a connu un regain d'intérêt pour la cinétique des

gaz motivé par les missions spatiales Apollo entre 1961 et 1975. Plusieurs travaux traitant de la dynamique des jets, de l'interaction gaz-paroi et de l'aérodynamique externe ont alors vus le jour (Karamcheti 1974). Cette période a été marquée par le lancement de la conférence internationale « *Rarefied Gas Dynamics – RGD* » qui a débuté en 1958 à Nice et aussi par le développement par Bird (Bird 1963) de la Simulation Directe de Monte-Carlo (DSMC) qui s'avère une technique très efficace pour la simulation des écoulements de gaz raréfiés.

Durant ces vingt dernières années, le développement des microsystèmes électro-mécaniques (MEMS) et les nombreuses applications précédemment citées ont suscité un grand intérêt de la communauté scientifique pour l'étude des micro-écoulements gazeux. Ces derniers ont été étudiés sous plusieurs angles : modélisation en utilisant l'approche continue (Colin 2011, Zhang, Meng et al. 2012), simulations numériques basées sur l'approche moléculaire (Zhang 2010, White, Borg et al. 2013, Frezzotti, Ghiroldi et al. 2014, Li, Chen et al. 2014), mesures expérimentales de débits dans les microcanaux (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010, Perrier, Graur et al. 2011), mesures locales de pression (Morini, Lorenzini et al. 2006, Matsuda, Misaki et al. 2011, Matsuda, Uchida et al. 2011). A ce jour, il n'existe cependant pas ou peu de mesures directes de vitesse dans les micro-écoulements ou dans les écoulements raréfiés.

Déroulement de l'étude

La présente thèse s'inscrit dans ce contexte et a pour objectif de mesurer le profil de vitesse dans un écoulement raréfié et ainsi analyser d'une manière plus précise le comportement du gaz en proximité des parois, ainsi que le saut de vitesse à la paroi prédit par différentes approches.

Dans le premier chapitre, nous introduirons d'abord les différents concepts de base nécessaires à la compréhension des phénomènes physiques liés à la microfluidique gazeuse. Une seconde partie concernera la modélisation des micro-écoulements gazeux par l'approche continue.

Le deuxième chapitre sera consacré à une revue des différentes expérimentations menées pour l'étude des micro-écoulements gazeux ; nous décrirons notamment les techniques de mesure de débit, de pression, de température et de vitesse.

Dans le troisième chapitre, nous décrirons la méthodologie expérimentale adoptée pour mesurer la vitesse locale en écoulements confinés, voire en écoulements glissants. Cette méthodologie consiste à adapter la vélocimétrie par marquage moléculaire aux écoulements

gazeux confinés. Nous détaillerons également dans le troisième chapitre les effets de luminescence moléculaire sur lesquels repose cette approche expérimentale.

Le quatrième chapitre sera consacré à l'étude du mouvement de molécules luminescentes au sein de l'écoulement porteur. Une attention particulière sera accordée aux effets diffusifs qui seront pris en compte dans l'analyse des écoulements par la MTV.

Le cinquième et dernier chapitre de la présente thèse sera consacré à l'analyse expérimentale d'écoulements gazeux confinés, par la vélocimétrie par marquage moléculaire. Nous détaillerons un protocole expérimental permettant de mesurer le déplacement de molécules traceuses présentes dans l'écoulement. Nous exploiterons ces déplacements pour déterminer le profil de vitesse de l'écoulement.

Finalement, les conclusions et les perspectives qui découlent de cette thèse seront présentées.

Références

Bird, G. A. (1963). "Approach to Translational Equilibrium in a Rigid Sphere Gas." Physics of Fluids (1958-1988) 6(10): 1518-1519.

Colin, S. (2011). "Gas Microflows in the Slip Flow Regime: A Critical Review on Convective Heat Transfer." Journal of Heat Transfer 134(2): 020908-020908.

Daudé, B., H. Elandaloussi and C. Janssen (2014). "On the gas dependence of thermal transpiration and a critical appraisal of correction methods for capacitive diaphragm gauges." Vacuum 104(0): 77-87.

Frezzotti, A., G. P. Ghiroldi, L. Gibelli and A. Bonucci (2014). "DSMC simulation of rarefied gas mixtures flows driven by arrays of absorbing plates." Vacuum 103(0): 57-67.

Karamcheti, K. (1974). Rarefied Gaz Dynamics. New York, ACADEMIC PRESS, INC.

Karniadakis, G., A. Beskok and N. Aluru (2005). Microflows and Nanoflows Fundamentals and Simulation, Springer.

Knudsen, M. (1909). "Die Gesetze der Molekularstr¨omung und der inneren Reibungsstr¨omung der Gase durch R¨ohren." Annalen der Physik, 28:75–130.

Kovach, K. M., M. A. LaBarbera, M. C. Moyer, B. L. Cmolik, E. van Lunteren, A. Sen Gupta, J. R. Capadona and J. A. Potkay (2015). "In vitro evaluation and in vivo demonstration of a biomimetic, hemocompatible, microfluidic artificial lung." Lab on a Chip 15(5): 1366-1375.

Li, Y., X. Chen, W. Guo, D. Li, Q. Wang and K. Feng (2014). "Accurate simulation of turbomolecular pumps with modified algorithm by 3D direct simulation Monte Carlo method." Vacuum(0).

Matsuda, Y., R. Misaki, H. Yamaguchi and T. Niimi (2011). "Pressure-sensitive channel chip for visualization measurement of micro gas flows." Microfluidics and Nanofluidics 11(4): 507-510.

Matsuda, Y., T. Uchida, S. Suzuki, R. Misaki, H. Yamaguchi and T. Niimi (2011). "Pressure-sensitive molecular film for investigation of micro gas flows." Microfluidics and Nanofluidics 10(1): 165-171.

Morini, G. L., M. Lorenzini and S. Salvigni (2006). "Friction characteristics of compressible gas flows in microtubes." Experimental Thermal and Fluid Science 30(8): 733-744.

Perrier, P., I. A. Graur, T. Ewart and J. G. Meolans (2011). "Mass flow rate measurements in microtubes: From hydrodynamic to near free molecular regime." Physics of Fluids 23(4): 042004-042011.

Pitakarnnop, J., S. Varoutis, D. Valougeorgis, S. Geoffroy, L. Baldas and S. p. Colin (2010). "A novel experimental setup for gas microflows." Microfluidics and Nanofluidics 8(1): 57-72.

Seungdo, A., N. K. Gupta and Y. B. Gianchandani (2014). "A Si-Micromachined 162-Stage Two-Part Knudsen Pump for On-Chip Vacuum." Microelectromechanical Systems, Journal of 23(2): 406-416.

Shen, C. (2005). Rarefied Gas Dynamics Fundamentals, Simulations and Micro Flows, Springer.

Tatsios, G., S. K. Stefanov and D. Valougeorgis (2015). "Predicting the Knudsen paradox in long capillaries by decomposing the flow into ballistic and collision parts." Physical Review E 91(6): 061001.

White, C., M. K. Borg, T. J. Scanlon and J. M. Reese (2013). "A DSMC investigation of gas flows in micro-channels with bends." Computers & Fluids 71: 261-271.

Yang, Y., I. Gerken, J. J. Brandner and G. L. Morini (2014). "Design and experimental investigation of a gas-to-gas counter flow micro heat exchanger." Experimental Heat Transfer 27(4): 340-359.

Zhang, J. (2010). "Lattice Boltzmann method for microfluidics: models and applications." Microfluidics and Nanofluidics 10(1): 1-28.

Zhang, W.-M., G. Meng and X. Wei (2012). "A review on slip models for gas microflows." Microfluidics and Nanofluidics 13(6) : 845-882.

Chapitre 1

Généralités sur les micro-écoulements gazeux

Dans ce chapitre, nous introduisons quelques concepts de base utiles à la modélisation du comportement des micro-écoulements gazeux. Nous commençons par la définition des différentes longueurs caractéristiques de ces écoulements. Ensuite, nous introduisons les notions de vitesse moléculaire, de vitesse macroscopique et de fonction de distribution des vitesses. Nous décrivons plus loin les interactions molécule-molécule et les interactions molécule-paroi. Enfin, nous abordons les effets de raréfaction dans les micro-écoulements gazeux ainsi que leur modélisation.

1.1 Dimensions caractéristiques

La Figure 1.1 présente les différentes longueurs caractéristiques microscopiques utilisées pour la description d'écoulement gazeux. La première longueur caractéristique que nous définissons est le diamètre moléculaire moyen noté *d*. La distance moyenne intermoléculaire δ est directement liée à la densité moléculaire n par la relation :

$$\delta = \frac{1}{\sqrt[3]{n}} \tag{1.1}$$

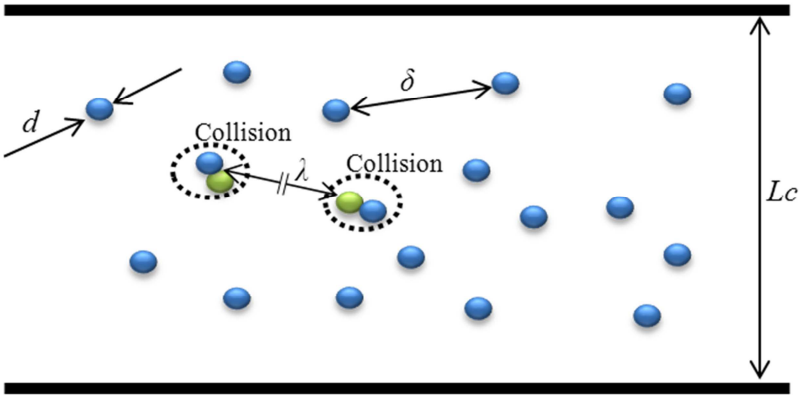

Figure 1.1 Grandeurs caractéristiques

Le libre parcours moyen λ représente la distance moyenne parcourue par une molécule entre deux collisions successives, dans un référentiel lié à l'écoulement macroscopique. Il est donné par :

$$\lambda = k_\lambda \frac{\mu}{\rho\sqrt{RT}} \tag{1.2}$$

où μ, ρ, R et T sont respectivement la viscosité dynamique, la masse volumique, la constante spécifique et la température du gaz. D'autre part k_λ est un coefficient dépendant du modèle de collision intermoléculaire considéré ; il est donné dans le Tableau 1.1.

Modèle de collision	k_λ
Hard Sphere (HS)	$\frac{16}{5\sqrt{2\pi}}$
Variable Hard Sphere (VHS)	$\frac{2(7-2\omega_\lambda)(5-2\omega_\lambda)}{15\sqrt{2\pi}}$
Molécule de Maxwell (MM)	$\sqrt{\frac{2}{\pi}}$
Variable Soft Sphere (VSS)	$\frac{4\alpha_\lambda(7-2\omega_\lambda)(5-2\omega_\lambda)}{5(\alpha_\lambda+1)(\alpha_\lambda+2)\sqrt{2\pi}}$

Tableau 1.1 Coefficient intervenant dans l'expression du libre parcours moyen suivant le modèle de collision considéré. α_λ et ω_λ sont des paramètres dépendant du gaz, dont les valeurs sont disponibles dans (Kandlikar, Garimella et al. 2006) pour certaines espèces.

Enfin, on introduit une longueur caractéristique *Lc* (diamètre d'un tube, diamètre hydraulique d'un canal… etc.).

1.2 Interactions molécule-molécule

Au cours du mouvement, la vitesse d'une molécule change lorsque celle-ci entre en collision avec une autre molécule ; nous considérons dans cette thèse que les collisions intermoléculaires sont élastiques et binaires. On parle de collision binaire lorsque la collision ne met en jeu que deux molécules. L'hypothèse de collisions binaires est justifiée dans un gaz dilué où les collisions tertiaires sont rares. Cela arrive lorsque la distance intermoléculaire δ est suffisamment grande devant le diamètre moléculaire d (Shen 2005). Cette condition est généralement satisfaite pour un gaz dans des conditions usuelles de température et de pression. Le cas de collisions élastiques est un cas particulier de collision où l'échange d'énergie entre les deux molécules entrant en collision s'effectue exclusivement au niveau de l'énergie cinétique. Les changements induits par les collisions au niveau de l'énergie vibrationnelle, de l'état électronique d'une molécule ainsi que les réactions chimiques sont alors considérés comme peu probables. Cette hypothèse reste satisfaite pour des gaz non réactifs à des températures et à des gradients de température modérés (Bird 1994, Shen 2005). De ce fait, les deux principes de bilan de quantité de mouvement et de conservation de l'énergie peuvent être utilisés pour la modélisation des collisions.

Le bilan de quantité de mouvement et le principe de conservation de l'énergie permettent d'écrire pour deux molécules de masses m_1 et m_2, de diamètres d_1 et d_2 et ayant pour vitesses avant collision $\mathbf{v_1}$ et $\mathbf{v}_2$:

$$m_1\mathbf{v_1} + m_2\mathbf{v_2} = m_1\mathbf{v_1^*} + m_2\mathbf{v_2^*} \tag{1.3}$$

$$m_1 v_1^{\ 2} + m_2 v_2^{\ 2} = m_1 v_1^{*2} + m_2 v_2^{*2} \tag{1.4}$$

où $\mathbf{v_1^*}$ et $\mathbf{v_2^*}$ sont les vitesses moléculaires après collision. La vitesse $\mathbf{v_m}$ du centre de masse des deux molécules, qui se conserve, s'écrit alors :

$$\mathbf{v_m} = \frac{m_1\mathbf{v_1} + m_2\mathbf{v_2}}{m_1 + m_2} = \frac{m_1\mathbf{v_1^*} + m_2\mathbf{v_2^*}}{m_1 + m_2}. \tag{1.5}$$

A partir de l'équation (1.5), on obtient l'expression des vitesses avant collision :

$$\mathbf{v_1} - \mathbf{v_m} = \frac{m_2}{m_1 + m_2}\mathbf{v_r}, \tag{1.6}$$

$$\mathbf{v_2} - \mathbf{v_m} = -\frac{m_1}{m_1 + m_2}\mathbf{v_r}, \tag{1.7}$$

où $\mathbf{v_r} = \mathbf{v_1} - \mathbf{v_2}$ est la vitesse relative. Ces deux équations montrent que les vitesses des deux molécules avant collision relatives à la vitesse du centre de masse, $\mathbf{v_1} - \mathbf{v_m}$ et $\mathbf{v_2} - \mathbf{v_m}$, sont antiparallèles. D'une manière analogue, on obtient les deux relations concernant les vitesses après collision :

$$\mathbf{v_1^*} - \mathbf{v_m} = \frac{m_2}{m_1 + m_2}\mathbf{v_r^*}, \tag{1.8}$$

$$\mathbf{v_2^*} - \mathbf{v_m} = -\frac{m_1}{m_1 + m_2}\mathbf{v_r^*}. \tag{1.9}$$

Ces deux dernières équations montrent que les vitesses des deux molécules après collision sont aussi antiparallèles dans un référentiel lié au centre de masse.

A partir des équations (1.6) à (1.9) on obtient :

$$m_1 v_1^2 + m_2 v_2^2 = (m_1 + m_2) v_m^2 + m_r v_r^2, \tag{1.10}$$

$$m_1 v_1^{*2} + m_2 v_2^{*2} = (m_1 + m_2) v_m^2 + m_r v_r^{*2}, \tag{1.11}$$

avec

$$m_r = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}. \tag{1.12}$$

En comparant les deux équations (1.10) et (1.11) à l'équation de l'énergie (1.4), on en déduit que l'amplitude de la vitesse relative des deux molécules reste invariante après collision :

$$v_r = v_r^*. \tag{1.13}$$

Connaissant $\mathbf{v_r}$ et $\mathbf{v_m}$ d'après les vitesses avant collision, la détermination des vitesses après collision se réduit ainsi à la détermination de l'angle de déviation ψ du vecteur vitesse relative $\mathbf{v_r}$.

Pour achever la modélisation des collisions moléculaires, l'adoption d'un modèle de collision s'impose. Le plus basique est le modèle de sphères dures ou « Hard Sphere (HS) » (Bird 1994). Dans ce modèle, les molécules sont considérées comme des sphères de diamètre constant *d*. La représentation géométrique des collisions est montrée sur la Figure 1.2. La plus petite distance intermoléculaire *b* au-delà de laquelle les interactions moléculaires sont considérées comme négligeables, ainsi que la section totale de collision σ_T (Figure 1.2), sont données par les relations :

$$b = d_{12}\sin(\theta) = d_{12}\cos\left(\psi/2\right), \tag{1.14}$$

$$\sigma_T = \pi d_{12}^2, \tag{1.15}$$

où $d_{12} = \dfrac{d_1 + d_2}{2}$ est le diamètre moyen des deux molécules.

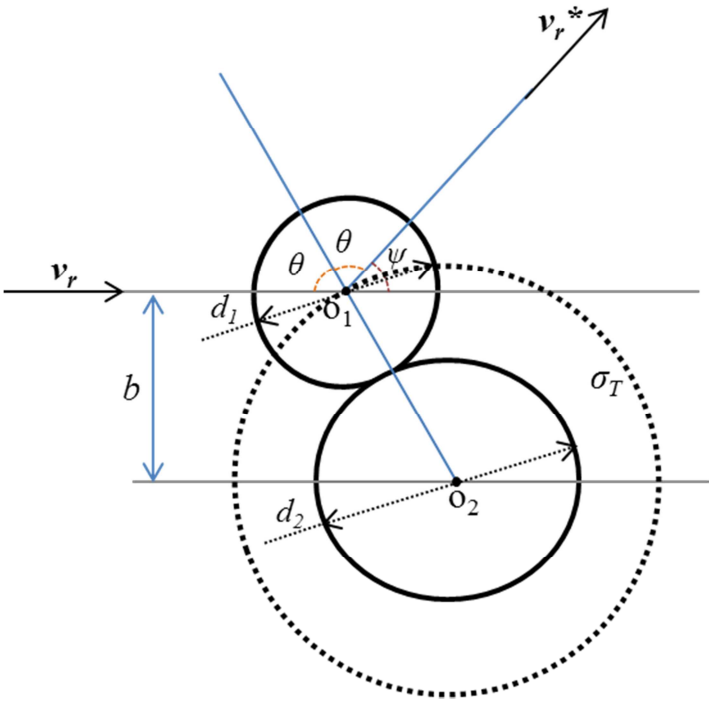

Figure 1.2 Géométrie des collisions type sphères dures

Il est à noter que dans le modèle de sphères dures, la déviation de $\mathbf{v_r}$ est isotrope par rapport au centre de masse, ce qui revient à dire que $\mathbf{v_r}^*$ peut prendre d'une manière équiprobable n'importe quelle direction. Les avantages de ce modèle sont sa simplicité et sa facilité de mise en œuvre, même si l'hypothèse de déviation isotrope n'est pas réaliste. Le modèle de sphères dures prédit une dépendance de la viscosité μ vis-à-vis de la température à la puissance 0.5, ce qui est diffèrent de la puissance réellement observée pour la plupart des espèces gazeuses : cette puissance correspond au coefficient ω_λ donné dans le Tableau 1.1 qui peut varier entre 0,65 et 1,10 pour les gaz usuels. Cette différence peut se monter cruciale à des températures élevées de l'ordre de 1000 K ou dans des configurations d'écoulements non isothermes (Naris, Valougeorgis et al. 2004). Pour pallier ces problèmes, plusieurs autres modèles plus réalistes ont été proposés, comme le modèle de sphères dures variables ou « Variable Hard Sphere (VHS) » proposé par Bird (Bird 1981) qui considère les molécules comme des sphères dures, avec une déviation après collision isotrope mais un diamètre moléculaire dépendant du module v_r de la vitesse relative. Un autre modèle appelé sphères moles variables ou « Variable Soft Sphere (VSS) » a été proposé par Koura et Matsumoto (Koura and Matsumoto 1991) qui conservent la dépendance du diamètre à la vitesse relative des molécules donnée par le modèle VHS et introduisent un angle de déviation ψ dépendant de la vitesse relative. Ces modèles sont très largement utilisés dans la simulation des écoulements raréfiés et leur confrontation sur un cas test est donnée dans (Sharipov and Strapasson 2013).

Dans la suite de nos travaux, nous utilisons le modèle de sphères dures pour des raisons de simplicité. Les résultats donnés par ce modèle peuvent être quantitativement différents de ceux donnés par des modèles beaucoup plus sophistiqués mais cela ne change pas les conclusions qualitatives et les discussions de cette étude relatives à des écoulements isothermes et à des températures approchant la température ambiante.

1.3 Interactions molécule-paroi

L'autre situation qui conduit au changement de vitesse moléculaire est l'interaction avec une paroi. Dans ce cas, la vitesse de réflexion notée $\mathbf{v_{refl}}$ est donnée par le modèle de Maxwell (Maxwell 1879) de réflexion spéculaire-diffuse pour lequel une fraction σ des molécules impactant la paroi est réfléchie d'une manière diffuse tandis que la fraction restante $(1-\sigma)$ est réfléchie d'une manière spéculaire (Figure 1.3). Le coefficient σ est appelé coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement tangentielle ; il dépend notamment du gaz, du matériau et de la forme des parois. Il est à noter que ce coefficient à une importance cruciale

dans la description des micro-écoulements pour lesquels les interactions molécule-paroi sont importantes.

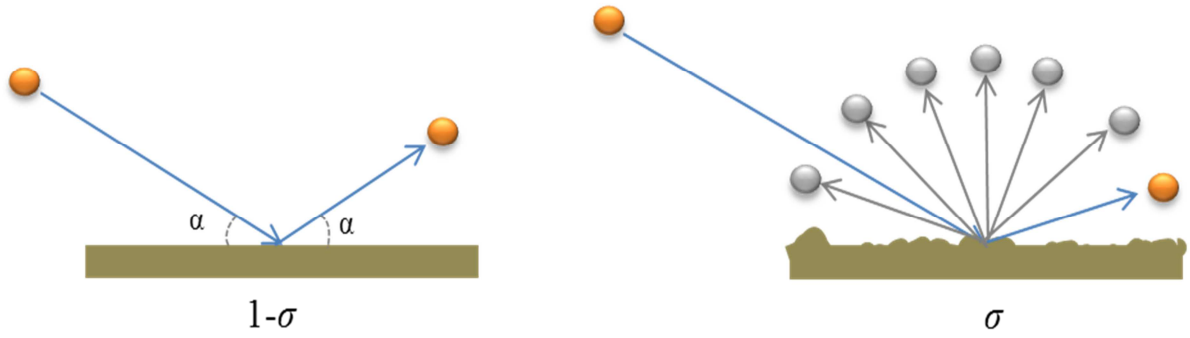

Figure 1.3 Modèle de réflexion de Maxwell

La réflexion spéculaire des molécules requiert une paroi lisse à l'échelle atomique. La paroi la plus lisse que l'on puisse trouver dans la nature est issue d'un clivage plan dans un cristal pur ; dans ce cas, les irrégularités proviennent essentiellement des vibrations thermiques et sont de l'ordre de 10^{-11} m à température ambiante. D'autre part, la longueur d'onde λ_m d'une molécule à la température ambiante donnée par l'équation de Broglie (eq.(1.16)) est aussi de l'ordre de 10^{-11} m.

$$\lambda_m = \frac{\hbar}{mv}, \tag{1.16}$$

où $\hbar$ est la constante de Planck, m la masse d'une molécule et v sa vitesse. La condition pour une réflexion parfaitement spéculaire est que les irrégularités de la paroi soient très petites devant la longueur d'onde d'une molécule (Present 1958). Même dans le cas le plus favorable, cette condition n'est pas satisfaite et raisonnablement la fraction des molécules réfléchies d'une manière diffuse devrait être dominante, i.e. σ devrait approcher l'unité. Ce raisonnement a été confirmé par des observations expérimentales rapportées par plusieurs auteurs (Zhang, Meng et al. 2012). Nous donnerons à titre d'exemple (Tableau 1.2) les valeurs obtenues par Colin et al. et Ewart al. et (Colin, Lalonde et al. 2004, Ewart, Perrier et al. 2007). Il est à noter que des disparités existent entre les valeurs introduites par les différents auteurs. Cela est dû d'une part au fait que σ dépend du matériau et de la géométrie du canal étudié, d'autre part à la méthode de détermination de σ réalisée souvent à partir d'une comparaison entre des mesures de débit massique et un modèle numérique ou analytique. Des différences de modèle auquel les mesures sont comparées peut conduire à des disparités au niveau de σ.

Gaz	Azote	Argon	Helium	source
σ	0,908 ± 0,041	0,871 ± 0,017	0,914 ± 0,009	(Ewart, Perrier et al. 2007)
	0,93	---	0,93	(Colin, Lalonde et al. 2004)

Tableau 1.2 Coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement tangentielle dans un microcanal en silice fondue de section circulaire (Ewart, Perrier et al. 2007) et dans un microcanal en silicium de section rectangulaire (Colin, Lalonde et al. 2004)

Dans le cas de réflexion spéculaire, la composante de vitesse moléculaire normale à la paroi change de signe tandis que les deux autres composantes restent inchangées. Dans le cas de réflexion diffuse, la distribution de vitesse (*cf* paragraphe 1.4) des molécules réfléchies f_{refl} est donnée par une répartition maxwellienne dépendant de la température de la paroi T_p :

$$f_{refl}(\mathbf{r_p}, \mathbf{v_{refl}}, t) = \frac{n_p(\mathbf{r_p}, t)}{(2\pi R T_p)^{3/2}} \exp\left(-\frac{\mathbf{v}^2}{2RT_p}\right) \text{ avec } \mathbf{v}.\mathbf{n} > 0\,, \tag{1.17}$$

en notant $\mathbf{r_p}$ la position des parois, n_p le flux de molécules impactant la paroi et $\mathbf{n}$ le vecteur unitaire normal à la paroi et orienté vers le gaz.

1.4 Fonction de distribution des vitesses et propriétés macroscopiques

On définit par $\mathbf{v}$ la vitesse moléculaire. La distribution de $\mathbf{v}$ est donnée par la fonction de distribution des vitesses $f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ qui représente à l'instant t le nombre de molécules ayant pour vitesse $\mathbf{v}$ dans un intervalle de confiance $\mathrm{d}\mathbf{v}$ et pour position $\mathbf{r}$ dans un intervalle de confiance d$\mathbf{r}$. La fonction de distribution des vitesses à une importance capitale dans la cinétique des gaz. Elle permet de faire le lien entre les propriétés moléculaires et les propriétés macroscopiques de l'écoulement. Les trois premiers moments de $f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ par rapport à la vitesse moléculaire $\mathbf{v}$ donnent respectivement la densité moléculaire n, la vitesse hydrodynamique $\mathbf{u}$ et la température T (Shen 2005) :

$$n(\mathrm{r}, t) = \int f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)\mathrm{d}\mathbf{v} \tag{1.18}$$

$$\boldsymbol{u} = \frac{1}{n(\mathbf{r}, t)} \int \mathbf{v}\, f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)\mathrm{d}\mathbf{v} \tag{1.19}$$

$$\frac{3}{2} n(\mathbf{r}, t) k_B T(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} m \int (\mathbf{v} - \mathbf{u})^2\, f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)\mathrm{d}\mathbf{v} \tag{1.20}$$

k_B étant la constante de Boltzmann et m la masse moléculaire.

1.5 Effets de raréfaction en micro-écoulements gazeux

Dans des conditions normales de température et de pression, les effets de raréfaction sont observés dans des écoulements à échelles microscopiques. Ces effets se traduisent par une augmentation du débit du fluide transporté par rapport aux prédictions des modèles classiques, un saut de vitesse à la paroi communément appelé vitesse de glissement et un saut de température à la paroi dans le cas d'écoulement non-isotherme (Karniadakis, Beskok et al. 2005). Ces effets peuvent être amplifiés par la diminution de la taille caractéristique du système et/ou la diminution de la pression, qui ont pour effet d'augmenter le nombre de Knudsen :

$$Kn = \frac{\lambda}{Lc} \tag{1.21}$$

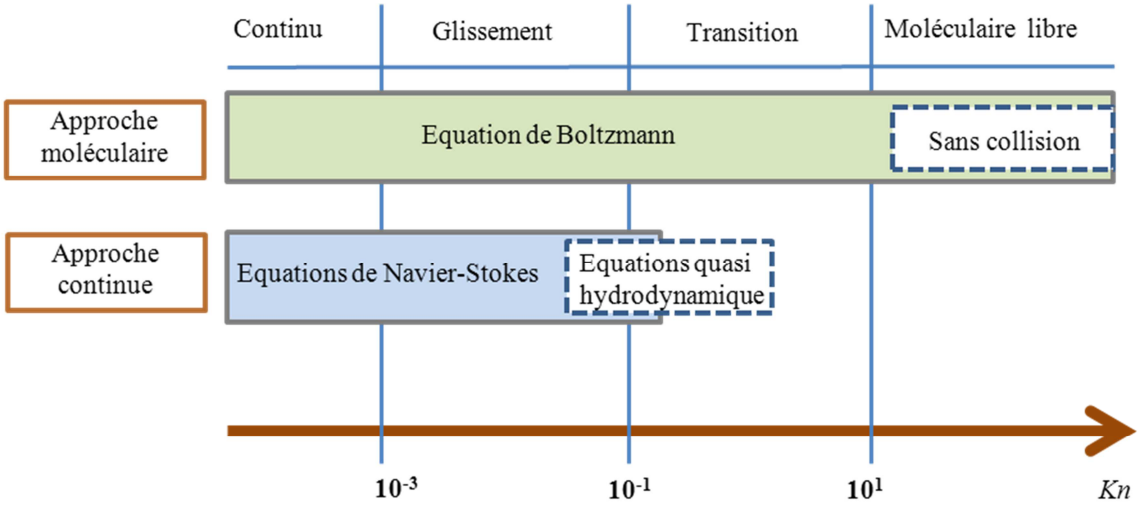

Figure 1.4 Régimes d'écoulement et modèles correspondants. Adapté de (Zhang, Meng et al. 2012)

On peut ainsi définir quatre régimes d'écoulement selon le degré de raréfaction, i.e. selon le nombre de Knudsen (Figure 1.4) :

- Le régime continu, lorsque $Kn < 10^{-3}$, qui est un cas limite où les effets de raréfaction sont négligeables. Dans ce cas, les écoulements gazeux sont bien modélisés par les équations de Navier-Stokes-Fourier.
- Le régime de glissement (slip flow regime), quand $10^{-3} < Kn < 10^{-1}$, régime dans lequel les effets de raréfaction sont localisés près de la paroi. Les équations de Navier-Stokes-Fourier avec des conditions de glissement aux parois (voir partie 1.6) ou des équations hydrodynamiques étendues telles que les équations quasi-gazodynamiques, les équations quasi-hydrodynamiques ou les équations de Burnett permettent, alors de modéliser l'écoulement (Zhang, Meng et al. 2012).

- Le régime de transition, lorsque $10^{-1} < Kn < 10^{1}$, dans lequel les effets de raréfaction se généralisent à tout l'écoulement. Ce régime n'est correctement décrit que par approche moléculaire, basée sur l'équation de Boltzmann (Bird 1994) :

$$\frac{\partial f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)}{\partial t} + \mathbf{v}\frac{\partial f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)}{\partial \mathbf{r}} + \mathbf{F}\frac{\partial f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)}{\partial \mathbf{v}} = Q(f, f^*) \tag{1.22}$$

  Dans l'équation (1.22), $\mathbf{F}$ est une force extérieure agissant sur une molécule et le terme $Q(f, f^*)$ est l'intégrale de collision décrivant les changements dans la distribution $f(\mathbf{r},\mathbf{v},t)$ des vitesses suite aux collisions. La complexité mathématique de cette équation est telle que même pour les cas les plus simples la solution analytique n'est pas connue. L'équation de Boltzmann est communément résolue en linéarisant l'intégrale de collision. L'une des méthodes les plus simples, utilisée en écoulement isotherme, est la méthode BGK (Bhatnagar-Gross-Krook), qui consiste à remplacer l'intégrale de collision par un terme représentant la différence entre la fonction de distribution inconnue et une distribution maxwellienne à la température considérée. Plus de détails sur cette méthode sont disponibles dans (Pitakarnnop 2009). Il existe également des outils numériques pour simuler l'équation de Boltzmann, le plus utilisé étant la DSMC (Direct Monte Carlo Simulation) (Bird 1994).

- Le régime moléculaire libre, si $Kn > 10^{1}$, cas limite où la raréfaction est telle que les molécules se déplacent librement sans interaction entre elles. Il est également décrit par l'équation de Boltzmann mais sans le terme de collision intermoléculaire (Present 1958).

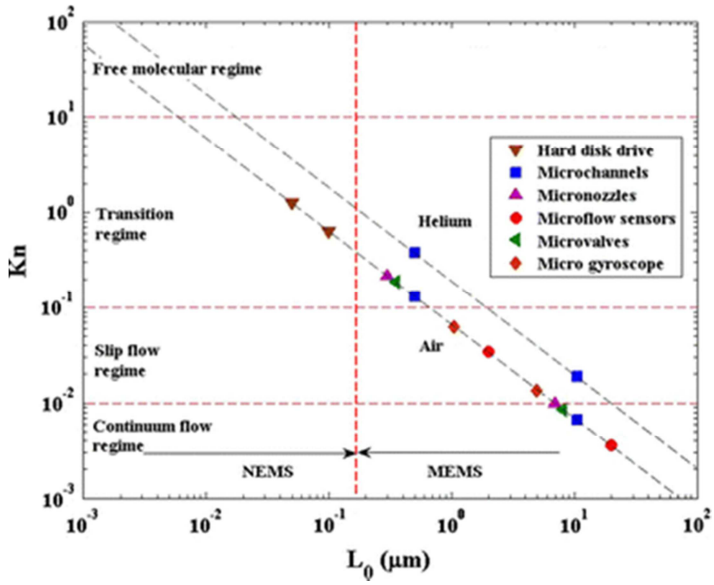

Figure 1.5 Dimensions caractéristiques des composants microfluidiques et nombre de Knudsen correspondant à pression atmosphérique (Zhang, Meng et al. 2012).

La Figure 1.5 représente les longueurs caractéristiques de composants typiques en microfluidique, ainsi que le nombre de Knudsen correspondant à pression atmosphérique. On peut constater qu'une grande partie de ces micro-écoulements évolue dans le régime de glissement. Dans la présente thèse, nous nous intéressons plus particulièrement à ce régime.

1.6 Modélisation des écoulements en régime glissant

Comme nous l'avons évoqué dans la partie 1.5, plusieurs modèles ont été développés pour modéliser les écoulements glissants. Nous nous limitons dans cette étude aux approches continues basées sur les équations de Naviers-Stokes appliquées aux écoulements isothermes. Dans cette partie, nous décrivons les conditions aux limites de glissement au premier ordre et ensuite au second ordre. Nous donnons ensuite deux exemples d'application de ces conditions aux limites, à des écoulements entre deux plaques planes puis à des écoulements dans des canaux de section rectangulaire. Nous décrivons enfin une autre approche continue relativement récente qui consiste à ajouter un terme diffusif aux équations de Navier-Stokes.

1.6.1 Conditions aux limites de glissement au premier ordre

Les conditions aux limites de glissement à la paroi ont été introduites pour la première fois par Maxwell (Maxwell 1879) afin de donner une explication aux observations de Crookes (Crookes 1874) concernant le radiomètre portant son nom. Ce radiomètre est constitué de quatre ailettes fixées sur un axe commun libre en rotation, chaque ailette ayant une face noircie et une face argentée. Lorsque le radiomètre est exposé à la lumière ou à la chaleur, les ailettes se mettent à tourner autour de l'axe. Maxwell formula une hypothèse purement

moléculaire qui consiste à dire qu'un mouvement de molécules au niveau de la paroi (un glissement) est généré par un gradient de température, le sens du mouvement étant orienté de la partie froide vers la partie chaude. A partir d'un bilan de quantité de mouvement au niveau de la paroi Maxwell démontra la présence d'un glissement à la paroi entre le gaz à la vitesse u et la paroi à la vitesse u_p. Une'expression de la vitesse de glissement u_{gliss} sur une paroi plane est donnée par (Maxwell 1879) :

$$u_{gliss} = u - u_p = \frac{2-\sigma}{\sigma}\lambda\left[\frac{\partial u}{\partial y} - \frac{3}{2}\frac{\mu}{\rho T}\frac{\partial^2 T}{\partial x \partial y}\right]_p + \frac{3}{4}\left[\frac{\mu}{\rho T}\frac{\partial T}{\partial x}\right]_p \tag{1.23}$$

où x et y représentent respectivement les directions tangentielle et normale à la paroi, l'indice p désignant la position de celle-ci. En l'absence de gradient de température le long de la paroi, la vitesse de glissement prend la forme :

$$u_{gliss} = u - u_p = \frac{2-\sigma}{\sigma}\lambda\left[\frac{\partial u}{\partial y}\right]_p \tag{1.24}$$

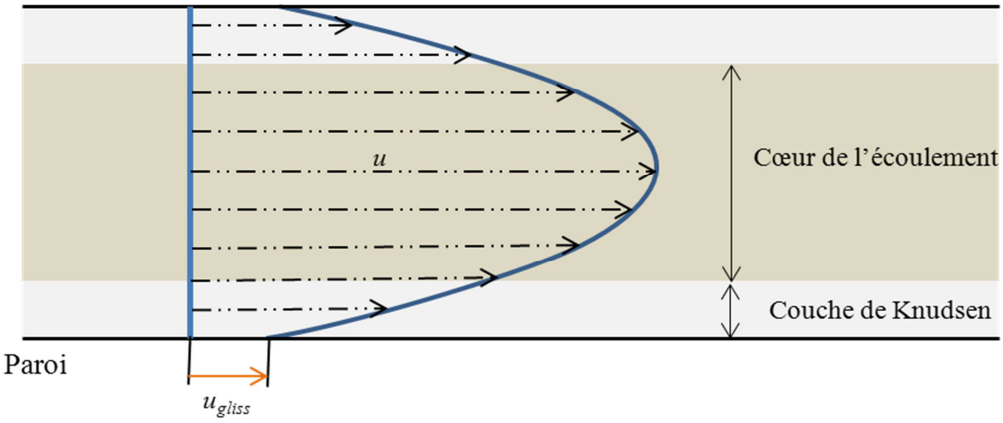

Figure 1.6 Schéma du glissement à l'interface gaz-paroi

La normalisation de l'expression (1.24) par la longueur caractéristique du système, $y^* = y / Lc$ permet de faire apparaitre le nombre de Knudsen :

$$u_{gliss} = u - u_p = \frac{2-\sigma}{\sigma} Kn\left[\frac{\partial u}{\partial y^*}\right]_p \tag{1.25}$$

L'expression (1.25) est connue sous le nom de *condition aux limites du premier ordre*. Le coefficient de glissement $C_1 = \frac{2-\sigma}{\sigma}$ initialement proposé par Maxwell est égal à l'unité pour une réflexion complètement diffuse $(\sigma = 1)$. Les simulations directes de Monte Carlo (DSMC) effectuées par Bird (Bird 1994) ont conforté cette valeur du coefficient de glissement. D'autres formes et valeurs du coefficient de glissement au premier ordre ont été

proposées dans la littérature pour améliorer les prédictions de ce modèle en les comparant à des données numériques ou à des mesures expérimentales (Zhang, Meng et al. 2012). Le Tableau 1.3 regroupe quelques valeurs du coefficient du glissement au premier ordre trouvées par différents auteurs :

Référence	Valeur /formule	Approche	Validité
(Maxwell 1879)	1	Dynamique Moléculaire	$Kn \leq 0{,}1$
(Ohwada, Sone et al. 1989)	1,114	Equations de Boltzmann linéarisées	$Kn \leq 0{,}1$
(Marques Jr, Kremer et al. 2000)	1,111	Analyse théorique	$Kn \leq 0{,}25$
(Albertoni, Cercignani et al. 1963)	1,1466	BGK	$Kn < 0{,}1$
(Siewert 2003)	1,1487	Equations de Boltzmann linéarisées	$Kn < 0{,}1$
(Wakabayashi, Ohwada et al. 1996)	1,1114	Equations de Boltzmann linéarisées	$Kn < 0{,}1$
(Loyalka 1971)	0,7252	BGK	$Kn < 0{,}1$
	$\frac{2-\sigma}{\sigma}(1-0{,}1871\sigma)$	BGK	$Kn < 0{,}1$
(Loyalka, Petrellis et al. 1975)	1,0299	BGK	$Kn < 0{,}1$
	$\frac{2-\sigma}{\sigma}(1+0{,}1621\sigma)$	BGK	$Kn < 0{,}1$
(Lockerby, Reese et al. 2005)	$\sqrt{\pi/2}$	Analyse théorique	$Kn < 0{,}1$
(Agrawal and Prabhu 2008)	1,13	Analyse de données expérimentales	$Kn < 0{,}1$
	1,7		$0{,}1 < Kn < 8{,}3$
(Pan, Liu et al. 1999)	1,1254	Simulations DSMC	$Kn < 0{,}1$
(Maurer, Tabeling et al. 2003)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	Analyse théorique et mesures expérimentales Simulation DSMC (γ_L est le	$Kn \sim 0{,}3 \pm 0{,}1$
Autres formes			
(Lilley and Sader 2008)	$\frac{1}{2Kn}\left(\frac{1}{\gamma_L}-1\right)$	Simulations DSMC (γ_L gradient de vitesse normalisé dans le plan médian)	$Kn < 0{,}1$
(Bahukudumbi 2003)	$1.2977 + 0.71851\tan^{-1}\left(-1.17488 Kn^{0{,}58642}\right)$	Equations de Boltzmann linéarisées	$Kn \leq 12$
(Karniadakis, Beskok et al. 2005)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{Kn}{1-b_{BK}}$	Navier-Stokes et DSMC. b_{BK} est un paramètre déterminé expérimentalement ou numériquement	plage complète de Kn

Tableau 1.3 Formes et valeurs du coefficient de glissement au premier ordre (Zhang, Meng et al. 2012)

Comme on peut s'en rendre compte en lisant le Tableau 1.3, il n'y a pas d'accord de la communauté scientifique sur une forme ou une valeur unique du coefficient de glissement. De

plus, à des nombres de Knudsen élevés, la théorie du glissement au premier ordre sous-estime les mesures expérimentales de débit. De ce fait des extensions des conditions aux limites de Maxwell au second ordre et à des ordres plus élevés ont été proposées dans la littérature.

1.6.2 Conditions aux limites de glissement au second ordre

Une simple extension du modèle (1.25) de Maxwell permet d'écrire :

$$u_{gliss} = u - u_p = C_1 Kn \left[\frac{\partial u}{\partial y*} \right]_p - C_2 Kn^2 \left[\frac{\partial^2 u}{\partial y*^2} \right]_p \tag{1.26}$$

Référence	C_1	C_2	Méthode /remarque
(Beskok and Karniadakis 1999)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	-0,5	Equations de Navier-Stokes
(Aubert and Colin 2001)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	9/8	Equations de Navier-Stokes
(Karniadakis and Beskok 2002)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	$-\frac{2-\sigma}{\sigma}$	Equations de Navier-Stokes
(Karniadakis and Beskok 2002)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	$\frac{2-\sigma}{\sigma}\frac{Re}{Kn}$	Equations de Navier-Stokes
(Roohi and Darbandi 2009)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	$-\frac{2-\sigma}{\sigma}$	Extension des Equations de Navier-Stokes
(Graur, Meolans et al. 2006)	$1.012\frac{\sqrt{2}}{k_\lambda}$	$\frac{2}{k_\lambda^2}$	Equations quasi-gazodynamiques
(Lockerby, Reese et al. 2004)	$\frac{2-\sigma}{\sigma}$	$\frac{9}{4\pi}\frac{\Pr(\gamma-1)}{\gamma}$	Equation de Boltzmann. γ est le rapport des capacités thermiques massiques du gaz
(Wu 2008)	$\frac{2}{3}\left[\frac{3-\sigma f_w^3}{\sigma} - \frac{3}{2}\frac{3(1-f_w^2)}{Kn}\right]$	$\frac{1}{4}\left[f_w^4 + \frac{2}{Kn^2}(1-f_w^2)\right]$	Cinétique des gaz. $f_w = \min[1/Kn\ ;\ 1]$
(Li, He et al. 2011)	1	0,8	Boltzmann en réseau

Tableau 1.4 Formes et valeurs des coefficients de glissement au second ordre (Zhang, Meng et al. 2012)

Plusieurs valeurs des coefficients de glissement C_1 et C_2 ont été proposées dans la littérature. Souvent, les auteurs ajustent leurs conditions aux limites en comparant la solution des équations de Navier-Stokes à des mesures de débit (Colin, Lalonde et al. 2004, Ewart, Perrier et al. 2007, Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010, Perrier, Graur et al. 2011). Cette méthode de détermination des coefficients de glissement repose sur la connaissance préalable

du coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement σ. La table ci-dessus regroupe quelques valeurs des coefficients de glissement.

Le Tableau 1.4 témoigne de l'absence d'accord de la communauté scientifique sur les valeurs du coefficients au second ordre. Ces différents modèles sont comparés aux mesures expérimentales de débit de Colin et al. (Colin, Lalonde et al. 2004) sur la Figure 1.7, S représente le débit massique normalisé par le débit massique donné par les équations de Navier-Stokes sans conditions de glissement. Les mesures expérimentales ont été réalisées dans un microcanal de section rectangulaire de 0,545×50 µm². On constate que le modèle de Li approche au mieux les données expérimentales.

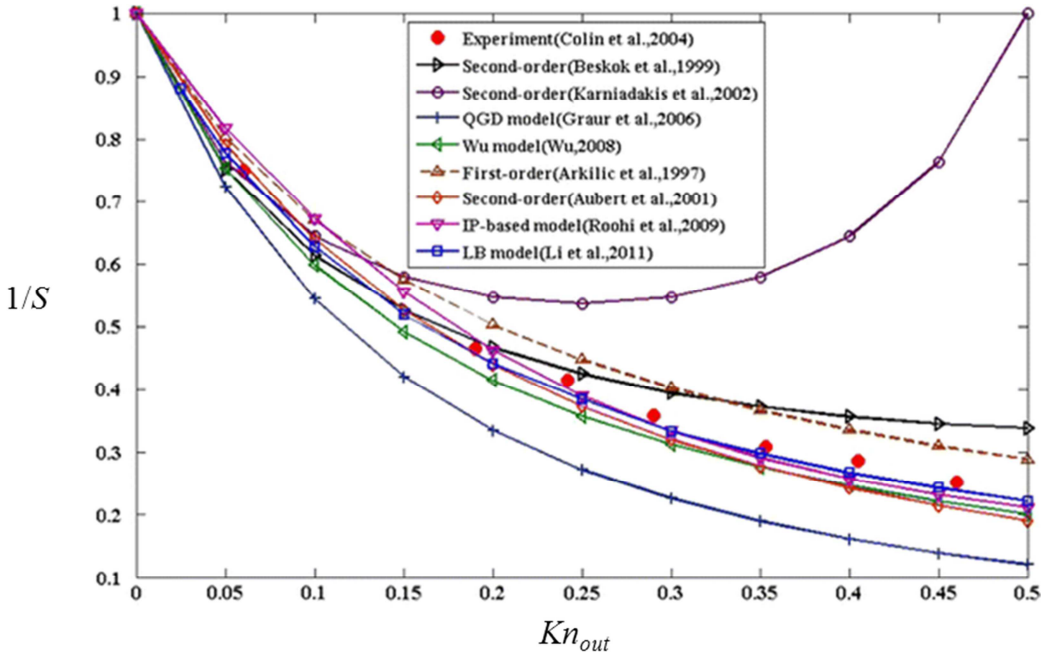

Figure 1.7 Comparaison de modèles de glissement au premier et second ordre avec des données expérimentales (Zhang, Meng et al. 2012) : inverse du débit massique adimensionnel en fonction du nombre de Knudsen Kn_{out} à la sortie du canal.

1.6.3 Ecoulements entre deux plaques planes parallèles

Soit un écoulement dans un canal de longueur L et de section rectangulaire, de largeur $2W$ et de hauteur $2H$ (Figure 1.8). On suppose l'écoulement laminaire, localement pleinement développé. Cela suppose que l'écoulement est considéré incompressible dans une section donnée du canal. La non linéarité de la distribution de pression qui caractérise les micro-écoulements gazeux est prise en compte en calculant l'intégrale du débit le long du canal. Dans la limite , l'équation de bilan de quantité de mouvement appliquée sur une section du canal s'écrit :

$$\frac{\mathrm{d}^2 u}{\mathrm{d}y^2} = \frac{1}{\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}. \tag{1.27}$$

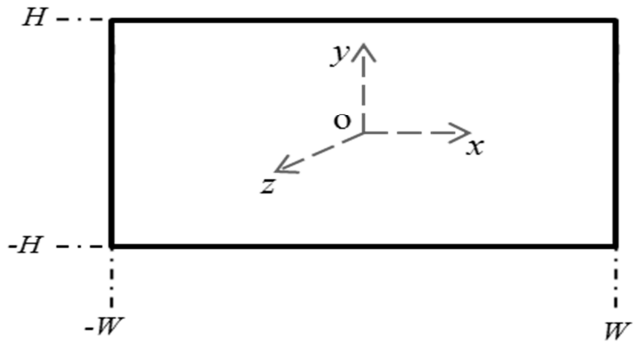

Figure 1.8 Schéma d'un canal de section rectangulaire et coordonnées du système

La symétrie du problème suivant l'axe (O*x*) permet d'écrire :

$$\left.\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}y}\right|_{y=0} = 0. \tag{1.28}$$

On applique les conditions aux limites d'ordre deux :

$$u\big|_{y=\pm H} = \mp C_1 \lambda \left.\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}y}\right|_{y=\pm H} - C_2 \lambda^2 \left.\frac{\mathrm{d}^2 u}{\mathrm{d}y^2}\right|_{y=\pm H} \tag{1.29}$$

où C_1 et C_2 sont respectivement les coefficients de glissement de premier et de second ordres qui dépendent du coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement σ (*cf* Tableau 1.4).

L'intégration de l'équation (1.27) avec les conditions aux limites précédemment décrites permet d'obtenir l'expression de la vitesse

$$u = -\frac{H^2}{2\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}\left(1 - \frac{y^2}{H^2} + 2C_1\frac{\lambda}{H} + 2C_2\frac{\lambda^2}{H^2}\right). \tag{1.30}$$

En introduisant le nombre de Knudsen $Kn = \lambda/2H$, l'équation (1.30) devient :

$$u = -\frac{H^2}{2\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}\left(1 - \frac{y^2}{H^2} + 4C_1 Kn + 8C_2 Kn^2\right). \tag{1.31}$$

En posant $y^* = y/H$ on obtient l'expression de la vitesse normalisée :

$$u^* = \frac{u}{-\frac{H^2}{2\mu}\frac{\mathrm{d}P}{\mathrm{d}z}} = 1 - y^{*2} + 4C_1 Kn + 8C_2 Kn^2. \tag{1.32}$$

La vitesse moyenne adimensionnelle est alors donnée par :

$$\overline{u^*} = \frac{1}{2}\int_{-1}^{+1} u^* dy^* = \frac{2}{3} + 4C_1 Kn + 8C_2 Kn^2. \tag{1.33}$$

Le débit massique dans une section du canal s'écrit ainsi, en introduisant l'équation d'état des gaz parfaits :

$$\dot{m} = 4\rho\,\bar{u}\,H\,W = -\frac{2H^3W}{\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}\frac{p}{RT}\left(\frac{2}{3}+4C_1Kn+8C_2Kn^2\right). \tag{1.34}$$

L'hypothèse d'écoulement isotherme ainsi que les hypothèses précédemment évoquées imposent que seule la pression varie le long du canal. D'autre part, le nombre de Knudsen ne dépend que de la pression locale p et il est inversement proportionnel à cette dernière, par conséquent la quantité $Kn\,p$ est constante le long du canal. On peut donc écrire $Kn\,p = Kn_{out}\,p_{out}$, p_{out} étant la pression à la sortie du canal et p_{in} la pression à l'entrée du canal. L'équation (1.34) devient donc :

$$\dot{m} = -\frac{2H^3W}{\mu}\frac{\mathrm{d}p}{\mathrm{d}z}\frac{1}{RT}\left(\frac{2p}{3}+4C_1Kn_{out}\,p_{out}+8C_2\frac{Kn_0^2\,p_0^2}{p}\right). \tag{1.35}$$

Le débit massique dans le canal en fonction des pressions d'entrée et de sortie est alors donné par l'intégration de (1.35) le long du canal :

$$\dot{m} = \frac{1}{L}\int_0^L \dot{m}\mathrm{d}z = -\frac{2H^3W}{\mu L}\frac{1}{RT}\int_{p_i}^{p_0}\left(\left(\frac{2p}{3}+4C_1Kn_{out}\,p_{out}+8C_2\frac{Kn_{out}^2\,p_{out}^2}{p}\right)\right)\mathrm{d}p\,. \tag{1.36}$$

Finalement, le débit massique $\dot{m}$ et le débit massique $\dot{m}*$ adimensionnalisé par le débit obtenu dans le cas non glissant prennent respectivement les formes :

$$\dot{m} = \frac{2H^3W}{\mu L}\frac{p_{out}^2}{RT}\left(\frac{\Pi^2-1}{3}+4C_1Kn_{out}(\Pi-1)+8C_2Kn_{out}^2\ln\Pi\right), \tag{1.37}$$

$$\dot{m}* = \frac{\dot{m}}{\frac{2H^3W}{\mu L}\frac{p_{out}^2}{RT}\left(\frac{\Pi^2-1}{3}\right)} = 1+12C_1Kn_{out}\frac{1}{\Pi+1}+24C_2Kn_{out}^2\frac{\ln\Pi}{\Pi^2-1}, \tag{1.38}$$

en notant $\Pi = p_{in}/p_{out}$ le rapport des pressions amont sur aval. L'expression (1.38) montre que le débit massique obtenu en prenant en compte l'effet du glissement à la paroi est bien supérieur au débit non glissant donné par les équations de Navier-Stokes avec des conditions d'adhésion à la paroi. Ce résultat classique est conforme aux observations expérimentales (Ewart, Perrier et al. 2007).

1.6.4 Ecoulements dans un canal de section rectangulaire

On considère maintenant le cas d'un canal de section rectangulaire avec un rapport de forme $a = H/W$, avec $H < W$. L'équation (1.27) prend la forme :

$$\frac{\partial^2 u}{\partial y^2}+\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}=\frac{1}{\mu}\frac{\mathrm{d}\,p}{\mathrm{d}\,z}\,, \tag{1.39}$$

les conditions de symétrie suivant les deux axes (Ox) et (Oy) sont données par :

$$\left.\frac{\partial u}{\partial x}\right|_{x=0}=0 \text{ et } \left.\frac{\partial u}{\partial y}\right|_{y=0}=0\,. \tag{1.40}$$

Les conditions aux limites d'ordre deux sont données dans le cas d'un écoulement localement pleinement développé par :

$$\begin{aligned} u\big|_{x=\pm W} &= \mp C_1\lambda\left.\frac{\partial u}{\partial x}\right|_{x=\pm W}-C_2\lambda^2\left(\left.\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\right|_{x=\pm W}+C_3\left.\frac{\partial^2 u}{\partial y^2}\right|_{x=\pm W}\right)\\ u\big|_{y=\pm H} &= \mp C_1\lambda\left.\frac{\partial u}{\partial y}\right|_{y=\pm H}-C_2\lambda^2\left(\left.\frac{\partial^2 u}{\partial y^2}\right|_{y=\pm H}+C_3\left.\frac{\partial^2 u}{\partial x^2}\right|_{y=\pm H}\right)\end{aligned}\,. \tag{1.41}$$

Une solution au problème aux valeurs propres décrit par les équations (1.39) à (1.41) dans le cas où $C_3=1/2$ est proposée dans (Aubert and Colin 2001). La vitesse adimensionnelle en fonction des coordonnées réduites $y^*=y/H$ et $x^*=x/W$ est donnée par :

$$u^*(x^*,y^*)=\sum_{i,j=1}^{\infty}A_{ij}N_{ij}\cos\left(\varphi_i\,x^*/a\right)\cos(\psi_j y^*)+2C_2Kn^2\,, \tag{1.42}$$

avec

$$\begin{aligned} A_{ij}N_{ij} &= \frac{1}{\varphi_i^2+\psi_j^2}\left(\frac{4\sin(\varphi_i/a)\sin(\psi_j)}{\varphi_i\psi_j}+4\frac{C_2}{C_1}Kn\frac{\sin(\varphi_i/a)\cos(\psi_j)}{\varphi_i}+4\frac{C_2}{C_1}Kn\frac{\cos(\varphi_i/a)\sin(\psi_j)}{\psi_i}\right)\\ &\times\left[\left(\frac{1}{a}+\frac{\cos(\varphi_i/a)\sin(\varphi_i/a)}{\varphi_i}\right)\left(1+\frac{\cos(\psi_j)\sin(\psi_j)}{\psi_j}\right)\right.\\ &\left.+2\frac{C_2}{C_1}Kn\cos^2(\psi_j)\left(\frac{1}{a}+\frac{\cos(\varphi_i/a)\sin(\varphi_i/a)}{\varphi_i}\right)+2\frac{C_2}{C_1}Kn\cos^2(\varphi_i/a)\left(1+\frac{\cos(\psi_j)\sin(\psi_j)}{\psi_j}\right)\right]^{-1}\end{aligned} \tag{1.43}$$

Pour satisfaire les conditions aux limites (1.41), les deux fonctions $\cos\left(\varphi_i\,x^*/a\right)$ et $\cos(\psi_j y^*)$ doivent satisfaire les deux équations ci-dessous qui sont résolues numériquement :

$$\begin{aligned} 1-2C_1\,Kn\,\psi_j\tan\psi_j-2C_2\,Kn^2\,\psi_j^2&=0\\ 1-2C_1\,Kn\,\varphi_i\tan(\varphi_i/a)-2C_2\,Kn^2\,\varphi_j^2&=0\end{aligned}\,. \tag{1.44}$$

D'une manière similaire au calcul présenté dans le paragraphe 1.6.3, après détermination du débit massique $\dot{m}$ dans une section du canal, l'intégration de $\dot{m}$ le long du canal permet d'obtenir une expression explicite du débit massique transporté :

$$\dot{m} = -\frac{4h^4}{a\mu\, l}\frac{p_0^2}{RT}\left(\frac{a_1(\Pi^2-1)}{2} + a_2 Kn_0(\Pi-1) + a_3 Kn_0^2 \ln\Pi\right). \tag{1.45}$$

Les coefficients a_i pour $i=\{1;2;3\}$ sont calculés numériquement. Ces trois coefficients dépendent du facteur de forme a et a_2 et a_3 dépendent en plus des coefficients de glissement C_1 et C_2, eux-mêmes dépendant du coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement σ. Des valeurs tabulées de a_i sont disponibles dans (Pitakarnnop 2009) pour des valeurs spécifiques de C_1 et C_2.

Les prédictions du modèle données par (1.45) ont été comparées (Figure 1.9) à des mesures de débit massique ainsi qu'à des résultats numériques obtenus par la méthode BGK dans (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010).

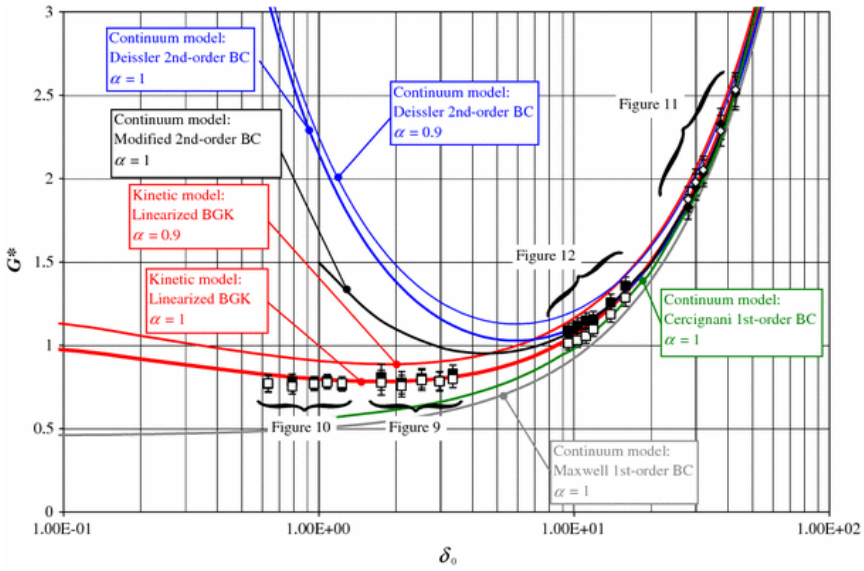

Figure 1.9 Prédictions du modèle continu (l'équation (1.45)) comparées à des mesures expérimentales et à un modèle moléculaire. G^* est le débit massique adimensionnel et δ_o le paramétré de raréfaction à la sortie du canal (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010).

Les résultats montrent que ce modèle donne des résultats en bon accord avec l'expérience jusqu'à des nombres de Knudsen de l'ordre de 0,1. Le meilleur accord trouvé avec les expériences correspond à une réflexion totalement diffuse ($\sigma=1$) et pour des valeurs des coefficients de glissement combinant les coefficients rapportés par (Hadjiconstantinou 2003) et ceux rapportés par (Deissler 1964), soit $C_1=1{,}1466, C_2=-0{,}647$ et $C_3=1/2$.

1.6.5 Approche diffusive

Une alternative à l'utilisation des conditions de glissement associées aux équations de Navier-Stokes consiste à considérer le transfert de masse comme une combinaison d'une partie convective et d'une partie diffusive. Plusieurs auteurs ont proposé de rajouter un terme diffusif à l'expression du débit donnée par la loi de Poiseuille (Pollard and Present 1948, Lund and Berman 1966, Veltzke, Baune et al. 2012, Veltzke and Thöming 2012). Une autre approche, qui consiste à modifier le terme de vitesse dans les équations de Navier-Stokes, a été proposée dans la littérature (Brenner 2005, Dongari, Sharma et al. 2009, Dongari, Durst et al. 2010, Dadzie and Brenner 2012, Lv, Liu et al. 2013). Ainsi deux vitesses sont introduites (Brenner 2005) :

- une vitesse $\mathbf{u_m}$ dite massique, qui est proportionnelle au débit transporté et satisfait la conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla.\left(\rho \mathbf{u_m}\right) = 0 \tag{1.46}$$

- une vitesse $\mathbf{u_v}$ dite volumique, intervenant dans le terme visqueux $\mathbf{T}$ décrivant un fluide Newtonien dans les équations de Navier-Stokes :

$$\mathbf{T} = 2\mu\left[1/2\,(\nabla\mathbf{u} + (\nabla\mathbf{u})^{\mathrm{T}}) - 1/3\nabla.\mathbf{u}\mathbf{I}\right], \quad \mathbf{u} = \mathbf{u_v} \tag{1.47}$$

L'originalité de ce modèle à deux vitesses réside dans l'utilisation d'une vitesse dite volumique $\mathbf{u_v}$ dans le terme visqueux des équations de Navier-Stokes : si l'on impose $\mathbf{u} = \mathbf{u_m}$ dans l'équation (1.47), on retrouve bien les équations de Navier-Stokes classiques. Cette nouvelle vitesse a été introduite pour permettre une meilleure réinterprétation de certains effets observés en mécanique des fluides compressibles (Brenner 2005) dont : (i) le mouvement thermochimique et les mouvements de particules dans des fluides sous l'effet d'un gradient de densité $\nabla\rho$, ce gradient de densité pouvant être généré soit pas un gradient de température, soit par un gradient de concentration (cas d'écoulement multi-espèces), (ii) la réécriture des conditions aux limites de glissement de Maxwell : contrairement au modèle classique où le glissement est imposé à $\mathbf{u_m}$, dans le présent modèle le glissement est imposé à la vitesse diffusive $\mathbf{u_v}$.

Les écoulements chargés en particules présentent un exemple montrant la différence entre les deux vitesses. La vitesse donnée par le suivi spatio-temporel des petites particules (supposées soumises à un mouvement Brownien négligeable) introduites en petite quantité dans l'écoulement du fluide est la vitesse diffusive $\mathbf{u_v}$. La vitesse diffusive est différente de

la vitesse massique $\mathbf{u_m}$ qui elle, peut être visualisé par exemple grâce à l'introduction d'un colorant, ou par suivi de molécules luminescente (MTV). Les deux vitesses $\mathbf{u_v}$ et $\mathbf{u_m}$ ne sont pas indépendantes : la relation les liant est donné par (Brenner 2005) :

$$\mathbf{u_v} = \mathbf{u_m} + \mathbf{J_v}, \tag{1.48}$$

où $\mathbf{J_v}$ représente le flux volumique diffusif généré par un gradient de densité (cas d'écoulement mono-espèce) :

$$J_v = D\boldsymbol{\nabla}\left(\ln\rho\right). \tag{1.49}$$

Dans (1.49), D est le coefficient de diffusion. Dans le cas de fluide incompressible où la densité est uniforme, $\mathbf{J_v}$ s'annule et les deux vitesses $\mathbf{u_v}$ et $\mathbf{u_m}$ coïncident.

Dans l'hypothèse d'écoulement laminaire, stationnaire et localement pleinement développé et dans le cas de l'approximation $H \ll W$ (Figure 1.8), les vitesses massique et volumique se réduisent aux seules composantes longitudinales qui varient suivant y : $u_{m,z}(y)$ et $u_{v,z}(y)$. Les équations de conservation de la masse et le bilan de quantité de mouvement peuvent se réécrire respectivement sous la forme (Dadzie and Brenner 2012) :

$$\rho\frac{\partial u_{m,z}}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial z}\left[\rho u_{v,z}\right] - D\rho\frac{\mathrm{d}^2\ln\rho}{\mathrm{d}\,z^2} = 0\ ; \tag{1.50}$$

$$\mu\frac{\partial^2 u_{v,z}}{\partial y^2} = \frac{\mathrm{d}\,p}{\mathrm{d}\,z}. \tag{1.51}$$

On admet un glissement à la paroi pour la vitesse volumique $u_{v,x}$ de la forme :

$$u_{v,z}\left(y = \pm H\right) = \mp C_1\lambda_{out}\rho_{out}\frac{1}{\rho}\left[\frac{\partial u_{v,z}}{\partial y}\right]_{y=H} = \mp C_1\lambda_{out}\rho_{out}\frac{1}{\rho}\left[\frac{\partial u_{m,z}}{\partial y}\right]_{y=H}. \tag{1.52}$$

Le coefficient de glissement C_1 est introduit pour permettre une comparaison avec des expressions obtenues par les équations de Navier-Stokes avec des conditions aux limites de glissement du premier ordre. L'indice « *out* » indique que les valeurs sont calculées à la sortie. Nous verrons par la suite (Dadzie and Brenner 2012) que cette condition de glissement à la paroi n'est pas nécessaire à cette approche pour donner des prédictions en bon accord avec l'expérience. La solution de l'équation (1.51) avec la condition aux limites (1.52) est donnée par :

$$u_{v,z} = \frac{1}{2\mu}\frac{dp}{dz}\left(y^2 - H^2 - 2\frac{\mu}{\rho}E\right) \tag{1.53}$$

avec

$$E = 2C_1 \frac{H^2 Kn_{out}}{\upsilon_{out}} . \tag{1.54}$$

Dans l'équation (1.54), υ_0 est la viscosité cinématique. En introduisant l'expression (1.53) dans l'équation (1.50), on obtient une expression de la vitesse massique :

$$u_{m,z} = -\frac{1}{2\mu}\left(\frac{1}{3}y^3 - H^2 y\right)\frac{1}{\rho}\frac{d}{dz}\left[\rho\frac{dp}{dz}\right] + E\,y\frac{1}{\rho}\frac{d^2 p}{dz^2} + y\,D\frac{d^2 \ln\rho}{dz^2} + C^*(z) , \tag{1.55}$$

dans laquelle la constante d'intégration $C^*(z)$ s'annule en prenant en compte la condition aux limites (1.52). L'introduction de $u_{m,z}(y = \pm H)$ dans (1.52) permet d'en déduire que la distribution de la pression le long du canal obéit à l'équation :

$$\frac{1}{3}H^2\frac{d}{dz}\left[\rho\frac{dp}{dz}\right] + E\frac{d^2 p}{dz^2} + D\rho\frac{d^2 \ln\rho}{dz^2} = 0 . \tag{1.56}$$

On introduit la loi des gaz parfaits $p = \rho RT$ ainsi que les égalités $p\,dp/dz = d(p^2/2)/dz$ et $D = k/\left(c_p\,\rho\right)$ en notant k la conductivité thermique et c_p la capacité thermique massique à pression constante. L'équation (1.56) devient alors :

$$\frac{d}{dz^2}\left[p^2 + \frac{6\mu\,RT}{H^2}\left(E\,p + \frac{k}{c_p}\ln p\right)\right] = 0 . \tag{1.57}$$

L'intégration de l'équation (1.57) donne alors

$$\left(\frac{p}{p_{out}}\right)^2 + F\frac{p}{p_{out}} + G\left[\ln\left(\frac{p}{p_{out}}\right) + \ln p_{out}\right] = C^{**}\frac{z}{L} + C^{***} \tag{1.58}$$

avec

$$F = \frac{6\mu\,RT}{H^2 p_{out}} \quad \text{et} \quad G = \frac{6\mu\,RT}{H^2 p_{out}^2}\frac{k}{c_p} = \frac{6k_\lambda{}^2}{\Pr}Kn_{out}^2 . \tag{1.59}$$

Dans (1.59), $\Pr$ est le nombre de Prandtl et k_λ est le coefficient apparaissant dans l'expression du libre parcours moyen (Eq. (1.2)) et il est lié au modèle mopoléculaire considéré. Par exemple, $k_\lambda = 16/\left(5\sqrt{2\pi}\right)$ pour le modèle de sphères dures (Tableau 1.1). Les constantes d'intégration C^{**} et C^{***} dans (1.58) sont déterminées à l'aide de la connaissance de la pression à l'entrée et à la sortie du canal p_{in} et p_{out} respectivement:

$$C^{**} = -\left[\left(\Pi^2 - 1\right) + F\left(\Pi - 1\right) + G\ln\Pi\right] \quad ; \quad C^{***} = \Pi^2 + F\Pi + G\left(\ln\Pi + \ln p_{out}\right) . \tag{1.60}$$

L'intégration des constantes C^{**} et C^{***} dans l'équation (1.58) permet d'obtenir l'équation finale donnant la distribution de pression le long du canal :

$$\left(\frac{p}{p_{out}}\right)^2 + F\frac{p}{p_{out}} + G\ln\left(\frac{p}{p_{out}}\right) = \left[\left(\Pi^2 - 1\right) + F\left(\Pi - 1\right) + G\ln\Pi\right]\left(1 - \frac{z}{L}\right) + (1+F)\frac{z}{L}. \quad (1.61)$$

Le débit massique transporté dans le canal est alors donné par :

$$\dot{m} = 2W\int_{-H}^{H}\rho u_{m,z}dy = -\frac{2W\,H^3}{3\mu\,RT}\frac{d}{dz}\left[p^2 + \frac{6\mu\,RT}{H^2}\left(E\,p + \frac{k}{c_p}\ln p\right)\right]. \quad (1.62)$$

Le terme entre crochets dans l'équation (1.57) est identique au terme entre crochets dans l'équation (1.62), ce terme étant dérivé par rapport x dans l'équation (1.62), cette dernière équation devient ainsi :

$$\dot{m} = -\frac{2W\,H^3 p_{out}^2}{3L\,\mu\,RT}C^{**}. \quad (1.63)$$

En écoulement raréfié, le coefficient de diffusion dépend du nombre de Knudsen et donc de la géométrie du canal (Dongari, Sharma et al. 2009, Veltzke and Thöming 2012, Frezzotti, Si Hadj Mohand et al. 2014). Pour un canal rectangulaire dans la limite $H \ll W$, les auteurs (Dadzie and Brenner 2012) proposent un coefficient de diffusion effectif D^* dépendant de la géométrie selon :

$$D^* = D\frac{L}{2W} = \frac{K\,L}{2\rho\,c_p W} \quad (1.64)$$

En remplaçant C^{**} par l'expression (1.60) et en intégrant l'équation(1.62), on obtient une expression du débit massique qui fait intervenir le coefficient de glissement du premier ordre C_1, le reste des coefficients représentent des grandeurs physiques bien connues :

$$\dot{m} = \frac{2WH^3 p_{out}^2}{3L\mu RT}\left[\left(\Pi^2 - 1\right) + 12C_1 Kn_{out}\left(\Pi - 1\right) + \frac{12k_\lambda^2 W}{\Pr L}Kn_{out}^2\ln\Pi\right]. \quad (1.65)$$

Pour des nombres Knudsen faibles, les termes en Kn_{out} et en Kn_{out}^2 sont négligeables et on retrouve bien le débit massique pour un écoulement compressible non glissant prédit par les équations de Navier-Stokes classiques. Le cas où le terme en Kn_{out}^2 est négligeable correspond aux prédictions des équations de Navier-Stokes avec des conditions aux limites du premier ordre. Le terme en Kn_{out}^2 apparaissant dans l'expression du débit massique (1.65) sans avoir appliqué des conditions de glissement aux parois du second ordre n'est pas un effet de paroi mais représente la contribution de la vitesse diffusive introduite dans l'équation (1.48). Les

prédictions de l'expression (1.65) avec $C_1 = 1$ sont comparées aux mesures expérimentales (Ewart, Perrier et al. 2007). Le débit massique est donné sous sa forme adimensionnelle dans la (Figure 1.10) :

$$G_m = \dot{m}\left[\frac{8WH^2}{L\sqrt{2RT}}(p_i - p_0)\right]^{-1} \tag{1.66}$$

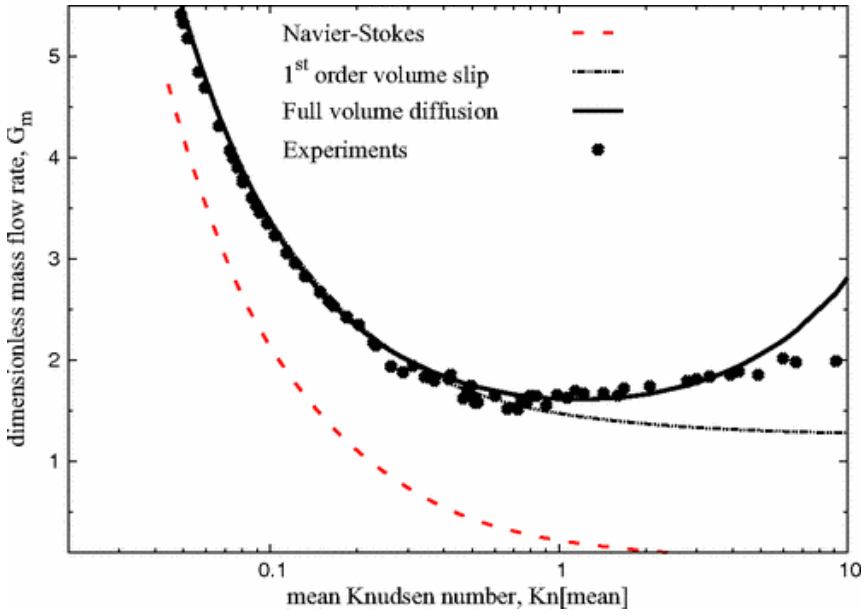

Figure 1.10 Prédictions du modèle diffusif (équation(1.65)) comparées à des données expérimentales obtenues par Ewart et al. (Ewart and Perrier et al. 2007). Le nombre de Knudsen moyen est calculé à la pression moyenne entre l'entré et la sortie du canal. (Dadzie and Brenner 2012).

La Figure 1.10 confirme que les prédictions du modèle de Navier-Stokes non-glissant ne sont pas en accord avec les données expérimentales pour des nombres de Knudsen moyens supérieurs à 10^{-2}. L'adoption des conditions aux limites du premier ordre permet d'obtenir des prédictions en accord avec l'expérience jusqu'à un nombre de Knudsen proche de l'unité. Le modèle diffusif proposé par Dadzie et Brenner (équation (1.65)) est en bon accord avec l'expérience jusqu'à un nombre de Knudsen proche de 5 ; au-delà de cette valeur, le modèle sous-estime les mesures expérimentales.

Il est à noter que la validité de l'hypothèse selon laquelle le coefficient de diffusion varie avec les dimensions du canal suivant l'expression (1.64) n'a pas encore été démontrée. Des premières estimations de D^* (Frezzotti, Si Hadj Mohand et al. 2014) avec des simulations par DSMC pour un gaz à l'équilibre entre deux plaques planes montrent une variation assez complexe de D^* avec la distance entre les plaques, probablement pas prise en compte par la simple expression $D^* = D\dfrac{L}{2W}$.

1.7 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre quelques notions moléculaires en nous intéressant aux collisions moléculaires et aux interactions molécule paroi. Nous avons aussi décrit la modélisation des micro-écoulements gazeux par une approche continue, en utilisant des conditions aux limites de glissement appliquées aux équations de Navier-Stokes. Depuis le premier modèle de glissement de Maxwel (Maxwell 1879), plusieurs dizaines de modèles ont vu le jour. A ce niveau, nous avons noté l'absence de consensus scientifique sur d'une part la forme du coefficient de glissement en fonction du coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement σ et d'autre part la valeur de σ qui dépend à la fois du gaz et de la nature des parois (matériau et forme).

Plus récemment, plusieurs auteurs ont opté pour la modification des équations de Naviers-Stokes en ajoutant un terme diffusif à la place et/ou en plus des CLs de glissement. Les résultats des modèles sont ensuite comparés à des mesures de débit, mais l'absence de mesures locales de vitesse ne donne pas la possibilité de valider de façon unanime ces résultats. En effet, des mesures locales de vitesse permettraient de dissocier l'effet de la forme des CLs de glissement et l'effet du coefficient d'accommodation à la quantité de mouvement, mais aussi de juger quant à la capacité des modèles à capter les discontinuités locales présentes au niveau de la couche de Knudsen. Cependant, la mesure de vitesse dans ce type d'écoulements présente plusieurs verrous scientifiques que nous détaillerons dans le chapitre suivant, dans lequel nous présenterons également l'état de l'art en matière d'expérimentations en micro-écoulements gazeux.

References

Agrawal, A. and S. V. Prabhu (2008). "Deduction of slip coefficient in slip and transition regimes from existing cylindrical Couette flow data." Experimental Thermal and Fluid Science 32(4): 991-996.

Albertoni, S., C. Cercignani and L. Gotusso (1963). "Numerical Evaluation of the Slip Coefficient." Physics of Fluids 6(7): 993-996.

Aubert, C. and S. Colin (2001). "High-order boundary conditions for gaseous flows in rectangular microchannels." Microscale Therm. Eng 5(1): 41–54.

Bahukudumbi, P. (2003). "A unified engineering model for steady and quasi-steady shear-driven gas microflows." Microscale Thermophysical Engineering 7(4): 291-315.

Beskok, A. and G. Karniadakis (1999). "A model for flows in channels, pipes, and ducts at micro and nano scales." journal of Microscale Thermophysics Engineering 3: 43-77.

Bird, G. (1994). Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows. New York, Oxford Science Publications.

Bird, G. A. (1981). "Monte Carlo simulation in an engineering context " Progr. Astro. Aero. 74: 239-255.

Brenner, H. (2005). "Navier–Stokes revisited." Physica A: Statistical Mechanics and its Applications 349(1–2): 60-132.

Colin, S., P. Lalonde and R. Caen (2004). "Validation of a Second-Order Slip Flow Model in Rectangular Microchannels." Heat Transfer Engineering 25(3): 23-30.

Crookes, W. (1874). "On Attraction and Repulsion Resulting from Radiation." Philosophical Transactions of the Royal Society of London 164: 501-527.

Dadzie, S. K. and H. Brenner (2012). "Predicting enhanced mass flow rates in gas microchannels using nonkinetic models." Physical Review E 86(3): 036318.

Deissler, R. G. (1964). "An analysis of second-order slip flow and temperature-jump boundary conditions for rarefied gases." International Journal of Heat and Mass Transfer 7(6): 681-694.

Dongari, N., F. Durst and S. Chakraborty (2010). "Predicting microscale gas flows and rarefaction effects through extended Navier–Stokes–Fourier equations from phoretic transport considerations." Microfluidics and Nanofluidics 9(4-5): 831-846.

Dongari, N., A. Sharma and F. Durst (2009). "Pressure-driven diffusive gas flows in micro-channels: from the Knudsen to the continuum regimes." Microfluidics and Nanofluidics 6(5): 679-692.

Ewart, T. e., P. Perrier, I. Graur and J. G. MÃ©olans (2007). "Tangential momemtum accommodation in microtube." Microfluidics and Nanofluidics 3(6): 689-695.

Ewart, T. E., P. Perrier, I. A. Graur and J. G. MÃ‰Olans (2007). "Mass flow rate measurements in a microchannel, from hydrodynamic to near free molecular regimes." Journal of Fluid Mechanics 584: 337-356.

Frezzotti, A., H. Si Hadj Mohand, C. Barrot and S. Colin (2014). Role of diffusion on molecular tagging velocimetry technique for rarefied gas flow analysis. Microfuidics 2014. Limerick.

Graur, I. A., J. G. Meolans and D. E. Zeitoun (2006). "Analytical and numerical description for isothermal gas flows in microchannels." Microfluidics and Nanofluidics 2(1): 64-77.

Hadjiconstantinou, N. G. (2003). "Comment on Cercignani's second-order slip coefficient." Physics of Fluids 15(8): 2352-2354.

Kandlikar, S. G., S. Garimella, D. Li, S. Colin and M. R. King (2006). Heat Transfer and Fluid Flow in Minichannels and Microchannels, Elsevier Ltd.

Karniadakis, G. and A. Beskok (2002). Micro flows: fundamentals and simulation. New York, Springer.

Karniadakis, G., A. Beskok and N. Aluru (2005). Microflows and Nanoflows Fundamentals and Simulation, Springer.

Karniadakis, G., A. Beskok and N. Aluru (2005). Microflows and Nanoflows: , Springer-Verlag New York.

Koura, K. and H. Matsumoto (1991). "Variable soft shere molecular model for inverse-power-low or Lennard-Jones potentiel " Phys.Fluids A 3: 2459-2465.

Li, Q., Y. L. He, G. H. Tang and W. Q. Tao (2011). "Lattice Boltzmann modeling of microchannel flows in the transition flow regime." Microfluidics and Nanofluidics 10(3): 607-618.

Lilley, C. R. and J. E. Sader (2008). Velocity profile in the Knudsen layer according to the Boltzmann equation.

Lockerby, D. A., J. M. Reese, D. R. Emerson and R. W. Barber (2004). "Velocity boundary condition at solid walls in rarefied gas calculations." Physical Review E 70(1): 017303.

Lockerby, D. A., J. M. Reese and M. A. Gallis (2005). "Capturing the Knudsen Layer in Continuum-Fluid Models of Nonequilibrium Gas Flows." AIAA Journal 43(6): 1391-1393.

Loyalka, S. K. (1971). "Approximate Method in the Kinetic Theory." Physics of Fluids 14(11): 2291-2294.

Loyalka, S. K., N. Petrellis and T. S. Storvick (1975). "Some numerical results for the BGK model: Thermal creep and viscous slip problems with arbitrary accomodation at the surface." Physics of Fluids 18(9): 1094-1099.

Lund, L. M. and A. S. Berman (1966). "Flow and Self-Diffusion of Gases in Capillaries. Part I." Journal of Applied Physics 37(6): 2489-2495.

Lv, Q., X. Liu, E. Wang and S. Wang (2013). "Analytical solution to predicting gaseous mass flow rates of microchannels in a wide range of Knudsen numbers." Physical Review E 88(1): 013007.

Marques Jr, W., G. M. Kremer and F. M. Sharipov (2000). "Couette flow with slip and jump boundary conditions." Continuum Mechanics and Thermodynamics 12(6): 379-386.

Maurer, J., P. Tabeling, P. Joseph and H. Willaime (2003). "Second-order slip laws in microchannels for helium and nitrogen." Physics of Fluids 15(9): 2613-2621.

Maxwell, J. C. (1879). "On Stresses in Rarified Gases Arising from Inequalities of Temperature." Philosophical Transactions of the Royal Society of London 170: 231-256.

Naris, S., D. Valougeorgis, D. Kalempa and F. Sharipov (2004). "Gaseous mixture flow between two parallel plates in the whole range of the gas rarefaction." Physica A: Statistical Mechanics and its Applications 336(3–4): 294-318.

Ohwada, T., Y. Sone and K. Aoki (1989). "Numerical analysis of the shear and thermal creep flows of a rarefied gas over a plane wall on the basis of the linearized Boltzmann equation for hard-sphere molecules." Physics of Fluids A 1(9): 1588-1599.

Pan, L. S., G. R. Liu and K. Y. Lam (1999). "Determination of slip coefficient for rarefied gas flows using direct simulation Monte Carlo." Journal of Micromechanics and Microengineering 9(1): 89.

Perrier, P., I. A. Graur, T. Ewart and J. G. Meolans (2011). "Mass flow rate measurements in microtubes: From hydrodynamic to near free molecular regime." Physics of Fluids 23(4): 042004-042011.

Pitakarnnop, J. (2009). Analyse expérimentale et simulation numérique d'écoulements raréfiés de gaz simples et de mélanges gazeux dans les microcanaux. PHD, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.

Pitakarnnop, J., S. Varoutis, D. Valougeorgis, S. Geoffroy, L. Baldas and S. p. Colin (2010). "A novel experimental setup for gas microflows." Microfluidics and Nanofluidics 8(1): 57-72.

Pollard, W. G. and R. D. Present (1948). "On Gaseous Self-Diffusion in Long Capillary Tubes." Physical Review 73(7): 762-774.

Present, R. D. (1958). Kinetic theory of gases McGraw-Hill Book Company

Roohi, E. and M. Darbandi (2009). "Extending the Navier–Stokes solutions to transition regime in two-dimensional micro- and nanochannel flows using information preservation scheme." Physics of Fluids 21(8): 082001.

Sharipov, F. and J. L. Strapasson (2013). "Benchmark problems for mixtures of rarefied gases. I. Couette flow." Physics of Fluids (1994-present) 25(2): 027101.

Shen, C. (2005). Rarefied Gas Dynamics Fundamentals, Simulations and Micro Flows, Springer.

Siewert, C. E. (2003). "Viscous-slip, thermal-slip, and temperature-jump coefficients as defined by the linearized Boltzmann equation and the Cercignani–Lampis boundary condition." Physics of Fluids 15(6): 1696-1701.

Veltzke, T., M. Baune and J. Thoming (2012). "The contribution of diffusion to gas microflow: An experimental study." Physics of Fluids 24(8): 082004.

Veltzke, T. and J. Thöming (2012). "An analytically predictive model for moderately rarefied gas flow." Journal of Fluid Mechanics 698: 406-422.

Wakabayashi, M., T. Ohwada and F. Golse (1996). "Numerical analysis of the shear and thermal creep flows of a rarefied gas over the plane wall of a Maxwell-type boundary on the basis of the linearized Boltzmann equation for hard-sphere molecules." Eur J Mech B/Fluids 15: 175-201.

Wu, L. (2008). "A slip model for rarefied gas flows at arbitrary Knudsen number." Applied Physics Letters 93(25): 253103.

Zhang, W.-M., G. Meng and X. Wei (2012). "A review on slip models for gas microflows." Microfluidics and Nanofluidics 13(6): 845-882.

Chapitre 2

Expérimentation en micro-écoulements gazeux

Depuis les célèbres expériences de Knudsen sur les écoulements de gaz raréfiés dans des tubes (Knudsen 1909), plusieurs travaux expérimentaux, mais néanmoins relativement peu, ont été menés. Les grandeurs physiques communément mesurées sont la pression et le débit, mais il persiste en revanche dans la littérature un manque de données expérimentales locales, notamment de température et de vitesse (Morini, Yang et al. 2011). Dans ce chapitre, nous donnons un aperçu des travaux expérimentaux traitant de la mesure de pression et de débit. Nous présentons ensuite un état des lieux et des perspectives relatifs aux mesures de température et de vitesse.

2.1 Mesure de pression

La connaissance de la pression dans les micro-écoulements permet de mieux analyser les effets de compressibilité et de raréfaction. Il existe principalement deux méthodes pour mesurer la pression : (i) une mesure de pression avec des capteurs, placés soit dans des réservoirs en amont et en aval du microcanal, soit en dérivation le long du canal ; (ii) une mesure par visualisation qu'on peut subdiviser en deux familles :

- Manométrie par film moléculaire sensible à la pression (*Pressure-Sensitive Molecular Film* - PSMF). Cette dernière technique permet dans certaines conditions de donner la distribution de pression sur les surfaces des parois du microcanal.
- Manométrie par marquage moléculaire (*Molecular Tagging Manometry* - MTM), qui consiste à analyser la luminescence d'un traceur introduit dans l'écoulement. La luminescence étant liée à la pression, cette technique, contrairement aux autres techniques précédemment citées, permettrait de mesurer la pression au sein de l'écoulement.

2.1.1 Mesure de pression avec capteur

Dans cette technique relativement simple, des capteurs de pression sont introduits soit dans les réservoirs amont et aval (Morini, Lorenzini et al. 2006, Demsis, Verma et al. 2009, Pitakarnnop 2009), soit le long du canal (Jang and Wereley 2004). Dans le premier cas, le capteur placé dans le réservoir amont (respectivement aval) indique la pression dans celui-ci

et non celle à l'entrée (respectivement sortie) du canal (Morini, Yang et al. 2011) ; ainsi, une petite variation de pression entre le réservoir et le bout du canal peut ne pas être prise en compte. Cet effet peut certes être éliminé en calculant la perte de charge Δp_{in} à l'amont, ou Δp_{out} à l'aval, à l'aide de l'équation

$$\Delta p_{in,out} = \frac{k_{in,out}}{2}\left(\frac{\dot{m}}{a}\right)^2\left(\frac{RT}{p_{in,out}}\right), \tag{2.1}$$

où $\dot{m}$ est le débit massique, a la section du canal, $k_{in,out}$ les coefficients de perte de charge en entrée ou en sortie du canal respectivement. Une alternative à l'utilisation de l'équation (2.1) est proposée par (Du, Li et al. 2000). Elle consiste à réaliser la même expérience avec deux tubes, un tube long et un autre plus court. Comme la perte de charge localisée ne dépend pas de la longueur du tube, les effets d'entrée et de sortie sont éliminés en faisant la soustraction des pertes de charges Δp_{L_1} et Δp_{L_2} obtenues avec les deux longueurs de tubes. Le coefficient de frottement C_f dans le tube en fonction du diamètre hydraulique D_h de ce dernier est alors donné par :

$$C_f = \frac{2\rho}{\mu^2}\left(\frac{\Delta p_{L_1} - \Delta p_{L_2}}{L_1 - L_2}\right)\frac{D_h^3}{Re^2}. \tag{2.2}$$

Cette dernière méthode ne peut être utilisée que pour les cas où la distribution de pression est linéaire, i.e. lorsque les écoulements sont incompressibles ou faiblement compressibles (faible nombre de Mach et faible différence de pression relative entre amont et aval) et faiblement raréfiés (faible nombre de Knudsen). En effet, des effets de compressibilité locale, de fortes variations de masse volumique entre amont et aval, ou une raréfaction de l'écoulement conduisent à une distribution non linéaire de pression le long du canal (Kandlikar, Garimella et al. 2013). Dans le cas où les capteurs de pression sont placés directement en dérivation le long des parois du canal, une mesure de la distribution de pression le long de celui-ci est possible (Morini, Yang et al. 2011). Il est à noter que ce cas de figure requiert des efforts de micro-fabrication importants (Zohar, Lee et al. 2002, Jang and Wereley 2004, Turner, Lam et al. 2004, Kohl, Abdel-Khalik et al. 2005). Citons à titre d'exemple l'étude faite par Jang et Wereley (Jang and Wereley 2004) sur un microcanal de section rectangulaire de 104,63×38,57µm². Afin de pouvoir mesurer la pression dans le canal, quatre réservoirs équipés de capteurs de pression différentiels (OmegaPX138) ont été connectés au canal à différentes distances de son entrée (Figure 2.1). Un débitmètre de type Hastings-HFM300 a été utilisé pour mesurer le débit massique transporté.

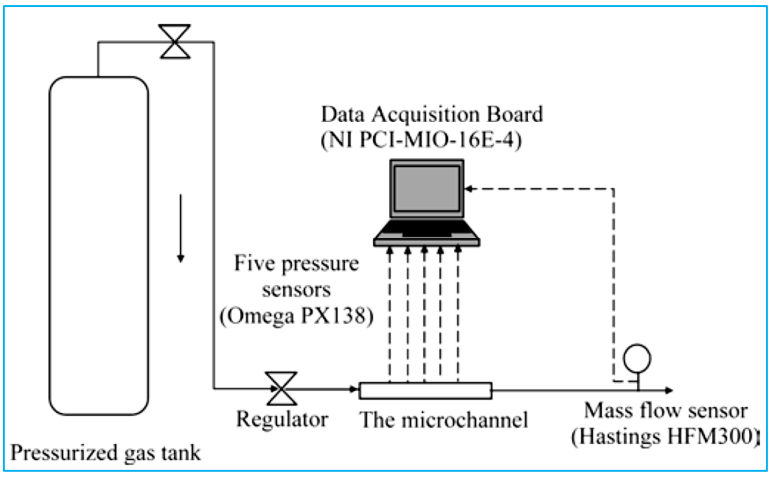

Figure 2.1 Schéma d'un banc de mesure de pression longitudinale (Jang and Wereley 2004)

Les auteurs ont comparé leurs mesures à un modèle de distribution de pression le long du canal (dans la direction *z*) obtenu à partir des équations de Navier-Stokes incompressibles avec des conditions aux limites de glissement du premier ordre. Un bon accord a été trouvé entre les mesures expérimentales et les prédictions théoriques (Figure 2.2).

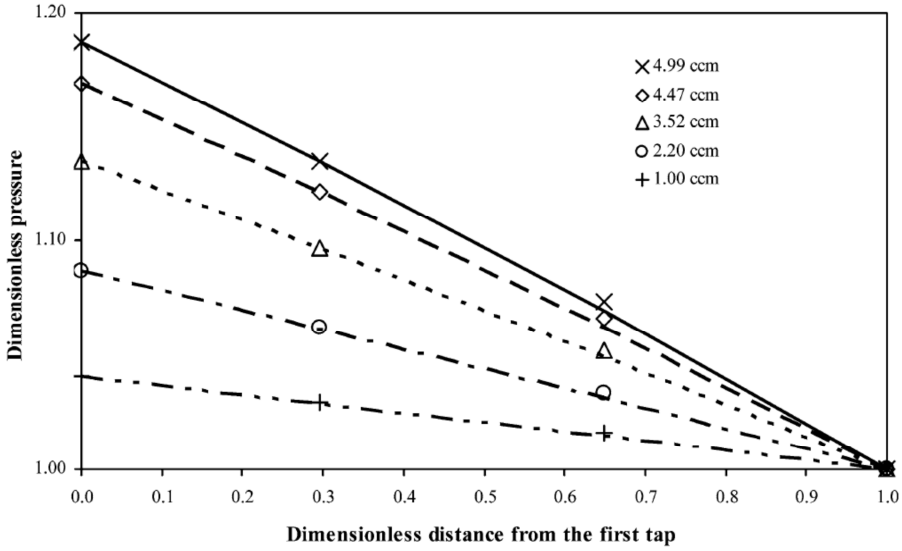

Figure 2.2 Distribution de pression le long d'un microcanal. Comparaison entre des mesures expérimentales et des prédictions théoriques pour différents débits donnés en cm^3/min (Jang et Wereley 2004).

Les prédictions théoriques ainsi que les mesures expérimentales montrent que la distribution de pression le long du canal diffère d'une distribution linéaire donnée par les équations de Navier-Stokes incompressible et sans glissement. L'écart entre la distribution de pression et une distribution linéaire due aux effets de raréfaction diminue avec l'augmentation du nombre de Knudsen (Karniadakis and Beskok 2002) tandis que la compressibilité, résultant d'une variation significative de la masse volumique entre amont et aval, même en absence d'effet local de compressibilité (c'est-à-dire pour des nombres de Mach faibles), a

pour effet d'accentuer cet écart. Colin (Colin 2005) a en effet montré que la raréfaction et la compressibilité ont des effets opposés sur la courbure de la distribution de pression le long des microcanaux.

2.1.2 Mesure de pression par visualisation

La mesure de pression avec des capteurs donne des résultats avec une grande précision. Néanmoins, leur utilisation peut générer une modification locale de l'écoulement et de ce fait biaiser la mesure. D'autre part, la pression ne peut être mesurée qu'au niveau de la paroi et à des endroits localisés correspondant aux positions des capteurs. Pour pallier ces problèmes, des méthodes de visualisation ont été proposées dans la littérature. Dans cette section, nous décrivons la technique de PSMF utilisant un film moléculaire sensible à la pression (Matsuda, Misaki et al. 2011, Matsuda, Uchida et al. 2011) qui permet d'accéder au champ de pression en paroi, ainsi que la manométrie par marquage moléculaire (Basu, Naguib et al. 2010) qui permet d'obtenir des mesures au sein même de l'écoulement.

2.1.2.1 Technique de film moléculaire sensible à la pression (PSMF)

Cette technique consiste à déposer sur les parois du canal un film contenant une substance luminophore, du PtTFPP par exemple. Dans la technique de PSMF, une couche mono-moléculaire du luminophore est déposée sur les parois du canal suivant la procédure de Langmuir-Blodgett (Matsuda, Mori et al. 2009). Cette procédure schématisée sur Figure 2.3 consiste à générer une solution qui contient des molécules amphiphiles dans un solvant volatile. Une goutte de cette solution est étalée à l'interface entre l'air et une sous-phase préalablement déposée sur la paroi du canal. De l'eau ultra-pure peut être utilisée comme sous-phase. Une fois le solvant vaporisé, une couche mono-moléculaire reste au niveau de l'interface. Un film mono-moléculaire ordonné est ensuite généré en comprimant la couche mono-moléculaire.

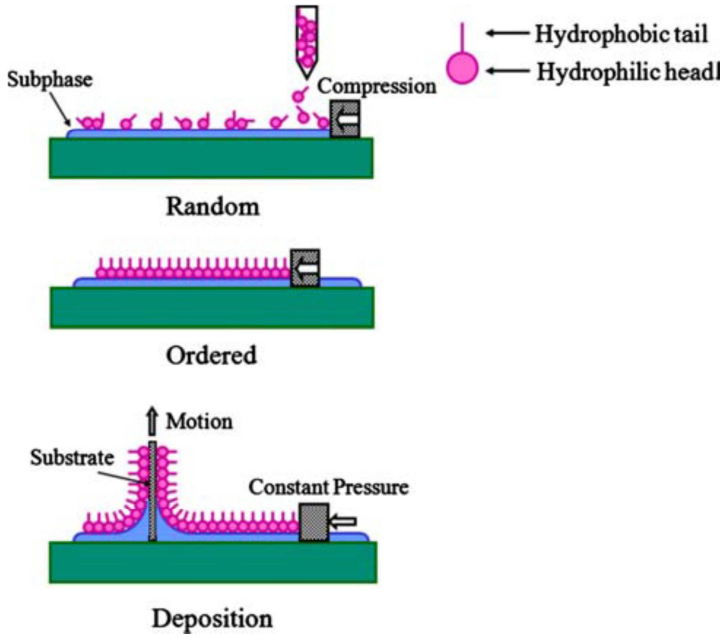

Figure 2.3 Dépôt de film luminophore mono-moléculaire pour la technique PSMF

Il existe une autre variante de mesure de pression avec film luminophore appelée PSCC (*Pressure-Sensitive Channel Chip*) (Matsuda, Misaki et al. 2011). Dans cette technique, le dépôt du film est directement intégré dans le processus de fabrication du canal comme le montre la Figure 2.4.

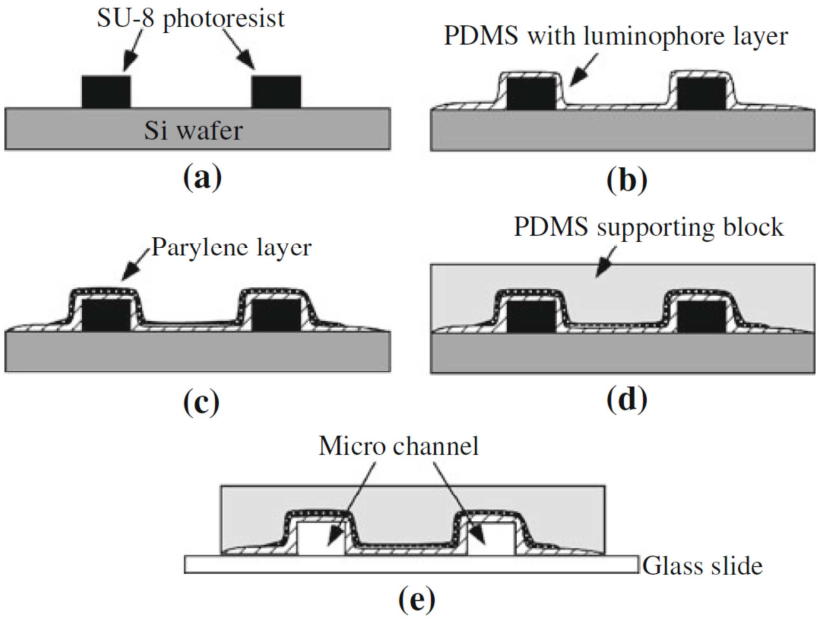

Figure 2.4 Processus d'intégration du film en PDMS sensible à la pression dans la technique PSCC (Matsuda, Misaki et al. 2011)

La mesure de pression repose sur les propriétés du luminophore : lorsque celui-ci est illuminé avec de la lumière à une certaine longueur d'onde, il émet des photons. La luminescence émise est atténuée par des molécules d'oxygène (c'est ce que l'on appelle en

anglais « *oxygen quenching* ») ; par conséquent pour un écoulement de gaz contenant une certaine proportion d'oxygène, la luminescence décroit avec l'augmentation de pression. Une relation directe entre la pression p et l'intensité de la luminescence I est donnée par la relation de Stern-Volmer (Lakowicz 2010) :

$$\frac{I_{ref}}{I} = A + B\frac{p}{p_{ref}}, \tag{2.3}$$

où A et B sont les coefficients de Stern-Volmer déterminés par un test de calibration et l'indice *ref* se réfère à des conditions d'intensité et de pression de référence connues.

L'application de la technique PSMF sur un écoulement dans une micro-buse est étudiée dans (Matsuda, Uchida et al. 2011). La géométrie de la micro-buse est montrée sur la Figure 2.5.

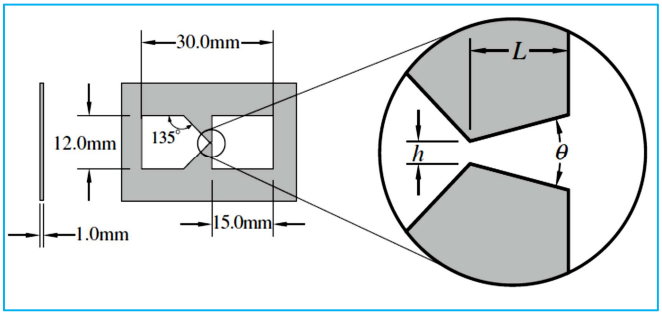

Figure 2.5 Schéma de la micro-buse (Matsuda, Uchida et al. 2011)

Deux micro-buses dont les dimensions sont données dans le Tableau 2.1 ont été utilisées.

Micro-buse	A	B
Hauteur h (µm)	103	48
Longueur L (µm)	492	264
Angle d'ouverture aval θ	23,5°	24,0°

Tableau 2.1 Dimensions des micro-buses (Matsuda, Uchida et al. 2011)

Les résultats obtenus par ces expériences ont été comparés à des simulations numériques obtenues par DSMC (Figure 2.6).

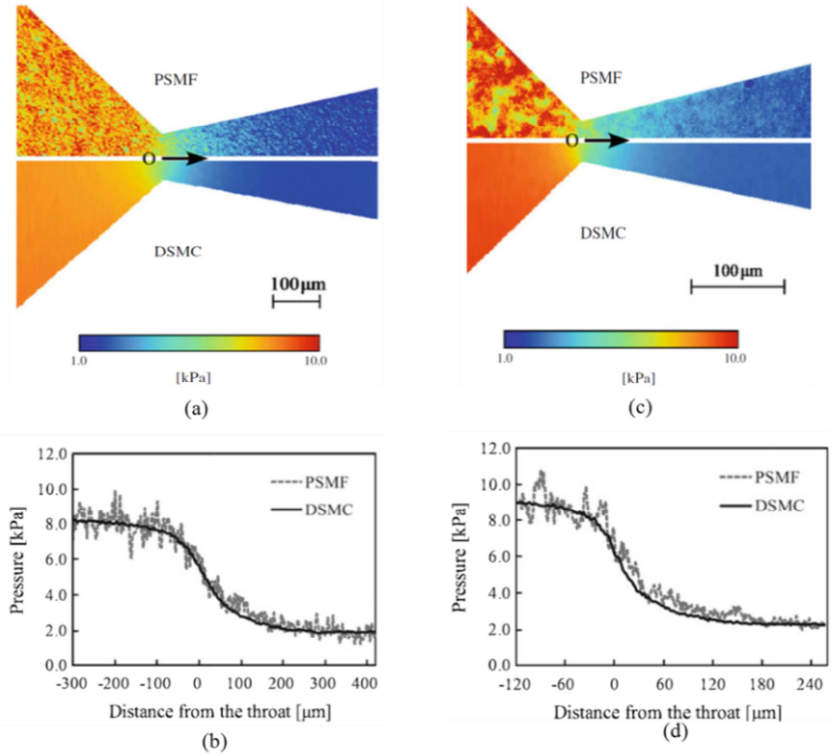

Figure 2.6 Mesures de pression dans les micro-buses : (a) champ de pression dans la micro-buse A ; (b) profil de pression le long de la ligne médiane de la micro-buse A; (c) champ de pression dans la micro-buse B ; (d) profil de pression le long de la ligne médiane de la micro-buse B (Matsuda, Uchida et al. 2011).

Un très bon accord a été trouvé entre les simulations par DSMC et les mesures par PSMF. La chute brutale de pression au niveau du col de la micro-buse est bien captée par le PSMF. Des spots de luminescence sont néanmoins observés sur le champ de pression mesuré dans la micro-buse B. Ces spots sont dus à un défaut de dépôt du film moléculaire, non parfaitement uniforme sur la paroi. Les résultats de cette étude montrent ainsi que la technique PSMF est bien adaptée à la mesure de pression sur les parois de microsystèmes présentant des dimensions caractéristiques supérieures à quelques dizaines de micromètres.

2.1.2.2 Manométrie par marquage moléculaire (MTM)

De nos jours, les mesures de pression ne sont faites qu'au niveau des parois avec les méthodes précédemment décrites (capteurs de pression, PSMF, PSCC). Des données de pression au cœur de l'écoulement seraient d'une grande utilité pour une meilleure compréhension des micro-écoulements gazeux, notamment dans des géométries complexes où des phénomènes de compression et détente sont mis en jeu. Une technique de mesure de pression au sein de l'écoulement a été proposée par Basu et al. (Basu, Naguib et al. 2010) mais reste à ce jour au stade de développement.

La MTM consiste à exploiter les propriétés de luminescence des molécules d'un traceur introduites en petite quantité dans l'écoulement. Typiquement, des molécules d'acétone ou de

diacétyle sont utilisées comme traceurs. Les molécules du traceur sont excitées par des photons dans l'ultraviolet (avec un laser UV). Un processus de désexcitation se déclenche ensuite et se traduit par l'émission de deux types de luminescence : une luminescence courte et intense d'une durée de vie de quelques nanosecondes et appelée fluorescence, puis une luminescence moins intense et d'une durée de vie beaucoup plus longue de l'ordre de la milliseconde, appelée phosphorescence. La phosphorescence est atténuée par la présence de molécules d'oxygène. La MTM utilise ainsi la propriété d'extinction partielle de luminescence par l'oxygène en mesurant la décroissance du signal lumineux au cours du temps.

L'intensité I_p de la phosphorescence (qui mesure le nombre de photons reçus par unité de temps et par unité de surface) décroit exponentiellement avec le temps (Basu, Naguib et al. 2010) selon la loi

$$I_p(t) = I_0 e^{-t/\tau_p}, \tag{2.4}$$

où I_0 est l'intensité initiale et τ_p la durée de vie de la phosphorescence donnée par

$$\tau_p = \frac{1}{k_r + k_{nr} + k_q [Q]}. \tag{2.5}$$

Dans l'expression (2.5) k_r et k_{nr} sont respectivement les vitesses de transitions radiatives et non radiatives, k_q étant la vitesse d'extinction partielle de phosphorescence. Chacune de ces trois vitesses est directement liée à la proportion de molécules se désexcitant suivant l'une des trois transitions correspondantes (voir partie 3.2), $[Q]$ est la concentration de l'espèce causant l'extinction partielle.

Le rendement quantique de la phosphorescence, qui représente le rapport entre l'énergie émise par une molécule du traceur et l'énergie absorbée par celle-ci, est donné par :

$$\phi_p = \frac{k_r}{k_r + k_{nr} + k_q [Q]}. \tag{2.6}$$

En l'absence d'espèce causant une extinction partielle de luminescence, le rendement quantique de phosphorescence est noté ϕ_0 et sa durée de vie τ_0. La relation entre les rendements quantiques avec et sans extinction partielle est donnée par la relation de Stern-Volmer

$$\frac{\phi_0}{\phi_p} = \frac{\tau_0}{\tau_p} = 1 + \tau_0 k_q [Q]. \tag{2.7}$$

Dans le cas où l'acétone est utilisée comme traceur, l'oxygène est généralement utilisé comme espèce causant extinction partielle (Thurber and Hanson 1999, Löffler, Beyrau et al. 2010). L'équation (2.7) permet d'écrire :

$$\frac{1}{\tau_p} = \frac{1}{\tau_0} + k_{O_2}[O_2]. \tag{2.8}$$

Durant la durée de vie de la phosphorescence, les molécules traceuses émettent de la phosphorescence avec une intensité instantanée $I_p(t)$. Dans la pratique, la quantité mesurée par un capteur (par exemple le CCD d'une caméra) est l'intensité $I_p(t)$ accumulée durant la durée Δt d'ouverture du capteur. On appelle cette quantité, notée S_p, le niveau de signal de phosphorescence (qui correspond au nombre de photons reçus par unité de surface) :

$$S_p = \int_t^{t+\Delta t} I(t)dt\,. \tag{2.9}$$

Le signal de phosphorescence total (intégré sur une durée suffisamment longue pour capter toute la lumière émise par les molécules traceuses) $\left(S_p\right)_{tot}$ peut être obtenu en intégrant l'équation (2.9) entre 0 et $+\infty$, où l'origine des temps, $t = 0$, correspond au début de la phosphorescence. Ainsi, on peut écrire :

$$\left(S_p\right)_{tot} = \int_0^{+\infty} I(t)dt = \tau_p I_0\,. \tag{2.10}$$

D'autre part, $\left(S_p\right)_{tot}$ est donné en fonction du rendement quantique de phosphorescence par la relation :

$$\left(S_p\right)_{tot} = \eta_o E_L \sigma_{abs} n \Delta y \phi_p\,, \tag{2.11}$$

où η_o est le rendement quantique du système d'acquisition (nombre de photons collectés sur le nombre de photons incident), E_L l'énergie du laser arrivant par unité de surface (fluence du laser), σ_{abs} la section d'absorption de l'acétone qui décrit la capacité des molécules d'acétone à absorber des photons à la longueur d'onde d'excitation, n la densité moléculaire d'acétone et Δy la longueur du chemin d'absorption (distance parcourue par le faisceau laser dans le gaz étudié). La combinaison des deux dernières équations permet d'écrire :

$$\left(S_p\right)_{tot} = \eta_o E_L \sigma_{abs} n \Delta y \phi_p = \tau_p I_0\,. \tag{2.12}$$

Ainsi, un signal de phosphorescence S_p mesuré par un capteur à partir d'un instant t_1 durant un temps d'exposition Δt_1 (Figure 2.7) est donné par :

$$S_p(t_1 < t < t_1 + \Delta t_1) = \int_{t_1}^{t_1+\Delta t_1} I_0 e^{-t/\tau_p} dt = I_0 \tau_p \left(1 - e^{-\Delta t_1/\tau_p}\right) e^{-t_1/\tau_p} . \quad (2.13)$$

L'introduction de l'équation (2.12) dans l'équation (2.13) donne finalement un signal de phosphorescence intégré entre deux instants :

$$S_{p,1} = S_p(t_1 < t < t_1 + \Delta t_1) = \eta_o E_L \sigma_{abs} n \Delta y \phi_p \left(1 - e^{-\Delta t_1/\tau_p}\right) e^{-t_1/\tau_p} . \quad (2.14)$$

L'utilisation directe de cette dernière équation nécessite la connaissance précise des différents termes. Une simplification est possible en faisant une double mesure (soit deux acquisitions d'image) relative à un seul flash laser à des instants et avec des temps d'exposition différents, comme le schématise la Figure 2.7.

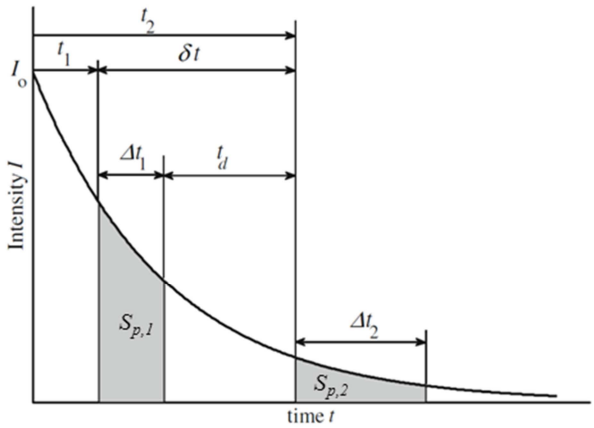

Figure 2.7 Schéma de décroissance de l'intensité de phosphorescence et timing de la double acquisition. Adapté de (Basu, Naguib et al. 2010)

Dans des conditions isothermes, le rapport S_R des signaux obtenus lors des deux mesures permet la simplification suivante :

$$S_R = \frac{S_{p,2}}{S_{p,1}} = \frac{S_p(t_2 < t < t_2 + \Delta t_2)}{S_p(t_1 < t < t_1 + \Delta t_1)} = e^{-\delta t/\tau_p} \left[\frac{1 - e^{-\Delta t_2/\tau_p}}{1 - e^{-\Delta t_1/\tau_p}} \right]. \quad (2.15)$$

Finalement, l'introduction de l'équation (2.8) dans l'équation (2.15) permet d'obtenir :

$$S_R = e^{-\left(\delta t/\tau_0 + \delta t k_{O_2}[O_2]\right)} \left[\frac{1 - e^{-\Delta t_2/\tau_p}}{1 - e^{-\Delta t_1/\tau_p}} \right]. \quad (2.16)$$

La relation (2.16) relie ainsi directement le rapport de phosphorescence mesurée et la densité de dioxygène, qui dans un écoulement isotherme est proportionnelle à la pression. Les prédictions de l'équation (2.16) sont comparées à des mesures expérimentales sur la Figure 2.8.

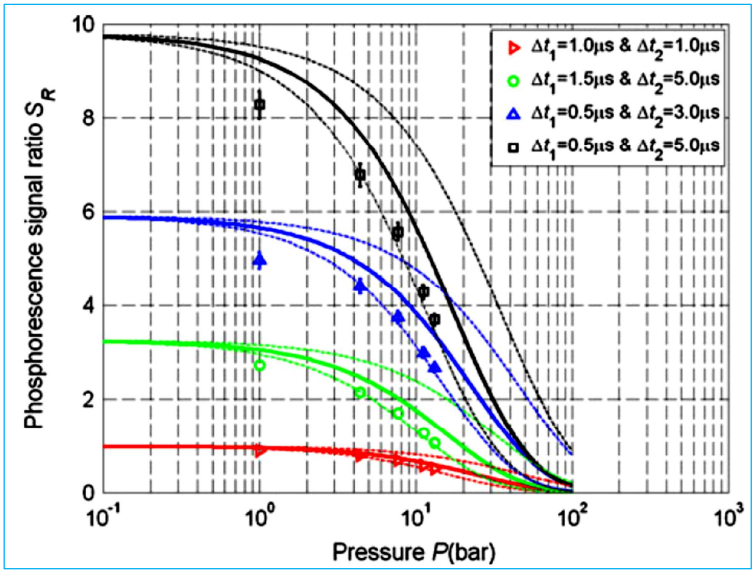

Figure 2.8 Comparaison des mesures expérimentales avec les prédictions de l'équation (2.16). Les lignes discontinues autour de la ligne continue représentent des variations de la concentration d'O_2 ou de k_{O_2} de ±50 %. (Basu, Naguib et al. 2010)

Qualitativement, les mesures expérimentales suivent la tendance donnée par les prédictions théoriques (équation (2.16)). Néanmoins, le modèle théorique surestime systématiquement les mesures expérimentales. Le modèle présenté dans cette étude (Basu, Naguib et al. 2010) souffre de quelques faiblesses. L'hypothèse selon laquelle la phosphorescence décroit exponentiellement avec le temps (équation (2.4)) n'est pas en accord avec les plus récentes mesures expérimentales (Charogiannis and Beyrau 2013, Si Hadj Mohand, Samouda et al. 2014). D'autre part, la durée de vie τ_0 de la phosphorescence, en l'absence d'extinction partielle, dépend de la pression (Edward O'Neall and Larson 1969) et cela n'est pas pris en compte dans l'équation (2.16).

En conclusion, la MTM semble très prometteuse pour des mesures de champs de pression au sein d'un l'écoulement, mais son utilisation effective pour des mesures précises de pression nécessite cependant un certain nombre d'améliorations.

2.2 Mesure de débit

Le débit est la grandeur la plus fréquemment mesurée dans les écoulements traversant les microcanaux. Dans le cas où le débit est relativement important $(>10^{-8}\,\text{kg/s})$, une mesure simple par des débitmètres massiques ou volumiques commerciaux est possible. En dessous de cette valeur, une mesure spécifique s'impose (Morini, Yang et al. 2011). Elle consiste à utiliser un banc d'essais spécifique pour mesurer une grandeur autre que le débit, telle qu'un volume ou une pression et de remonter ensuite au débit suivant une analyse physique. Nous décrivons dans cette partie les deux méthodes les plus répandues qui sont la méthode dite à

« Volume Constant » (VC) et la méthode dite à « Pression Constante » (PC). Ces deux méthodes reposent sur une hypothèse de gaz parfait pour laquelle la loi de Boyle-Mariotte s'écrit

$$pV = mR_s T\,, \tag{2.17}$$

où m est la masse du gaz et V son volume. On peut faire apparaitre le débit massique en dérivant l'équation (2.17) par rapport au temps :

$$\dot{m} = \frac{dm}{dt} = \frac{p}{R_s T}\frac{dV}{dt} + \frac{V}{R_s T}\frac{dp}{dt} - \frac{pV}{R_s T^2}\frac{dT}{dt}\,. \tag{2.18}$$

Dans le cas où la température est maintenue pratiquement constante durant l'expérience, le dernier terme de l'équation (2.18) devient négligeable devant les deux autres termes, ce qui permet d'écrire

$$\dot{m} = \underbrace{\frac{p}{R_s T}\frac{dV}{dt}}_{PC} + \underbrace{\frac{V}{R_s T}\frac{dp}{dt}}_{VC}\,. \tag{2.19}$$

Les deux méthodes de mesure de débit VC et PC exploitent l'équation (2.19). Si la pression est constante et que le volume varie, le dernier terme de l'équation (2.19) s'annule. L'équation de base de la technique PC donnant le débit massique en fonction de la variation du volume s'écrit alors :

$$\dot{m} = \frac{p}{R_s T}\frac{dV}{dt}\,. \tag{2.20}$$

Si le volume est constant et que la pression varie, le premier terme du membre de droite de l'équation (2.19) s'annule et la relation de base de la technique VC donnant le débit massique en fonction de la variation de pression s'écrit :

$$\dot{m} = \frac{V}{R_s T}\frac{dp}{dt}\,. \tag{2.21}$$

Il est à noter que le terme relatif aux variations de température (dernier terme de l'équation (2.18)) ne rentre pas dans l'expression du débit des deux techniques PC et VC, mais il est peut être pris en compte dans le calcul d'incertitude liée à la mesure (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010, Perrier, Graur et al. 2011, Bergoglio, Mari et al. 2015).

2.2.1 Mesure de débit par la méthode PC

Dans cette technique, un réservoir à l'amont ou l'aval du microcanal est maintenu à une pression constante et présente un volume variable. Le réservoir jaugé peut être un cylindre équipé d'un piston ou bien un réservoir limité par une pipette contenant une goutte de liquide

mobile. Dans ce dernier cas, on parle de technique de suivi de goutte et la variation du volume dans la pipette est donnée par le déplacement de la goutte à l'intérieur de la pipette (Figure 2.9). Ce déplacement peut être mesuré soit par une caméra soit par des capteurs optoélectroniques (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010).

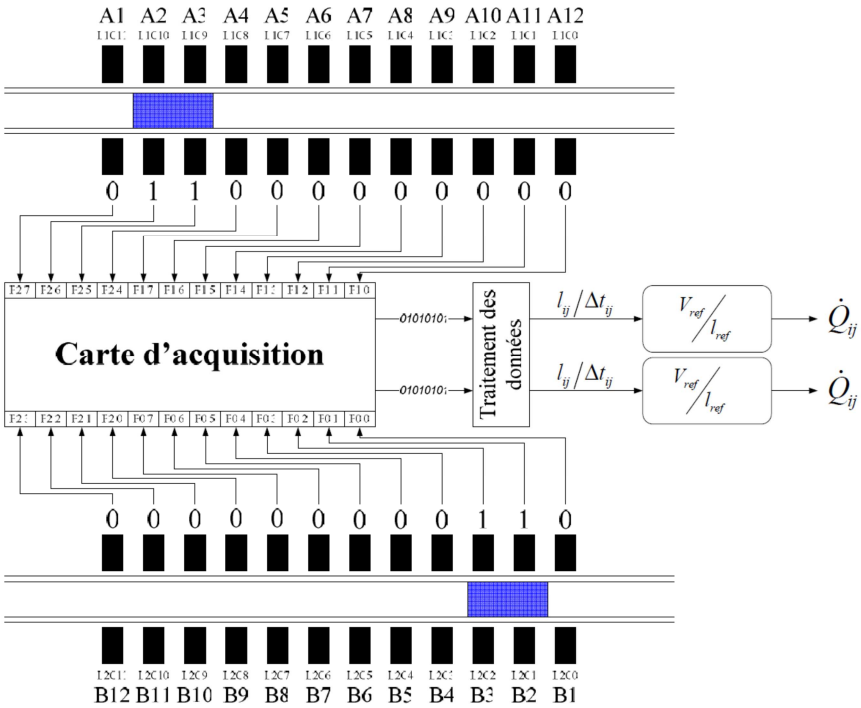

Figure 2.9 Schéma de la technique par suivi de goutte. Les pipettes connectées aux réservoirs amont et aval sont équipées de 12 capteurs optoélectroniques chacune. (Pitakarnnop 2009)

Dans le cas où un cylindre est utilisé comme réservoir à pression constante, la variation du volume est mesurée à l'aide de la mesure du déplacement d'un piston placé dans ce cylindre. Le suivi du piston peut, par exemple, être réalisé grâce à un moteur pas à pas (Figure 2.10).

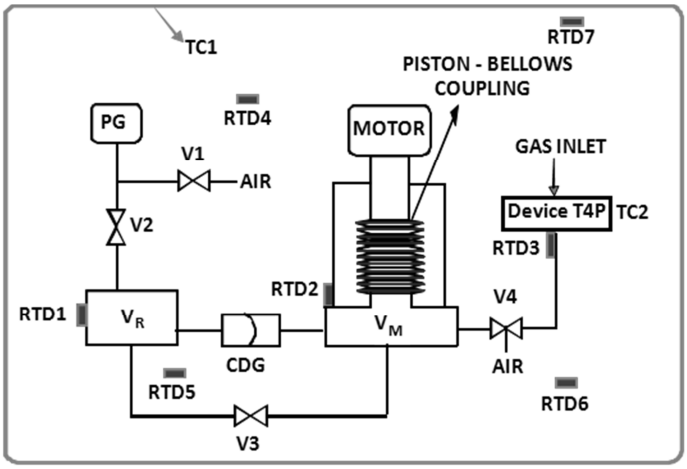

Figure 2.10 Schéma d'un banc de mesure de débit utilisant la technique PC (Bergoglio, Mari et al. 2015).

La relation liant le débit massique et le déplacement du piston est donnée par

$$\dot{m} = \frac{p}{R_s T} \frac{\pi d_{cyl}^2}{4} \frac{\Delta l}{\Delta t}, \tag{2.22}$$

où d_{cyl} est le diamètre du cylindre et Δl le déplacement du piston durant un intervalle de temps Δt.

Dans le cas de la technique par suivi de goutte, l'équation (2.22) se complique un peu pour tenir compte du fait qu'entre le microcanal et la goutte existe également un réservoir de volume variable (Lalonde , Colin et al. 2001), mais le principe est similaire. Le plus faible débit mesurable avec cette technique est de l'ordre de 10^{-10} kg/s, mais l'utilisation de centaines de microcanaux placés en parallèle permet d'atteindre un débit dans un microcanal de l'ordre de 10^{-13} kg/s (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010, Bergoglio, Mari et al. 2015). Il est à souligner que cette technique présente néanmoins quelques difficultés techniques : il est d'une part difficile de maintenir un déplacement sans à-coup de la goutte ou du piston et d'autre part, dans le cas de la technique de suivi de goutte employée lors de mesures à basse pression, il y a un risque d'évaporation de la goutte.

2.2.2 Mesure de débit par la méthode VC

Cette technique de mesure s'est largement répandue dans la littérature. Typiquement, un écoulement est généré par une différence de pression entre deux réservoirs et la mesure au cours du temps de l'augmentation de la pression dans réservoir aval (Perrier, Graur et al. 2011) et/ou celle de sa diminution dans le réservoir amont permettent d'obtenir le débit à l'aide de l'équation (2.21). Une double mesure (Pitakarnnop, Varoutis et al., 2010) est possible en mesurant simultanément les variations de pression dans les deux réservoirs amont et aval (Figure 2.11). Le plus faible débit mesuré à ce jour dans un canal avec cette technique est de l'ordre de 10^{-13} kg/s, soit avec un microsystème composé de plusieurs centaines de microcanaux parallèles (Pitakarnnop, Varoutis et al. 2010), soit dans un canal unique (Perrier, Graur et al. 2011). La précision sur ce type de mesure est de l'ordre de 4% .

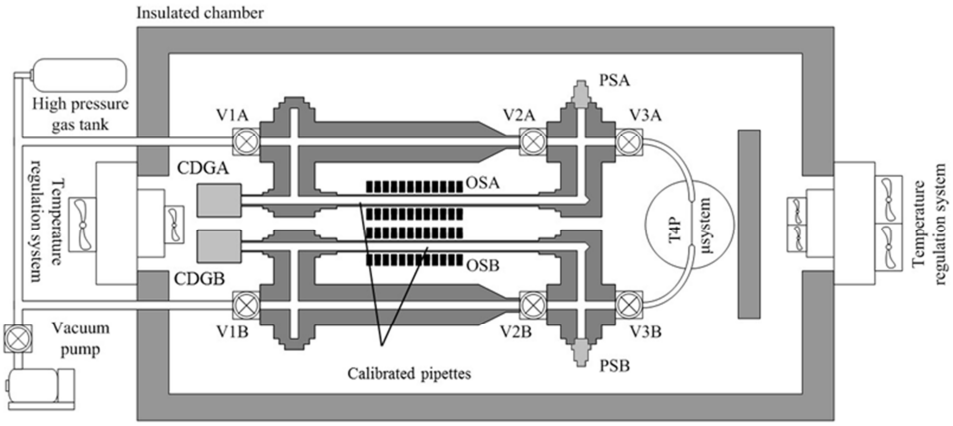

Figure 2.11 Schéma du banc expérimental combinant la technique PC (suivi de goutte) et VC avec une double mesure, développé à l'Institut Clément Ader (Pitakarnnop 2009)

L'utilisation de cette technique requiert une excellente stabilité thermique durant l'expérience. De plus, un compromis doit être trouvé lors du choix du volume du ou des réservoirs jaugés, de telle sorte qu'ils soient suffisamment petits pour rendre les variations de pression détectables mais aussi suffisamment grands pour maintenir la pression aval ou amont quasi-constante durant l'expérience. Ewart et al. (Ewart, Perrier et al. 2006) ont utilisé un volume amont de 66 cm^3 et Pitakarnnop (Pitakarnnop 2009) des volumes amont et aval de 170 cm^3.

Si le temps de mesure est assez court, la pression peut être considérée comme variant linéairement avec le temps ($p = at + b$) et par conséquent l'équation (2.21) devient :

$$\dot{m} = \frac{V}{R_s T} a \,. \tag{2.23}$$

Cette équation montre que le débit massique peut être directement déduit de la pente *a* caractérisant la variation de pression.

Une comparaison des deux techniques VC et PC est illustrée dans l'exemple suivant : des mesures effectuées sur un même microsystème ont été réalisées avec deux bancs différents : le banc PC (Figure 2.10) de l'Institut National de Recherche Métrologique de Turin (INRIM) et le banc VC (Figure 2.11) de l'Institut Clément Ader (ICA). Les caractéristiques du microsystème composé de 575 microcanaux de section rectangulaire montés en parallèle sont présentées dans le Tableau 2.2.

Microcanaux	Hauteur, H (µm)	Largueur, W (µm)	Longueur L (µm)	Nombre de microcanaux n
	0.53	50.0	5000	5×115 = 575
incertitude	0.01	0.3	10	

Tableau 2.2 Caractéristiques du microsystème

Nous avons étudié trois différents : l'argon, le diazote et le dioxyde de carbone. Le débit massique représenté sur la Figure 2.12 est donné sous une forme adimensionnelle suivant la relation :

$$G^* = \dot{m}\sqrt{2R_sT}\,\frac{L}{nW\,H\,D_h(p_i - p_o)}, \tag{2.24}$$

Les résultats obtenus avec les deux méthodes sont en bon accord (Bergoglio, Mari et al. 2015). Cette étude comparative sur un cas test montre l'équivalence des deux techniques.

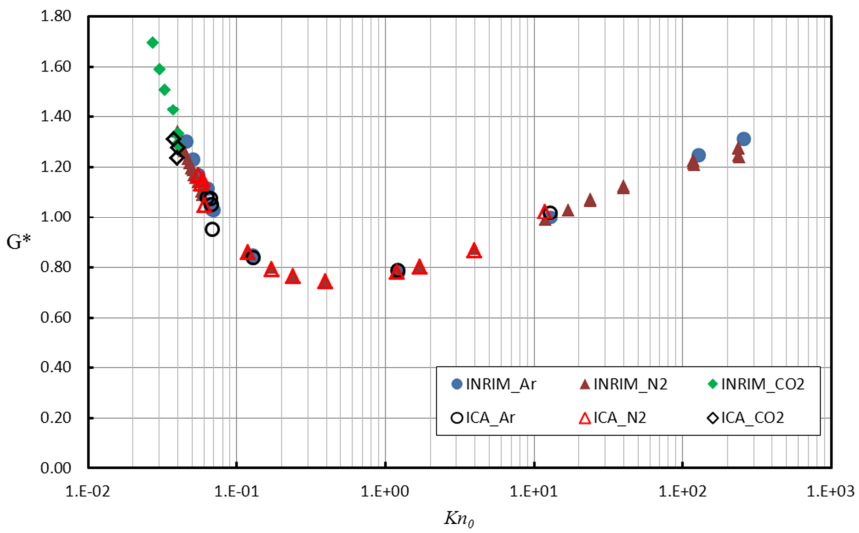

Figure 2.12 Débit massique adimensionnel en fonction du nombre de Knudsen moyen (Calculé à partir de la pression moyenne entre l'entrée et la sortie du canal): comparaison des mesures VC de l'ICA et mesures PC de l'INRIM (Bergoglio, Mari et al. 2015).

2.3 Mesure de température

De nos jours, il n'est pas encore possible de mesurer dans des microcanaux la température au cœur de l'écoulement sans introduire une perturbation significative. La température est communément mesurée à la paroi avec des capteurs de température miniaturisés. Dans cette partie, nous décrivons la mesure de température avec des capteurs et ensuite nous exposons une perspective de mesure de température dans le cœur de l'écoulement avec la technique de thermométrie par marquage moléculaire (*Molecular Tagging Thermometry* - MTT).

2.3.1 Mesure de température avec capteur

Il existe trois familles principales de micro-capteurs de température (Morini, Yang et al. 2011). Toutes trois utilisent les propriétés thermoélectriques du matériau constituant la partie sensible du capteur (Figure 2.13). Ces trois familles sont :

- Les µRTD (*Thin film Resistance Temperature Detector*) : ce type de capteur est largement utilisé pour sa simplicité de mise en œuvre et la linéarité de sa réponse par rapport à la variation de température. Ces capteurs utilisent la dépendance de résistance électrique d'un métal vis-à-vis de la température. Plusieurs matériaux sont classiquement utilisés pour la fabrication de la partie sensible du capteur : platine, polysilicium, aluminium, nickel, tungstène, or et argent.
- Les µTFTC (*Thin Film ThermoCouple*) : ce type de capteur utilise l'effet Seebeck qui se manifeste par l'apparition d'une tension électrique générée par la jonction de deux métaux conducteurs portés à différentes températures. La partie active peut par exemple être fabriquée à partir d'un film fin de chrome incorporé dans un substrat de nickel. Une bonne sensibilité est observée jusqu'à des températures de l'ordre de 900°C (Xugang, Hongseok et al. 2006).
- Les SC (Semi-Conducteurs) : ces capteurs utilisent du polysilicium comme élément actif. On peut en distinguer trois types : transistors MOS (Metal Oxide Semiconductor), transistors bipolaires et diodes. Le premier type nécessite l'utilisation de transistors avec une faible inversion pour obtenir la linéarité entre la réponse et la variation de température. D'autre part, les transistors MOS peuvent présenter des fuites à des températures élevées. Les transistors bipolaires et les diodes donnent un voltage de jonction directement proportionnel à la température.

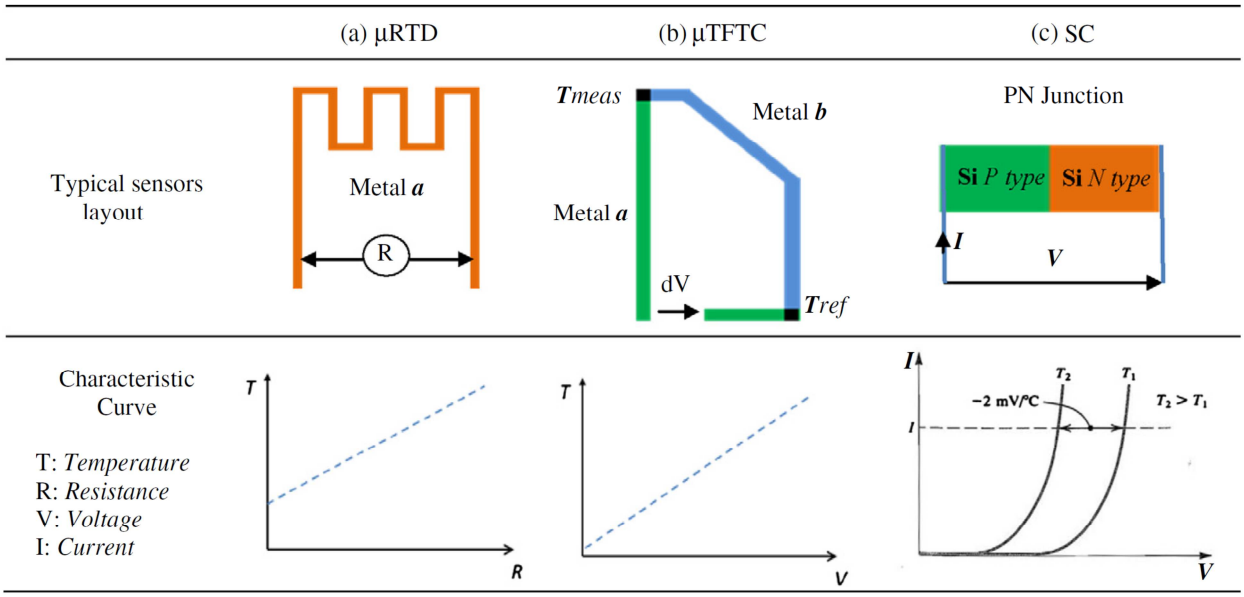

Figure 2.13 Principes de fonctionnement et courbes caractéristiques de micro-capteurs de température (Morini, Yang et al. 2011).

2.3.2 Mesure de température par visualisation

La MTT peut présenter une opportunité de mesurer la température d'une manière quasi non intrusive dans tout le champ de l'écoulement. Cette technique est basée sur les propriétés de luminescence des molécules d'un traceur introduites dans un gaz porteur. La vapeur d'acétone peut être utilisée comme traceur. D'une manière analogue à la MTM (partie 2.1.2.2) qui exploite la sensibilité de la phosphorescence à la variation de la pression, la MTT exploite la sensibilité de la fluorescence vis-à-vis de la variation de température. Le signal de fluorescence est directement lié à la température suivant la relation (Thurber, Grisch et al. 1998)

$$S_f = \eta_o E_L \sigma_{abs}(\lambda_o, T) n \Delta y \phi_f(\lambda_o, T, p), \tag{2.25}$$

où la section d'absorption $\sigma_{abs}(\lambda_o, T)$ d'une molécule traceuse (acétone) et le rendement de la fluorescence $\phi_f(\lambda_o, T)$ dépendent de la longueur d'onde d'excitation λ_o, de la température T et de la pression totale p.

Lorsque la longueur d'onde d'excitation, la fraction molaire d'acétone et la pression sont constantes, la connaissance de la variation de la fluorescence en fonction de la température permet de déduire la température à partir de mesures de fluorescence. La section d'absorption peut être mesurée simultanément avec la fluorescence. Par ailleurs, le rendement de la fluorescence est donné par Thurber et al. (Thurber, Grisch et al. 1998) (voir partie 3.3.2).

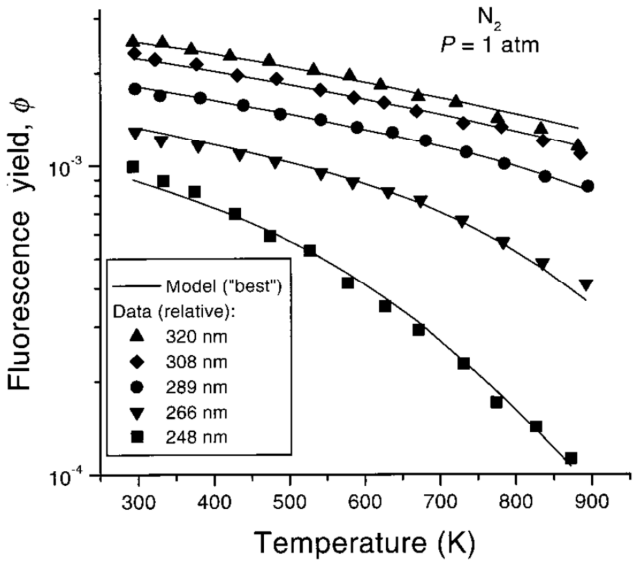

Figure 2.14 Prédictions théoriques et mesures expérimentales du rendement de fluorescence de l'acétone dans le diazote (Thurber, Grisch et al. 1998)

La Figure 2.14 montre les prédictions théoriques du rendement de la fluorescence en fonction de la température, comparées à des mesures expérimentales pour plusieurs longueurs d'onde d'excitation. Les prédictions théoriques sont en bon accord avec les observations expérimentales. Les deux longueurs d'onde de 248 et 266 nm présentent une très bonne sensibilité à la variation de température, ce qui les rend intéressantes pour la mesure de température. Cette technique est prometteuse pour mesurer la température dans des écoulements non isothermes mais avec des variations de pression totale et de pression partielle d'acétone négligeables. Dans le cas contraire, les auteurs (Thurber, Grisch et al. 1998) proposent d'utiliser une double acquisition à deux longueurs d'onde d'excitation différentes. Ainsi, l'effet de la variation de pression peut être éliminé en calculant le rapport entre les deux signaux enregistrés avec les deux longueurs d'onde d'excitation. L'utilisation de couples de longueurs d'onde d'excitation (308 nm / 248 nm) ou bien (308 nm / 266 nm) permet une bonne sensibilité aux variations de température mais celle-ci reste légèrement inférieure à la sensibilité obtenue avec une seule longueur d'onde d'excitation (à pression constante). De plus, l'utilisation de la double excitation ne supprime pas complétement l'erreur induite par des variations de pression (Figure 2.15). Cette erreur dépend à la fois de la valeur de la pression et de celle de la température. Dans des conditions ambiantes de pression et de température, une variation de pression de 10 kPa peut engendrer une erreur de 5 K sur la mesure de température pour les longueurs d'onde (308 nm / 248 nm) et une erreur de 8,5 K pour le couple (308 nm / 266 nm).

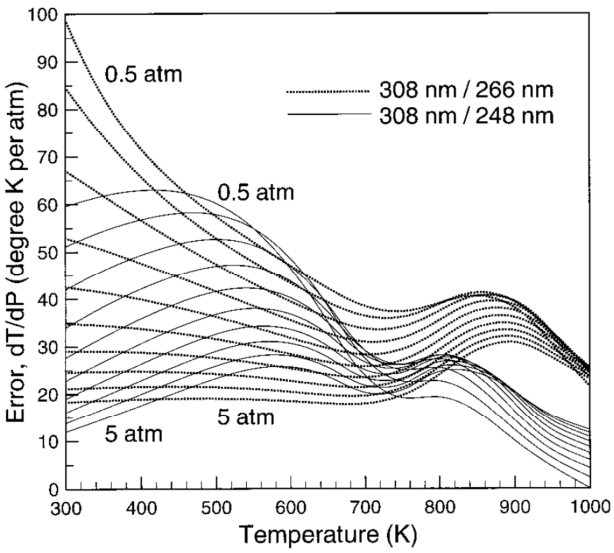

Figure 2.15 Estimation de l'erreur sur la température mesurée avec double excitation. La pression totale varie de 50 à 500 kPa avec des pas de 50 kPa, tandis que la pression partielle d'acétone est fixe.

2.4 Mesure de vitesse

La mesure de vitesses dans les micro-écoulements gazeux demeure aujourd'hui un challenge. Les techniques proposées dans la littérature pour mesurer le champ de vitesse dans les microcanaux sont la micro-vélocimétrie par images de particules (Micro Particle Image Velocimetry - µPIV) et la vélocimétrie par marquage moléculaire (Molecular Tagging velocimetry - MTV). Dans cette partie, nous proposons une description de ces deux techniques et détaillons quelques perspectives relatives à leurs applications aux micro-écoulements.

2.4.1 Micro-vélocimétrie par images de particules (µPIV)

La µPIV est une technique peu intrusive de mesure de champs de vitesse, basée sur l'imagerie de particules naturellement présentes ou artificiellement introduites dans l'écoulement. Cette technique donne accès au champ de vitesse instantané, un post-traitement approprié permettant de remonter à la vitesse moyenne et à d'autres propriétés quantitatives de l'écoulement telles que l'intensité de turbulence ou la vorticité. La µPIV découle de la technique de mesure macroscopique qu'est la PIV. On parle de µPIV lorsque tout le champ est illuminé et que la résolution est définie par l'optique et non par les dimensions du faisceau ou de la nappe laser ; la longueur caractéristique du champ étudié est alors de l'ordre 10^{-7} à 10^{-4} m. La µPIV a été introduite par Santiago et al. (Santiago, Wereley et al. 1998) à la fin des années 90 et depuis, cette technique a été largement utilisée dans les micro-écoulements liquides. Une centaine d'articles où la µPIV est la principale technique est publiée chaque année (Wereley and Meinhart 2010).

2.4.1.1 Principe de la µPIV

Le principe de fonctionnement de la µPIV consiste à capturer deux images espacées d'un intervalle de temps Δt. Ces images sont subdivisées en cellules de même taille. La corrélation des distributions de particules dans chaque cellule aux instants t et $t+\Delta t$ permet de déterminer le déplacement local mesuré Δx. La vitesse locale instantanée $u=\Delta x/\Delta t$ est ensuite déduite. La Figure 2.16 montre un montage typique de µPIV. Un laser pulsé envoie un faisceau de lumière monochromatique à travers un microscope. Le faisceau est ensuite défléchi avec un miroir dichroïque vers le microcanal, ici alimenté par un pousse-seringue. L'écoulement est préalablement ensemencé de particules devenues fluorescentes suite à l'excitation par la lumière du laser. La lumière réémise traverse le miroir dichroïque avant d'être enregistrée par le capteur CCD ou CMOS d'une caméra. Un post-traitement permettant d'obtenir les quantités désirées est finalement réalisé sur un ordinateur.

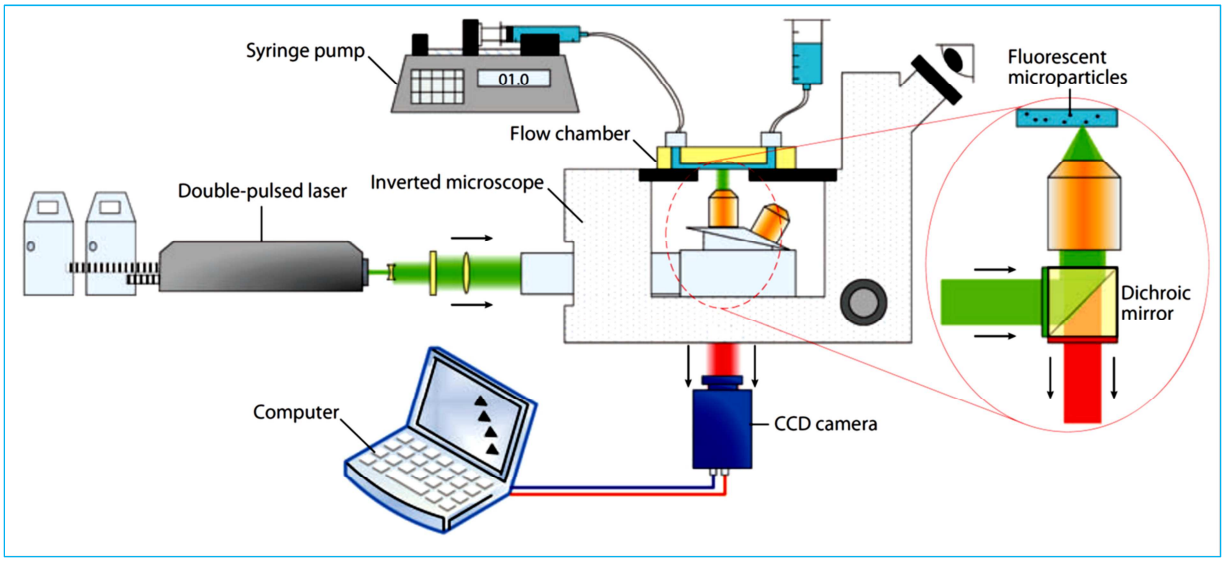

Figure 2.16 Schéma de principe de la µPIV (Wereley and Meinhart 2010)

La précision de la µPIV repose sur la capacité des particules traceuses à suivre fidèlement l'écoulement porteur. La taille des particules doit être assez petite devant la taille du microcanal afin que les particules puissent suivre l'écoulement porteur et éviter toute obstruction du microcanal. D'autre part, la taille des particules doit être assez grande pour pouvoir être détectées et aussi pour limiter l'erreur ε_B introduite par leur mouvement Brownien. Cette erreur est donnée par (Santiago, Wereley et al. 1998)

$$\varepsilon_B = \frac{\langle S^2 \rangle^{1/2}}{\Delta x} = \frac{1}{u}\sqrt{\frac{2D}{\Delta t}}, \tag{2.26}$$

où $\langle S^2 \rangle$ est la moyenne du carré du déplacement Brownien des particules et D la diffusivité des particules donnée par la relation de Stokes-Einstein

$$D = \frac{k_b T}{3\pi\mu d_p}, \tag{2.27}$$

dans laquelle k_b représente la constante de Boltzmann, μ la viscosité dynamique du fluide porteur et d_p le diamètre des particules. Le choix du décalage temporel Δt entre les deux images est aussi déterminant pour limiter l'erreur ε_B, car le déplacement Brownien moyen $\sqrt{\langle S^2 \rangle}$ augmente proportionnellement à $\sqrt{\Delta t}$ tandis que le déplacement mesuré augmente avec Δt.

2.4.1.2 µPIV en phase gazeuse

Depuis son introduction à la fin des années 90, la µPIV est largement appliquée à l'étude d'écoulements liquides dans des microcanaux (Silva, Leal et al. 2008, Yu, Hu et al. 2013), de micro-écoulements liquides biologiques (Vennemann, Kiger et al. 2006, Lima, Wada et al. 2007) et d'écoulements diphasiques (Ashwood, Vanden Hogen et al. 2014, Meyer, Hoffmann et al. 2014). L'application de la µPIV en phase gazeuse reste à ce jour à un stade de développement. Rares sont les travaux proposant l'extension de la µPIV aux écoulements gazeux : Sugii et al. (Sugii and Okamoto 2006) ont appliqué la µPIV à un écoulement dans un canal de section rectangulaire 1×0,5 mm² à des nombres de Reynolds proches de 26. Les travaux de Sugii et al. ont été motivés par des applications à des piles à combustible à membrane échangeuse de protons (PEMFC). Le gaz réactif (mélange d'hydrogène et de vapeur d'eau) a été ensemencé avec des gouttelettes d'huile ayant des diamètres compris entre 0,5 et 2 µm. Le profil de vitesse mesuré est en bon accord avec le profil théorique, mais à proximité des parois les mesures expérimentales surestiment le profil de vitesse attendu. Egalement pour une application à des piles à combustible, Yoon et al. (Yoon, Ross et al. 2006) ont étudié par µPIV un écoulement dans un canal en forme de U, de section rectangulaire de 1 mm de hauteur. Le gaz porteur était de l'air ensemencé avec deux types de traceurs : des gouttelettes d'eau et des particules de fumée. La géométrie du canal ainsi que la distribution des vitesses obtenues avec les particules de fumée sont montrées dans la Figure 2.17.

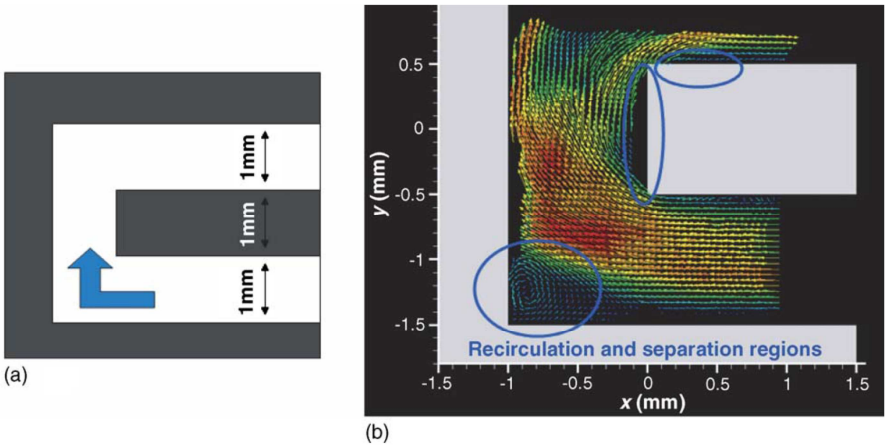

Figure 2.17 (a) Géométrie du canal en U, (b) distribution des vitesses (Yoon, Ross et al. 2006)

L'utilisation des particules de fumée directement dans une pile à combustible en fonctionnement n'est pas appropriée, ce qui a poussé les auteurs à considérer la possibilité d'utiliser des gouttelettes d'eau. Des simulations par CFD ont été réalisées pour tester la capacité des molécules d'eau à suivre l'écoulement du gaz porteur. Ces simulations ont montré qu'à des nombres de Reynolds élevés ($Re = 400$) les gouttelettes ayant un diamètre supérieur à 1 µm s'écartent de l'écoulement du gaz porteur au niveau du coude du canal et les gouttes percutent la paroi frontale (Figure 2.18).

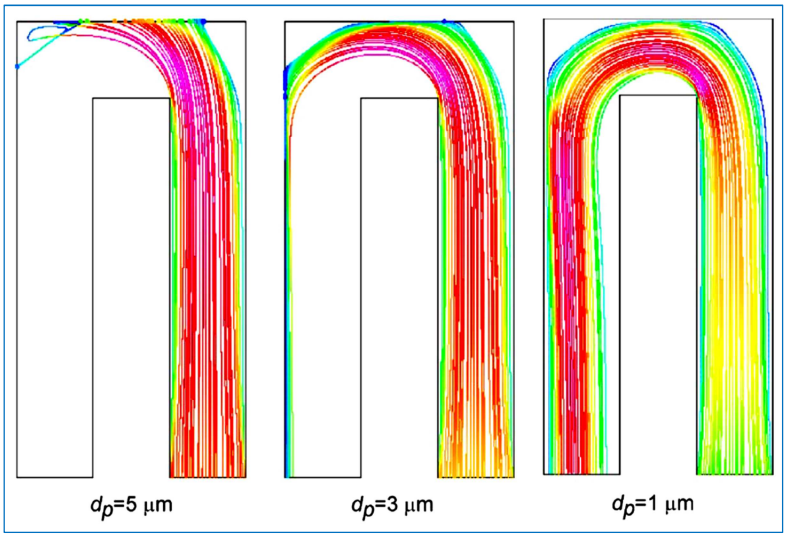

Figure 2.18 Simulation par CFD des trajectoires de gouttes d'eau. $Re = 400$ (Yoon, Ross et al. 2006).

Les auteurs (Yoon, Ross et al. 2006) ont ainsi suggéré l'utilisation de gouttelettes d'eau d'un diamètre proches de 1µm. Il est à noter que la génération de gouttelettes de cette taille n'est pas encore complétement maitrisée.

Egalement motivés par des applications aux piles à combustible, Burgmann et al. (Burgmann, Van der Schoot et al. 2011) ont étudié les effets de particules traceuses en µPIV.

Des expériences ainsi que des simulations numériques ont été réalisées dans un canal coudé de section rectangulaire de 1×0,96 mm². Le gaz porteur (air) a été ensemencé avec des gouttelettes d'éthylène-glycol ayant un diamètre moyen proche de 1 µm. Des simulations numériques ont également été réalisées afin d'analyser la dynamique des particules traceuses ainsi que leur aptitude à suivre l'écoulement porteur. Afin d'estimer l'effet de déviation des particules en phase gazeuse, deux types d'expériences ont été réalisées avec d'une part un écoulement d'air ensemencé par des gouttelettes d'éthylène-glycol de diamètre moyen de 1 µm à $Re = 200$ et d'autre part, au même nombre de Reynolds, un écoulement d'eau ensemencé avec des particules de résine mélamine (*MF particles*) ayant 8 µm de diamètre en moyenne. La distribution des vitesses obtenue avec les deux fluides est montré sur la Figure 2.19 a.

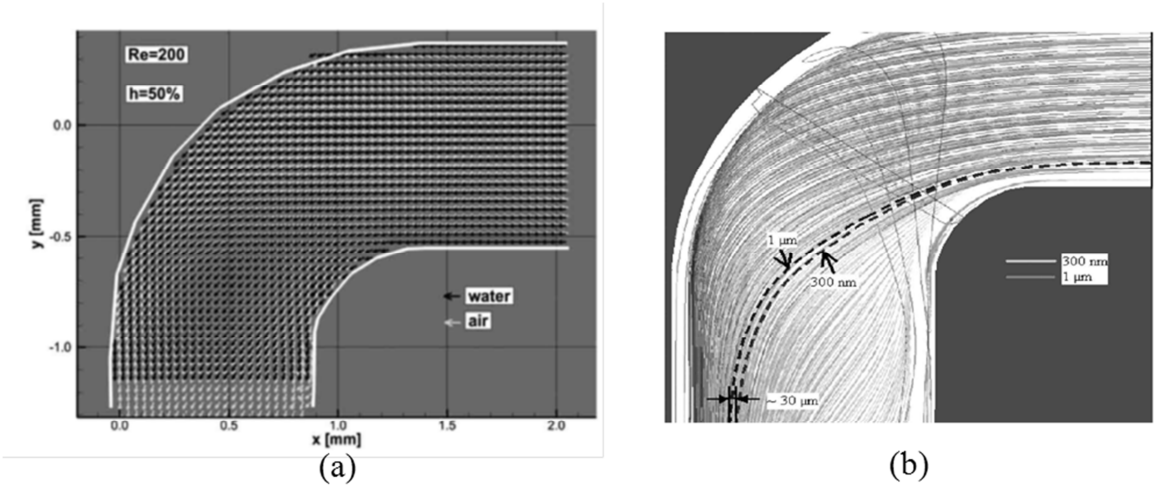

Figure 2.19 (a) Distribution des vitesses à $Re = 200$ dans un coude à 90° pour deux fluides (air et eau) mesurée par µPIV. (b) Simulation 3D par CFD des trajectoires de gouttelettes d'éthylène-glycol dans l'air à $Re = 200$ dans un coude à 90° (Burgmann, Van der Schoot et al. 2011)

Les deux expériences donnent des résultats similaires : aucune déviation ne peut être constatée sur la distribution des vitesses. Les auteurs ont noté que la présence de grosses particules, même en petite quantité, avec des diamètres pouvant atteindre 5 µm génère des difficultés supplémentaires. Ces grosses particules entraînées par la force centrifuge et les tourbillons de Dean présents dans l'écoulement percutent la paroi du canal. Comme plusieurs images sont superposées lors du post-traitement, des spots de fluorescence sont observés à proximité des parois, ce qui rend le post-traitement plus difficile et limite la résolution de la µPIV dans cette région. Ces résultats expérimentaux sont confirmés par les simulations numériques qui montrent que les plus petites particules ($d_p \approx 300\,\text{nm}$) suivent fidèlement les lignes de courant de l'écoulement, tandis qu'une déviation est observée au niveau de molécules légèrement plus grosses ($d_p \approx 1\,\mu\text{m}$).

2.4.1.3 Application de la µPIV en régime glissant

Les difficultés qu'ont notées les auteurs (Sugii and Okamoto 2006, Yoon, Ross et al. 2006, Burgmann, Van der Schoot et al. 2011) sont liées d'une part à la génération de particules traceuses et d'autre part à la déviation des particules traceuses vis-à-vis du gaz porteur. Si l'on considère un écoulement glissant, il existe deux possibilités de l'étudier :

1. Ecoulement à des pressions proches de la pression atmosphérique : la taille caractéristique du canal est de l'ordre de 10 µm (18 µm pour un écoulement d'hélium à la température ambiante et à $Kn = 10^{-2}$). Etant donné que la taille des particules traceuses doit être petite devant la taille du canal, un tel canal nécessiterait des particules traceuses submicrométriques. Dans le cas où des gouttelettes sont utilisées comme traceur, la génération de ces dernières à des tailles submicrométriques n'est pas encore possible avec les générateurs d'aérosols actuels comme le montre la Figure 2.20. Dans le cas où des microparticules solides sont utilisées, leur génération à des petites tailles est possible, à l'exemple des molécules en PSL (Poly Styrene Latex) disponibles à des tailles inférieures à 500 nm avec un diamètre moyen autour 50 nm[1]. cependant, leur utilisation en µPIV gazeuse n'est cependant pas appropriée (Burgmann, Van der Schoot et al. 2011), d'une part à cause de la difficulté à les détecter due à leur petite taille (Markus, Christian et al. 2007), d'autre part à cause de l'effet « peak-locking» (Overmars, Warncke et al. 2010) qui est un effet de discrétisation qui intervient lorsque la taille des particules est petite devant la taille du pixel de la caméra utilisée, cette dernière étant généralement de l'ordre de 10 µm. Cet effet a tendance à biaiser la mesure du déplacement des particules, conduisant à considérer à tort les déplacements sur des distances inférieur au pixel comme des déplacements couvrant l'intégralité du pixel (Angele and Muhammad-Klingmann 2005).

[1] http://www.bangslabs.com/products/fluorescent-microspheres

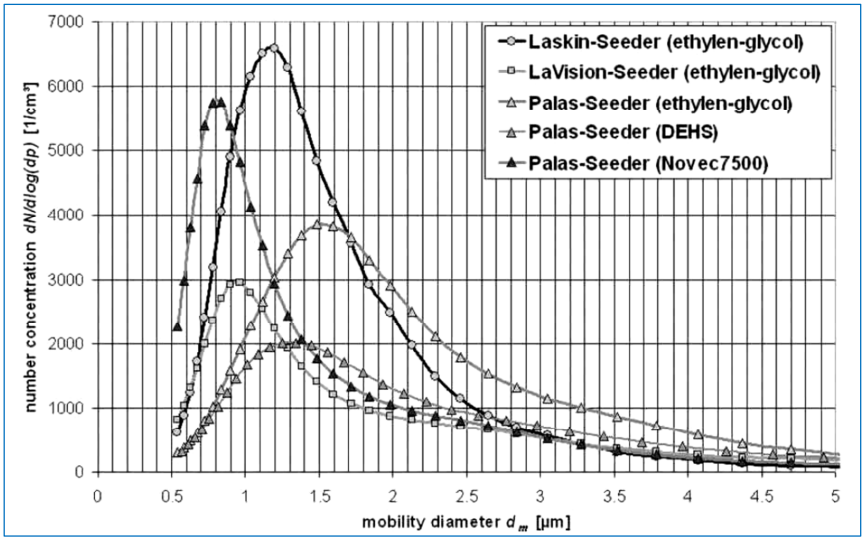

Figure 2.20 Concentration des gouttelettes en fonction de leur taille, pour différents liquides et différents générateurs (Burgmann, Van der Schoot et al. 2011)

2. Ecoulement à basse pression : l'autre possibilité pour faire des expériences en régime glissant consiste à utiliser la similitude de Knudsen, en augmentant la taille du canal et en diminuant la pression afin de maintenir le nombre de Knuden dans la plage recherchée [10^{-3} ; 10^{-1}]. Partant de gouttelettes de taille moyenne de 1 µm, la taille caractéristique adéquate du canal serait alors de l'ordre du millimètre. La pression permettant un écoulement en régime glissant serait de l'ordre de 500 Pa. La masse volumique du gaz serait par conséquent très faible, de l'ordre de 10^{-3} kg/m^3. La différence de masse volumique entre le gaz et les particules traceuses serait alors très importante, ce qui empêcherait un transport convenable de celles-ci par le gaz porteur.

2.4.2 Vélocimétrie par marquage moléculaire MTV

La MTV est une technique optique, non intrusive, de mesure de champ de vitesse dans un écoulement liquide ou gazeux. Elle exploite les propriétés de fluorescence et de phosphorescence de molécules traceuses. On en distingue deux variantes : dans la première (dite avec ensemencement), les molécules traceuses comme l'acétone ou le diacétyle sont préalablement ajoutées à l'écoulement. Dans la seconde, les molécules traceuses sont générées dans l'écoulement suite à une excitation laser déclenchant un processus de photolyse (principe dit du « write and read »), à l'exemple du OH généré par la photolyse de la vapeur d'eau (Ribarov, Wehrmeyer et al. 2002), du krypton métastable obtenu à partir du krypton (Parziale, Smith et al. 2015) et du monoxyde d'azote NO à partir du dioxyde d'azote N_2O (ElBaz and Pitz 2012) ou à partir d'un mélange N_2/O_2.

Quelle que soit la variante, les positions des molécules traceuses sont enregistrées à deux

instants. La vitesse locale de l'écoulement est déduite de l'analyse du déplacement lagrangien entre ces deux instants (Stier and Koochesfahani 1999).

2.4.2.1 Principe de la MTV avec ensemencement

Dans le cas où les molécules traceuses sont ajoutées préalablement à l'écoulement, un laser, typiquement UV, est utilisé pour exciter ces molécules traceuses qui après avoir absorbé une partie de l'énergie laser émettent de la fluorescence et de la phosphorescence. Une image initiale est prise immédiatement après le flash laser à t_0 et une autre image déformée est ensuite enregistrée à $t_0 + \Delta t$. Le champ de déplacement S est directement extrait en superposant l'image initiale et l'image déformée, dans le cas où tous les déplacements sont parallèles à l'axe du canal (Figure 2.21). Connaissant le délai entre les deux images, le champ de vitesse u est finalement déduit du champ de déplacement.

Le marquage de molécules par le laser peut se faire avec une seule ligne laser pour l'étude d'écoulements établis unidirectionnels (Samouda, Colin et al. 2013), avec plusieurs lignes laser parallèles (Handa, Mii et al. 2014) ou enfin avec une grille laser dans le cas d'écoulements plus complexes (Hu and Koochesfahani 2006, Murad, Ismailov et al. 2006). Dans les deux premiers cas, on parle de MTV unidirectionnelle (1D-MTV), car une seule composante de vitesse est recherchée. Dans le deuxième cas, on parle de MTV bidirectionnelle (2D-MTV) où deux composantes de vitesses sont analysées.

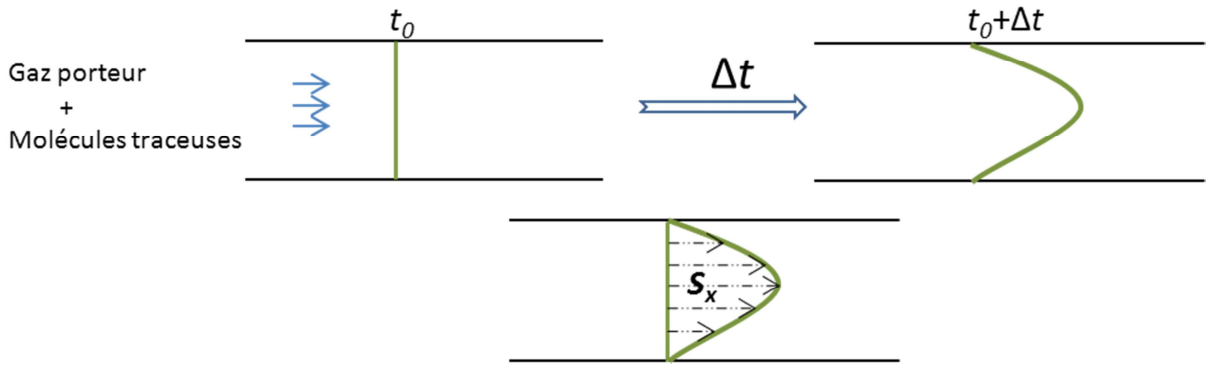

Figure 2.21 Schéma de principe de la 1D-MTV

2.4.2.2 Principe de la MTV avec génération de traceur

Dans le cas où les molécules sont générées dans l'écoulement par photolyse, deux lasers sont utilisés : un laser d'écriture qui déclenche la réaction de photolyse et permet de générer instantanément à t_0 et localement (zone marquée par le faisceau laser) des molécules traceuses, puis un laser de lecture qui rend ces molécules luminescentes.

Par exemple, dans le cas où des molécules NO sont générées à partir de molécules N_2O, la

réaction s'écrit (Orlemann, Schulz et al. 1999) :

$$\begin{array}{l} N_2O + h\upsilon_{\lambda=193nm} \rightarrow N_2 + O \\ N_2O + O \rightarrow 2NO \end{array} . \qquad (2.28)$$

Les positions des molécules traceuses générées par le laser d'écriture sont repérées grâce à une nappe laser (laser de lecture). La lecture se fait grâce à l'émission de fluorescence des molécules traceuses précédemment générés, induite par l'excitation du laser de lecture.

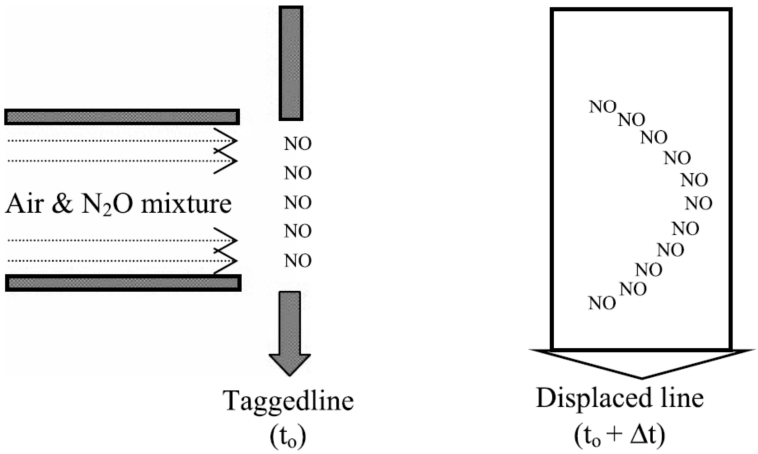

Figure 2.22 Schéma de principe de la MTV avec génération de traceur (ElBaz and Pitz 2012)

Cette technique nécessite l'utilisation de deux lasers, étant donné que la lecture et l'écriture se font à deux longueurs d'onde différentes. Les longueurs d'ondes d'écriture et de lecture pour différents traceurs utilisés dans la littérature sont regroupées dans le Tableau 2.3.

Traceur	Longueur d'onde d'écriture (nm)	Longueur d'onde de lecture (nm)	Référence
NO à partir de N_2O	193	226	(ElBaz and Pitz 2012)
OH à partir de H_2O	193	308	(Ribarov, Wehrmeyer et al. 2002)
O_3 à partir de O_2	193	248	(Robert, Joseph et al. 2000)
Kr métastable à partir de Kr	214,7	760,2	(Parziale, Smith et al. 2015)

Tableau 2.3 Longueurs d'onde d'écriture et d'excitation de différents traceurs

Comparée à la variante MTV avec ensemencement, la MTV avec génération de molécules est légèrement plus délicate à mettre en œuvre, à cause de l'utilisation de deux lasers. Néanmoins elle présente trois principaux avantages :

- La qualité des images obtenues est meilleure car elle utilisé la fluorescence contrairement à la MTV avec ensemencement qui exploite la phosphorescence. Ainsi le signal de fluorescence est de deux ordres de grandeur plus intense que celui de la phosphorescence.

- Il n'y a pas de limitation au niveau du délai Δt entre l'écriture et la lecture, ce qui laisse la possibilité d'étudier des écoulements relativement lents, contrairement à la MTV avec ensemencement où l'on est contraint de choisir des délais moins longs que la durée de vie de la phosphorescence.
- Elle donne la possibilité d'investiguer des écoulements plus raréfiés (à pression plus basse) car comparée à la phosphorescence, la fluorescence est détectable à des pressions plus basses (Si Hadj Mohand , Samouda et al. 2014).

2.4.3 Applications de la MTV en phase gazeuse

Depuis son introduction dans les années 80, la MTV a été très utilisée pour la mesure d'écoulements liquides et gazeux. En phase liquide, la MTV est beaucoup mieux maîtrisée et des mesures de vitesse à l'échelle microscopique sont déjà réalisées avec succès (Roetmann, Schmunk et al. 2008, Wellhausen, Rinke et al. 2012). En phase gazeuse, les jets libres sont les écoulements les plus étudiés, en utilisant soit la variante MTV avec ensemencement (Lempert, Jiang et al. 2002, Lempert, Boehm et al. 2003, Handa, Mii et al. 2014), soit la variante avec génération de traceur (Robert, Joseph et al. 2000, ElBaz and Pitz 2012, Parziale, Smith et al. 2015).

L'une des rares études consacrées aux écoulements à basse pression dans un régime proche du régime glissant, à $Kn = 10^{-3}$, a été menée par Lempert et al. (Lempert, Boehm et al. 2003). Les auteurs ont étudié un microjet libre en utilisant la technique de MTV avec ensemencement et en choisissant l'acétone comme traceur. Généré à partir d'une buse de section rectangulaire de 1×5 mm², le jet débouche dans une chambre reliée à une pompe à vide, avec des accès optiques à des zones de dimension 25×25×100 mm^3. La pression dans la chambre peut descendre jusqu'à 53 Pa. Un laser pulsé Nd:YAG de 266 nm de longueur d'onde est utilisé pour exciter les molécules d'acétone. Les profils de déplacement le long du jet, obtenus avec un intervalle de temps $\Delta t = 500\,\text{ns}$ entre marquage (signal initial) et lecture (signal déformé), sont montrés sur la Figure 2.23. Les profils à différentes distances de la buse sont obtenus individuellement en translatant horizontalement le faisceau laser.

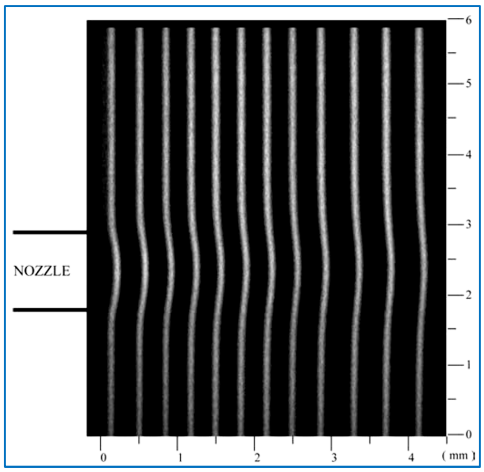

Figure 2.23 Assemblage d'images de MTV obtenues à Mach 2. La pression de sortie du jet est de 421 Pa. Le délai entre le marquage et la lecture est de 500 ns (Lempert, Boehm et al. 2003)

Sur chaque ligne parallèle à l'axe du jet, le profil de signal est approximé par une fonction gaussienne suivant la méthode des moindres carrés. Le déplacement local considéré Δx correspond à la valeur maximale de la gaussienne. La vitesse locale est finalement donnée par le rapport entre le déplacement local et le délai : $u_x = \Delta x / \Delta t$.

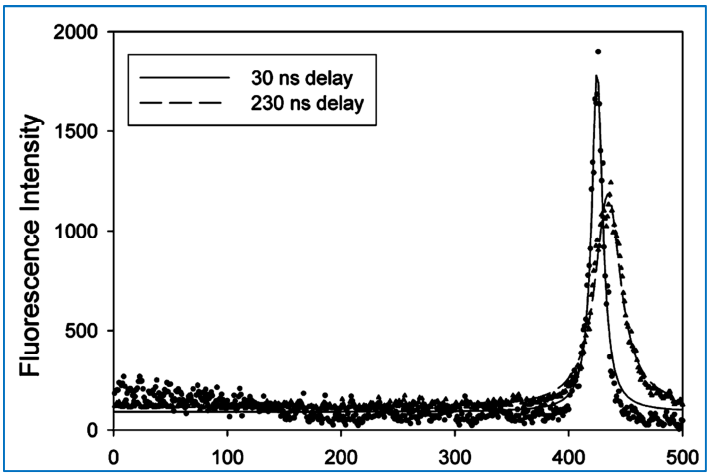

Figure 2.24 Profils d'intensité du signal approximés par des gaussiennes. Les profils représentés sont capturés le long de l'axe du jet à 1mm de la sortie du jet (Lempert, Boehm et al. 2003)

Les profils de vitesse longitudinale u_x obtenus sur des lignes verticales situées à différentes distances de la sortie du jet sont comparés à des simulations par DSMC sur la Figure 2.25.

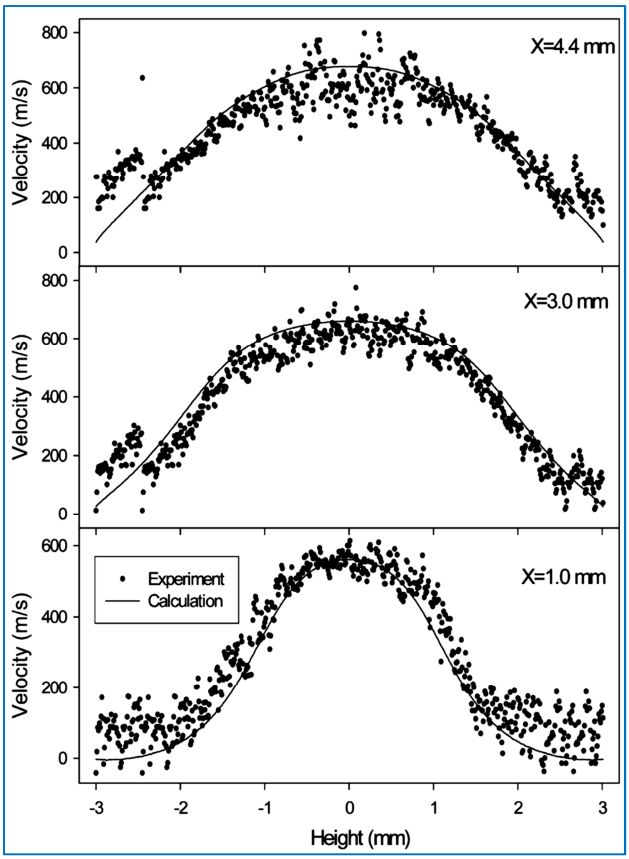

Figure 2.25 Comparaison entre mesures par MTV et simulations par DSMC des profils de vitesse perpendiculairement à l'axe du jet. La pression dans la buse, la pression de sortie et la pression ambiante dans la chambre sont respectivement de 1333, 377 et 53 Pa.

Il est à noter que les auteurs (Lempert, Boehm et al. 2003) ont rapporté l'acquisition d'un signal de fluorescence à des délais allants jusqu'à 300 ns, au-delà de la durée de vie de la fluorescence de 5 ns communément citée (Charogiannis and Beyrau 2013). Les auteurs ont avancé une hypothèse qui attribue cet effet à la photolyse de l'acétone, permettant la génération du radical CH qui lui émit de la fluorescence, cependant, l'analyse permettant de confirmer cette hypothèse n'as pas été apportée. Un bon accord a été trouvé entre les simulations par DSMC et les mesures par MTV. Les quelques écarts observés entre les deux profils sont principalement dus d'une part aux incertitudes inhérentes à la MTV et d'autre part aux incertitudes sur la mesure de pression au niveau des parois, utilisée dans les simulations par DSMC.

Les études d'écoulements gazeux confinés utilisant la MTV sont beaucoup plus rares. On peut citer l'étude d'écoulement dans une pile à combustible (Hecht, Schoot et al. 2010, Hecht, van der Schoot et al. 2012). Les auteurs ont utilisé le monoxyde d'azote comme traceur et de l'argon comme gaz porteur. La géométrie étudiée consiste en une réplique d'une pile à combustible avec accès optique. Cette réplique est constituée d'un réseau de canaux de 1 mm de hauteur. Les auteurs ont mesuré avec la MTV la vitesse globale de propagation du gaz dans

le réseau de canaux. La distribution locale de vitesse du gaz dans les canaux a été mesurée non pas avec la MTV mais avec la µPIV en phase liquide, en utilisant la similitude de Reynolds.

Une autre étude appliquant la MTV en écoulement gazeux confiné a été menée par Murad et al. (Murad, Ismailov et al. 2006). L'écoulement dans le cylindre d'un moteur à combustion a été étudié grâce à la 2D-MTV en ensemençant l'azote avec des molécules de diacétyle. Le cylindre présente un diamètre de 86 mm et une hauteur de 146,5 mm, la course du piston étant de 96,6 mm.

Figure 2.26 Géométrie du cylindre et configuration de l'excitation par une grille de faisceau laser (Murad, Ismailov et al. 2006)

Une grille de faisceaux laser UV de 308 nm de longueur d'onde a été utilisée pour exciter les molécules du diacétyle (Figure 2.26). Une image initiale est prise instantanément suite à l'excitation, puis une autre image est prise après un délai compris entre 15 et 150 µs. Le déplacement des nœuds (points d'intersection de la grille) est obtenu en superposant les deux images, ce qui permet de déduire la vitesse locale de l'écoulement. Les auteurs ont ainsi mesuré le champ de vitesse 2D dans la section centrale du cylindre. D'autres quantités décrivant la turbulence dans le cylindre ont pu être calculées (Murad, Ismailov et al. 2006).

L'application de la MTV en régime glissant requiert un confinement de l'écoulement beaucoup plus poussé et/ou des pressions basses afin d'atteindre le degré de raréfaction nécessaire ($10^{-3} < Kn < 10^{-1}$). Ces conditions engendrent des difficultés supplémentaires par rapport aux travaux que nous avons présentés dans ce paragraphe. Parmi les difficultés à prendre en considération, on peut citer :

- Pour obtenir une meilleure résolution, le diamètre du faisceau laser doit être plus petit que la taille du canal. Des difficultés de focalisation du faisceau et/ou de

concentration d'énergie peuvent alors se poser.

- Les écoulements confinés étant relativement lents, un délai important est nécessaire entre le marquage et la lecture pour permettre des déplacements significatifs, compatibles avec la résolution spatiale de la caméra utilisée. Cela nécessite l'utilisation de traceurs possédant une longue durée de vie de luminescence.
- A basse pression, les effets de diffusion moléculaire sont importants et selon le degré de raréfaction, ces effets peuvent influencer le déplacement des molécules marquées. Par conséquent, la vitesse mesurée peut être biaisée par la diffusion, si cette dernière n'est pas prise en compte.
- Le nombre de molécules marquées dans une configuration donnée est proportionnel à la pression. Cela se traduit par une baisse de la luminescence émise avec la pression. Une attention doit être accordée à la pression limite minimale qui correspond à la plus faible luminescence optiquement détectable par la caméra utilisée.

2.5 Conclusion

Nous avons brossé dans ce chapitre l'état de l'art sur les mesures expérimentales dans les micro-écoulements gazeux. La mesure du débit reste la mieux maîtrisée et de nos jours des débits très petits, de l'ordre 10^{-13} kg s^{-1}, sont mesurables dans des microcanaux de dimensions submicrométriques. En ce qui concerne la mesure de pression, une avancée significative a été accomplie grâce à l'utilisation de PSMF, qui a rendu possible la mesure des champs de pression au niveau des parois. En revanche, la mesure de pression au sein de l'écoulement n'est pas encore possible et la MTM en est encore à un stade de développement. Au niveau de la mesure de température, on reste sur des mesures ponctuelles à proximité des parois en utilisant soit des thermocouples conventionnels soit d'autres micro-capteurs. La technique de MTT en phase gazeuse introduite à la fin des années 90 (Thurber, Grisch et al. 1998) n'a pas encore été étendue aux écoulements raréfiés. En ce qui concerne les mesures de vitesse, les données expérimentales sont encore plus rares ; à notre connaissance il n'existe pas encore de mesure de profil de vitesse en écoulement glissant.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter une stratégie et un outil expérimental destinés à mesurer à terme le profil de vitesse par MTV en écoulements confinés glissants. Nous reviendrons plus en détail sur les difficultés qu'implique ce type d'écoulement. En soulignant l'importance de la compréhension fine des processus photo-physiques auxquels

sont confrontées les molécules traceuses intervenant dans toutes les techniques de visualisation précédemment citées (MTV, MTT et MTM), nous reviendrons plus en détails sur les propriétés photo-physiques des cétones dans le chapitre suivant.

Références :

Angele, K. P. and B. Muhammad-Klingmann (2005). "A simple model for the effect of peak-locking on the accuracy of boundary layer turbulence statistics in digital PIV." Experiments in Fluids **38**(3): 341-347.

Ashwood, A. C., S. J. Vanden Hogen, M. A. Rodarte, C. R. Kopplin, D. J. Rodríguez, E. T. Hurlburt and T. A. Shedd (2014). "Reprint of: A multiphase, micro-scale PIV measurement technique for liquid film velocity measurements in annular two-phase flow." International Journal of Multiphase Flow **67, Supplement**(0): 200-212.

Basu, R., A. M. Naguib and M. M. Koochesfahani (2010). "Feasibility study of whole-field pressure measurements in gas flows: molecular tagging manometry." Experiments in Fluids **49**(1): 67-75.

Bergoglio, M., D. Mari, J. Chen, H. Si Hadj Mohand, S. Colin and C. Barrot (2015). "Experimental and computational study of gas flow delivered by a rectangular microchannels leak." Measurement **73**: 551-562.

Burgmann, S., N. Van der Schoot, C. Asbach, J. Wartmann and R. Lindken (2011). "Analysis of tracer particle characteristics for micro PIV in wall-bounded gas flows." La Houille Blanche(4): 55-61.

Charogiannis, A. and F. Beyrau (2013). "Laser induced phosphorescence imaging for the investigation of evaporating liquid flows." Experiments in Fluids C7 - 1518 **54**(5): 1-15.

Colin, S. (2005). "Rarefaction and compressibility effects on steady and transient gas flows in microchannels." Microfluidics and Nanofluidics **1**(3): 268-279.

Demsis, A., B. Verma, S. V. Prabhu and A. Agrawal (2009). "Experimental determination of heat transfer coefficient in the slip regime and its anomalously low value." Physical Review E **80**(1): 016311.

Du, D., Z. Li and Z. Guo (2000). "Friction resistance for gas flow in smooth microtubes." Science in China Series E: Technological Sciences **43**(2): 171-177.

Edward O'Neall, H. and C. W. Larson (1969). "Primary Processes in the Acetone Photochemical System." The Journal of Phyaical Chemistry **73**(4).

ElBaz, A. M. and R. W. Pitz (2012). "N2O molecular tagging velocimetry." Applied Physics B **106**(4): 961-969.

Ewart, T., P. Perrier, I. Graur and J. Gilbert Méolans (2006). "Mass flow rate measurements in gas micro flows." Experiments in Fluids **41**(3): 487-498.

Handa, T., K. Mii, T. Sakurai, K. Imamura, S. Mizuta and Y. Ando (2014). "Study on supersonic rectangular microjets using molecular tagging velocimetry." Experiments in Fluids **55**(5): 1-9.

Hecht, C., N. v. d. Schoot, H. Kronemayer, R. Lindken and C. Schulz (2010). Visualization of the gas flow in fuel cell bipolar plates using molecular flow tagging velocimetry and micro PIV. 15th Int. Symp. on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics. Lisbon, Portugal.

Hecht, C., N. van der Schoot, H. Kronemayer, I. Wlokas, R. Lindken and C. Schulz (2012). "Visualization of the gas flow in fuel cell bipolar plates using molecular flow seeding and micro-particle image velocimetry." Experiments in Fluids **52**(3): 743-748.

Hu, H. and M. M. Koochesfahani (2006). "Molecular tagging velocimetry and thermometry and its application to the wake of a heated circular cylinder." Measurement Science and Technology **17**(6): 1269.

Jang, J. and S. T. Wereley (2004). "Pressure distributions of gaseous slip flow in straight and uniform rectangular microchannels." Microfluidics and Nanofluidics **1**(1): 41-51.

Kandlikar, S., S. Garimella, D. Li and S. Colin (2013). Heat transfer and fluid flow in mini channels and microchannels, Butterworth-Heinemann.

Karniadakis, G. and A. Beskok (2002). Micro flows: fundamentals and simulation. New York, Springer.

Knudsen, M. (1909). "Die Gesetze der Molekularstr¨omung und der inneren Reibungsstr¨omung der Gase durch R¨ohren." Annalen der Physik, 28:75–130.

Kohl, M. J., S. I. Abdel-Khalik, S. M. Jeter and D. L. Sadowski (2005). "A microfluidic experimental platform with internal pressure measurements." Sensors and Actuators A: Physical **118**(2): 212-221.

Lakowicz, J. R. (2010). Principles of Fluorescence Spectroscopy, Sepringer.

Lalonde , P., S. Colin and R. Caen (2001). "Mesure de débit de gaz dans les microsystèmes." Mécanique et Industries **2**(4): 355-362.

Lempert, W. R., M. Boehm, N. Jiang, S. Gimelshein and D. Levin (2003). "Comparison of molecular tagging velocimetry data and direct simulation Monte Carlo simulations in supersonic micro jet flows." Experiments in Fluids **34**(3): 403-411.

Lempert, W. R., N. Jiang, M. Samimy and S. Sethuram (2002). "Molecular Tagging Velocimetry Measurements in Supersonic Microjets." Aiaa Journal **40**(6): 1065--1070.

Lima, R., S. Wada, M. Takeda, K.-i. Tsubota and T. Yamaguchi (2007). "In vitro confocal micro-PIV measurements of blood flow in a square microchannel: The effect of the haematocrit on instantaneous velocity profiles." Journal of Biomechanics **40**(12): 2752-2757.

Löffler, M., F. Beyrau and A. Leipertz (2010). "Acetone laser-induced fluorescence behavior for the simultaneous quantification of temperature and residual gas distribution in fired spark-ignition engines." Applied Optics **49**(1): 37-49.

Markus, R., E. W. Christian, T. W. Steven and K. Jürgen (2007). Particle image velocimetry: a practical guide. Heidelberg, Springer.

Matsuda, Y., R. Misaki, H. Yamaguchi and T. Niimi (2011). "Pressure-sensitive channel chip for visualization measurement of micro gas flows." Microfluidics and Nanofluidics **11**(4): 507-510.

Matsuda, Y., H. Mori, Y. Sakazaki, T. Uchida, S. Suzuki, H. Yamaguchi and T. Niimi (2009). "Extension and characterization of pressure-sensitive molecular film." Experiments in Fluids **47**(6): 1025-1032.

Matsuda, Y., T. Uchida, S. Suzuki, R. Misaki, H. Yamaguchi and T. Niimi (2011). "Pressure-sensitive molecular film for investigation of micro gas flows." Microfluidics and Nanofluidics **10**(1): 165-171.

Meyer, C., M. Hoffmann and M. Schlüter (2014). "Micro-PIV analysis of gas–liquid Taylor flow in a vertical oriented square shaped fluidic channel." International Journal of Multiphase Flow **67**(0): 140-148.

Morini, G. L., M. Lorenzini and S. Salvigni (2006). "Friction characteristics of compressible gas flows in microtubes." Experimental Thermal and Fluid Science **30**(8): 733-744.

Morini, G. L., Y. Yang, H. Chalabi and M. Lorenzini (2011). "A critical review of the measurement techniques for the analysis of gas microflows through microchannels." Experimental Thermal and Fluid Science **35**(6): 849-865.

Murad, M., Ismailov, H. Schock and A. Fedewa (2006). "Gaseous flow measurements in an internal combustion engine assembly using molecular tagging velocimetry." Experiments in Fluids **41**(1): 57-65.

Orlemann, C., C. Schulz and J. Wolfrum (1999). "NO-flow tagging by photodissociation of NO2. A new approach for measuring small-scale flow structures." Chemical Physics Letters **307**(1–2): 15-20.

Overmars, E. F. J., N. G. W. Warncke, C. Poelma and J. Westerweel (2010). Bias errors in PIV: the pixel locking effect revisited. 15th Int Symp on Applications of Laser Techniques to Fluid Mechanics Lisbon, Portugal.

Parziale, N. J., M. S. Smith and E. C. Marineau (2015). "Krypton tagging velocimetry of an underexpanded jet." Applied Optics **54**(16): 5094-5101.

Perrier, P., I. A. Graur, T. Ewart and J. G. Meolans (2011). "Mass flow rate measurements in microtubes: From hydrodynamic to near free molecular regime." Physics of Fluids **23**(4): 042004-042011.

Pitakarnnop, J. (2009). Analyse expérimentale et simulation numérique d'écoulements raréfiés de gaz simples et de mélanges gazeux dans les microcanaux. PHD, Institut National des Sciences Appliquées de Toulouse.

Pitakarnnop, J., S. Varoutis, D. Valougeorgis, S. Geoffroy, L. Baldas and S. p. Colin (2010). "A novel experimental setup for gas microflows." Microfluidics and Nanofluidics **8**(1): 57-72.

Ribarov, L. A., J. A. Wehrmeyer, R. W. Pitz and R. A. Yetter (2002). "Hydroxyl tagging velocimetry (HTV) in experimental air flows." Applied Physics B **74**(2): 175-183.

Robert, W. P., A. W. Joseph, A. R. Lubomir, A. O. Douglas, B. Farrokh, A. D. Peter, D. Stefan and E. D. Paul (2000). "Unseeded molecular flow tagging in cold and hot flows using ozone and hydroxyl tagging velocimetry." Measurement Science and Technology **11**(9): 1259.

Roetmann, K., W. Schmunk, C. Garbe and V. Beushausen (2008). "Micro-flow analysis by molecular tagging velocimetry and planar Raman-scattering." Experiments in Fluids **44**(3): 419-430.

Samouda, F., S. Colin, C. Barrot, L. Baldas and J. Brandner (2013). "Micro molecular tagging velocimetry for analysis of gas flows in mini and micro systems." Microsystem Technologies: 1-11.

Santiago, J. G., S. T. Wereley, C. D. Meinhart, D. J. Beebe and R. J. Adrian (1998). "A particle image velocimetry system for microfluidics." Experiments in Fluids **25**(4): 316-319.

Si Hadj Mohand , H., F. Samouda, C. Barrot, S. Colin and A. Frezzotti (2014). Investigation of laser induced phosphorescence and fluorescence of acetone at low pressure for molecular tagging velocimetry in gas microflows. Microflow Nanoflow London.

Silva, G., N. Leal and V. Semiao (2008). "Micro-PIV and CFD characterization of flows in a microchannel: Velocity profiles, surface roughness and Poiseuille numbers." International Journal of Heat and Fluid Flow **29**(4): 1211-1220.

Stier, B. and M. M. Koochesfahani (1999). "Molecular Tagging Velocimetry (MTV) measurements in gas phase flows." Experiments in Fluids **26**(4): 297-304.

Sugii, Y. and K. Okamoto (2006). Velocity Measurement of Gas Flow Using Micro PIV Technique in Polymer Electrolyte Fuel Cell. ASME 4th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels, Limerick, Ireland.

Thurber, M. C., F. Grisch, B. J. Kirby, M. Votsmeier and R. K. Hanson (1998). "Measurements and Modeling of Acetone Laser-Induced Fluorescence with Implications for Temperature-Imaging Diagnostics." Appl.

Opt. **37**(21): 4963-4978.

Thurber, M. C. and R. K. Hanson (1999). "Pressure and composition dependences of acetone laser-induced fluorescence with excitation at 248, 266, and 308Â nm." Applied Physics B **69**(3): 229-240.

Turner, S. E., L. C. Lam, M. Faghri and O. J. Gregory (2004). "Experimental Investigation of Gas Flow in Microchannels." Journal of Heat Transfer **126**(5): 753-763.

Vennemann, P., K. T. Kiger, R. Lindken, B. C. W. Groenendijk, S. Stekelenburg-de Vos, T. L. M. ten Hagen, N. T. C. Ursem, R. E. Poelmann, J. Westerweel and B. P. Hierck (2006). "In vivo micro particle image velocimetry measurements of blood-plasma in the embryonic avian heart." Journal of Biomechanics **39**(7): 1191-1200.

Wellhausen, M., G. Rinke and H. Wackerbarth (2012). "Combined measurement of concentration distribution and velocity field of two components in a micromixing process." Microfluidics and Nanofluidics **12**(6): 917-926.

Wereley, S. T. and C. D. Meinhart (2010). "Recent Advances in Micro-Particle Image Velocimetry." Annual Review of Fluid Mechanics **42**(1): 557-576.

Xugang, Z., C. Hongseok, D. Arindom and L. Xiaochun (2006). "Design, fabrication and characterization of metal embedded thin film thermocouples with various film thicknesses and junction sizes." Journal of Micromechanics and Microengineering **16**(5): 900.

Yoon, S. Y., J. W. Ross, M. M. Mench and K. V. Sharp (2006). "Gas-phase particle image velocimetry (PIV) for application to the design of fuel cell reactant flow channels." Journal of Power Sources **160**(2): 1017-1025.

Yu, D., X. Hu, C. Guo, T. Wang, X. Xu, D. Tang, X. Nie, L. Hu, F. Gao and T. Zhao (2013). "Investigation on meniscus shape and flow characteristics in open rectangular microgrooves heat sinks with micro-PIV." Applied Thermal Engineering **61**(2): 716-727.

Zohar, Y., S. Y. K. Lee, W. Y. Lee, L. Jiang and P. I. N. Tong (2002). "Subsonic gas flow in a straight and uniform microchannel." Journal of Fluid Mechanics **472**: 125-151.

Chapitre 3

Banc expérimental de MTV pour les écoulements gazeux confinés

Dans ce chapitre, nous décrivons en détail la méthodologie expérimentale adoptée dans cette thèse pour la mesure du profil de vitesse dans un écoulement gazeux confiné. Nous décrivons en premier le banc expérimental de vélocimétrie par marquage moléculaire (dit banc de MTV) ainsi que les éléments qui le composent, puis nous détaillons les effets de luminescence mis en jeu dans les expériences de MTV.

3.1 Description du banc expérimental de MTV

Pour des raisons de simplicité de mise en œuvre (utilisation d'un seul laser, équipement optique simplifié… Voir partie 2.4.2), nous avons opté pour la technique de MTV avec ensemencement. Une vue globale du banc d'essais de MTV est présentée sur la Figure 3.1. Ce banc a été initialement développé dans le cadre d'une précédente thèse (Samouda 2012) puis a subi certaines modifications dans le cadre du présent travail. Comme on peut le constater sur la figure ci-dessous, le banc de MTV est composé de trois parties distinctes : un circuit de gaz (orange), un système de marquage (bleu) et un système d'acquisition (vert).

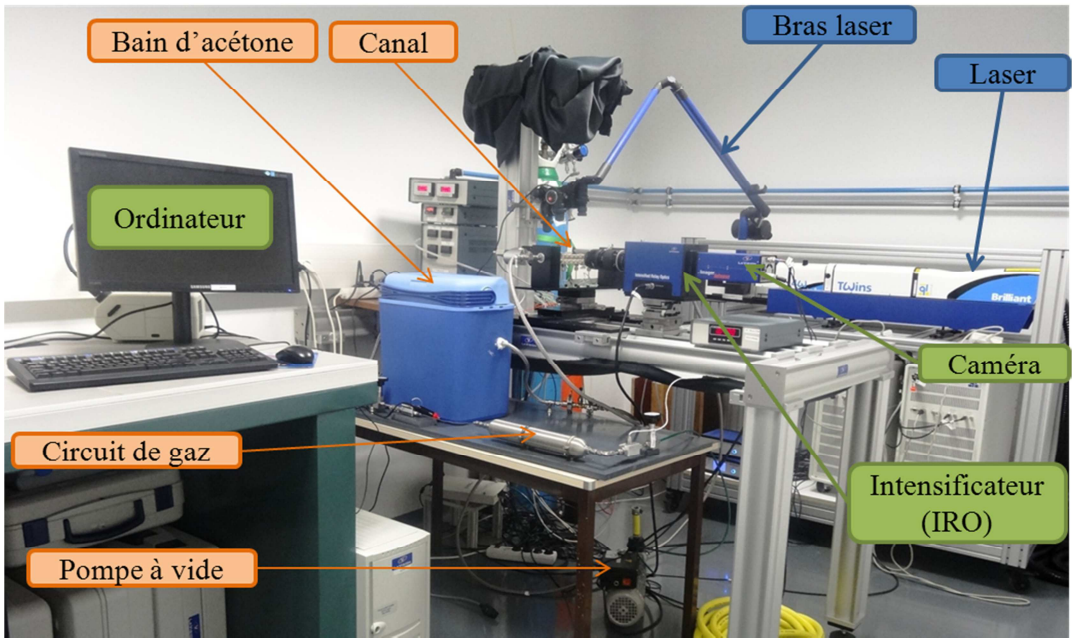

Figure 3.1 Vue globale du banc d'essais de MTV, ICA-Toulouse

3.1.1 Circuit de gaz

Le circuit de gaz est schématisé sur la Figure 3.2. Le gaz porteur (argon) sort de la bouteille d'alimentation et traverse un réservoir en aval de la vanne V1 afin d'éliminer d'éventuelles fluctuations de pression. Ensuite le gaz pénètre dans un bain d'acétone liquide régulé en température. Ainsi, un mélange gaz porteur - gaz traceur (argon-acétone) est généré. La concentration du traceur est contrôlée grâce au contrôle de la température du bain. Le mélange ainsi formé traverse le canal où il est étudié avant d'être refoulé soit directement à l'extérieur (V5 fermée et V6 ouverte) dans le cas d'écoulements à des pressions supérieures à la pression atmosphérique, soit via la pompe à vide (V5 ouverte et V6 fermée) dans le cas d'écoulements à basse pression. La Figure 3.2 montre la structure du canal qui est équipé de trois thermocouples et deux lentilles en Suprasil® permettant l'accès au faisceau laser.

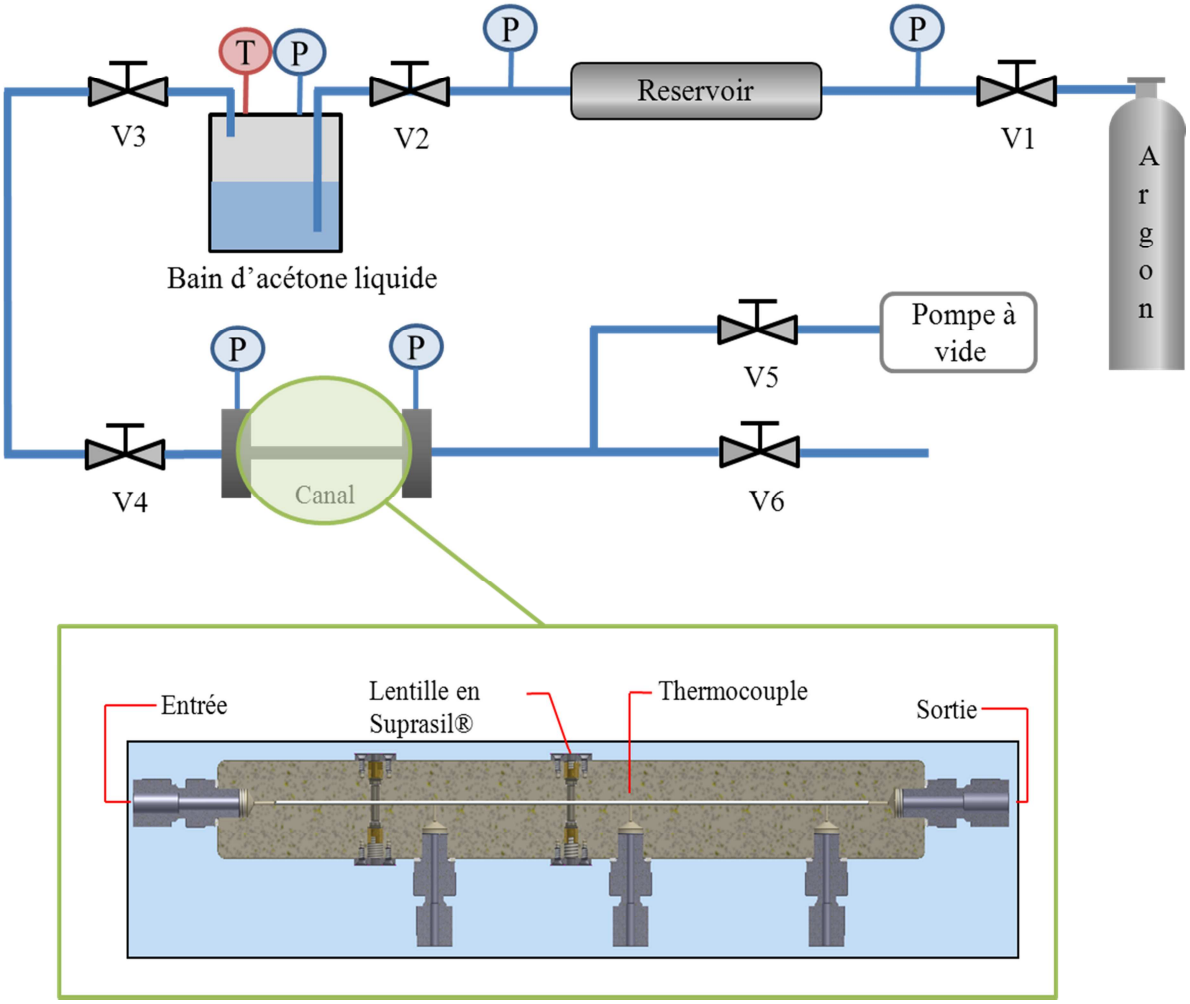

Figure 3.2 Schéma du circuit de gaz et structure du canal

La fraction molaire d'acétone dans le mélange est déterminée en supposant que la pression partielle d'acétone dans le bain, $p_{acétone}$, est égale à la pression de vapeur saturante d'acétone à la température du bain T, cette dernière étant directement mesurée grâce à un thermocouple

placé dans le bain d'acétone (Figure 3.2). En se basant sur la loi des gaz parfaits (Boyle-Mariotte), la fraction molaire d'acétone noté χ_2 (la fraction molaire du gaz porteur étant χ_1) est donnée par :

$$\chi_2 = \frac{p_{acétone}}{p_{tot}}, \tag{3.1}$$

où p_{tot} est la pression totale dans le bain d'acétone mesurée grâce à un capteur de pression piézorésistif de marque Kulite®. La pression de vapeur saturante d'acétone $p_{acétone}$ en fonction de la température T est donnée par l'équation d'Antoine (James 2004) :

$$\ln(p_{acétone} / p_0) = a - \frac{b}{c+T}, \tag{3.2}$$

où $p_0 = 10^5$ Pa est la pression standard, $a = 4,36, b = 1210,59$ K et $c = -43,34$ K sont des coefficients déterminés expérimentalement. L'introduction de l'équation (3.2) dans l'équation (3.1) permet d'obtenir la concentration en acétone en fonction des deux grandeurs mesurées au niveau du bain d'acétone, la température T et de la pression p_{tot}.

Afin d'éviter une éventuelle condensation de l'acétone dans le canal, la température dans le bain d'acétone est maintenue à environ 10 K en dessous de la température du canal. De ce fait, l'acétone se trouvant à l'état de vapeur saturée au niveau du bain passe à l'état de vapeur surchauffée lors de son passage dans le canal, tandis que les conditions de pression dans le bain d'acétone et dans le canal sont assez proches, comme le montre la Figure 3.3.

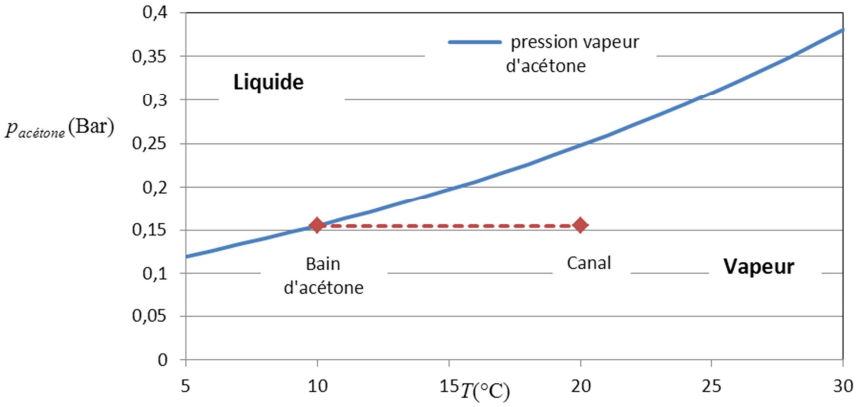

Figure 3.3 Courbe de pression de vapeur saturante d'acétone et conditions thermodynamiques dans le bain d'acétone et dans le canal

3.1.2 Système de marquage

Le marquage des molécules traceuses est effectué grâce à un laser ND :YAG à deux cavités (L1 et L2) de 266 nm de longueur d'onde. La longueur d'onde initiale délivrée par les deux cavités du laser est de 1064 nm ; l'utilisation d'un premier module doubleur de

fréquence (module 2W) permet de ramener la longueur d'onde du faisceau à 532 nm et l'utilisation d'un deuxième module doubleur de fréquence (module 4W) permet de ramener la longueur d'onde initiale du faisceau dans la bande d'absorption du traceur (acétone) à 266 nm (Figure 3.4).

Le laser délivre des pulses d'une durée de 5 ns à une fréquence $f_l = 10\,\text{Hz}$. L'énergie d'un pulse à 266 nm est de 50 mJ. L'ajout d'un module atténuateur de puissance après le module 4W permet de contrôler l'énergie du faisceau, cette dernière étant fixée à environ 1 mJ afin de ne pas endommager les lentilles du canal. L'énergie du laser est mesurée grâce à un power-mètre de marque Gentec®. Un bras laser est ajouté après l'atténuateur de puissance afin de guider le faisceau en toute sécurité jusqu'aux lentilles du canal. Le laser délivre un faisceau de profil gaussien d'environ 6 mm de diamètre ; ce dernier est ensuite réduit à 35 µm grâce à la combinaison d'un diaphragme et d'une lentille convergente directement intégrés dans le bras laser.

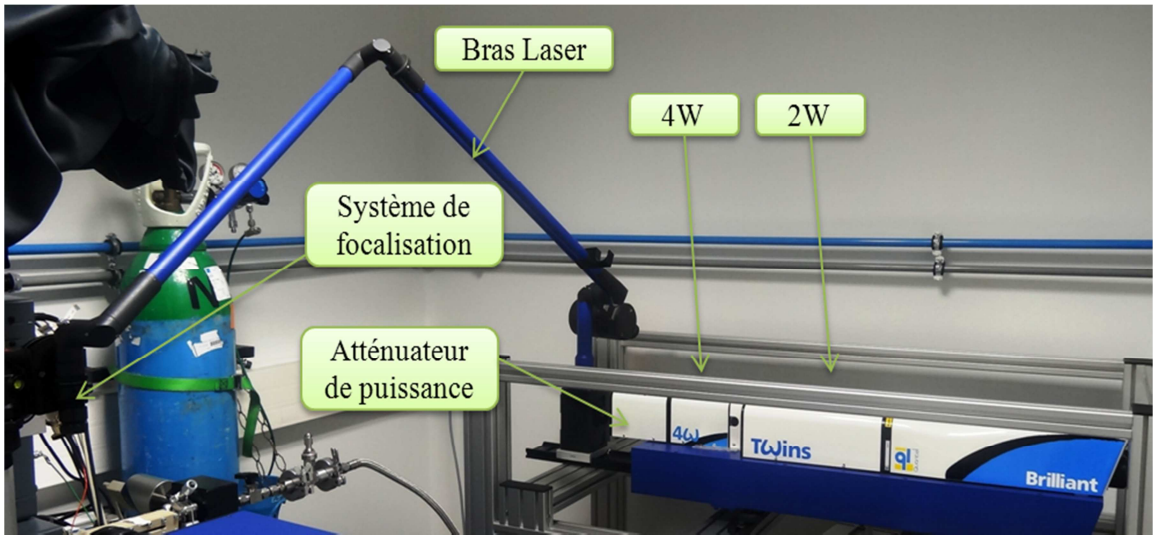

Figure 3.4 Vue du système de marquage

L'utilisation du laser requiert une procédure de mise en marche bien spécifique qui se fait en trois étapes :

- **Phase-matching du module 4W** : Afin de permettre un doublage de fréquence optimal de 512 nm à 266 nm au niveau du module 4W, il est nécessaire de bien régler la température de fonctionnement de ce dernier. Pour cela, il faut faire varier la résistance du module 4W en l'augmentant graduellement, typiquement de 200 à 400 ohms, puis la ramener à sa valeur initiale (diminution de 400 à 200 ohms) et mesurer la puissance délivrée par le laser pour chaque résistance imposée grâce au power-mètre. Une fois la résistance correspondant au maximum d'énergie localisée,

pour assurer une bonne stabilité au niveau de l'énergie du laser, on règle la résistance de fonctionnement R_f du module 4W à 10 ohms en dessous de cette résistance (Figure 3.5). Il faut réaliser cette étape à chaque fois qu'une diminution ou que des fluctuations sont observées au niveau de l'énergie délivrée par le laser.

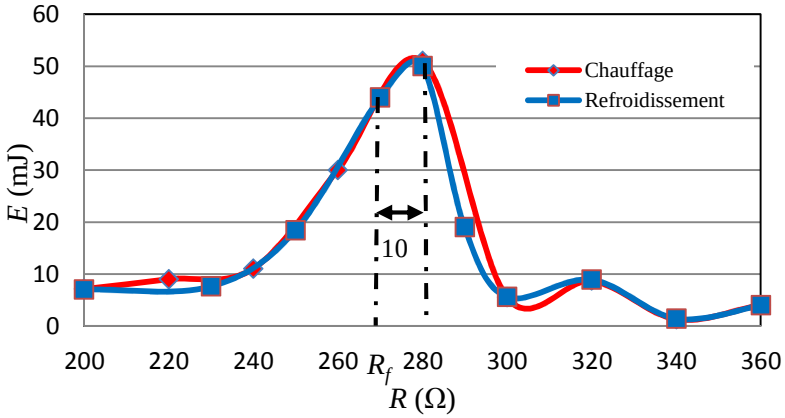

Figure 3.5 Phase-matching du laser L2 : énergie par pulse délivrée par le laser en fonction de la résistance du module 4W

- **Chauffage du laser** : Dans cette étape, on met le laser en marche et on mesure l'énergie délivrée au cours du temps jusqu'à la stabilisation de cette dernière (Figure 3.6).

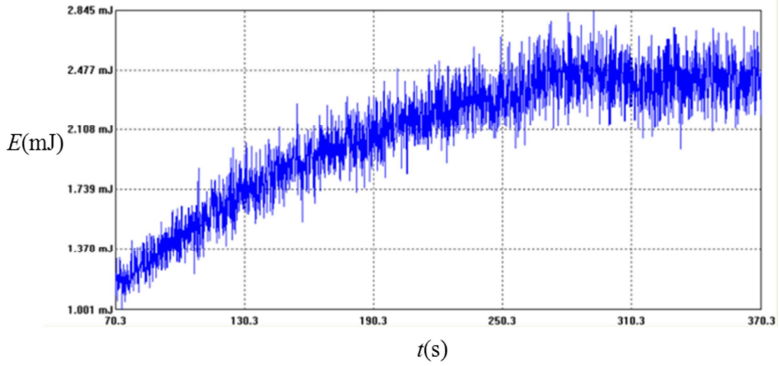

Figure 3.6 : Stabilisation thermique du laser L2 : énergie délivrée par pulse (mJ) en fonction du temps (s)

- **Réglage de l'énergie de fonctionnement :** Grâce à l'atténuateur d'énergie, on abaisse l'énergie du faisceau à une valeur proche de 1 mJ (Figure 3.7). Cette valeur relativement basse a été choisie afin de ne pas endommager les lentilles du canal en Suprasil® que traverse le laser (Figure 3.2). En effet, des trous d'impacts laser sont observés sur des échantillons en Suprasil® pour des énergies supérieures à 2 mJ (valeur mesurée avec le diaphragme à pleine ouverture).

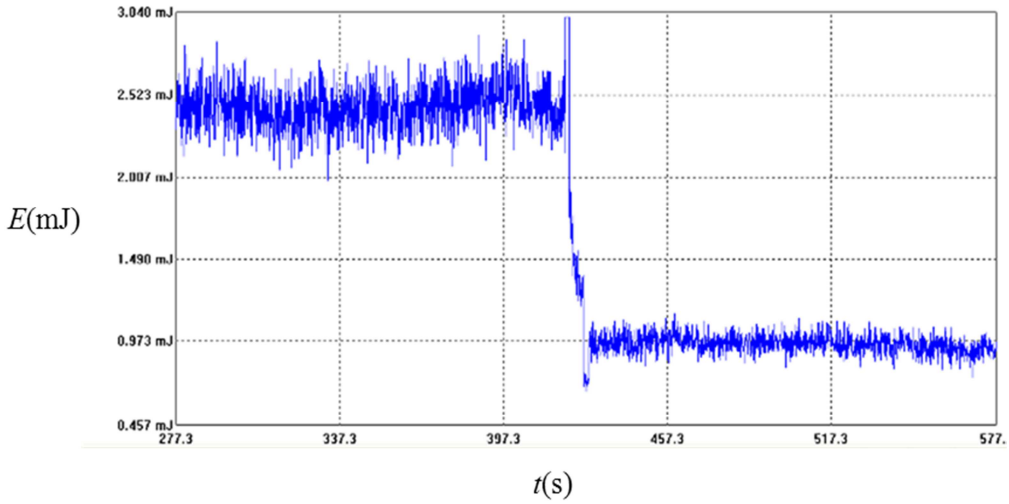

Figure 3.7 : Réglage de l'énergie du laser L2 : énergie délivrée par pulse (mJ) en fonction de temps (s)

3.1.3 Système d'acquisition

L'acquisition est faite grâce à une caméra intensifiée ICCD, c'est-à-dire une caméra CCD couplée à un intensificateur (*Intensified Relay Optics* - IRO). Le système optique est composé de deux objectifs dont un est inversé : un Nikkor 105 mm F/2.8 et un Nikkor 28 mm F/2.8.

La caméra utilisée est de type *Imager Intense* de marque LaVision® équipée d'un capteur CCD Sony® de 1376 (horizontal) × 1040 (vertical) pixels, correspondant à une surface de 8,9 mm × 6,7 mm. Afin d'augmenter le signal (généralement faible en MTV gazeuse), on active le binning 4×4 ce qui ramène la résolution de la caméra à 344×260 pixels. La taille d'un pixel avec le binning (qui regroupe alors 16 pixels du CCD) et le système optique utilisé est de 16.01 µm. La fréquence d'acquisition est de 10 Hz.

La caméra présente une bonne sensibilité à la lumière allant du bleu au vert avec un rendement quantique maximal d'environ 65 % à 500 nm (Figure 3.8). Le rendement quantique η_o est défini comme le rapport entre le nombre de photons collectés par la caméra et le nombre de photons incidents. Le choix d'un capteur ayant cette sensibilité est dicté par le spectre d'émission de l'acétone qui présente un maximum d'émission dans le bleu (Tran, Kochar et al. 2005).

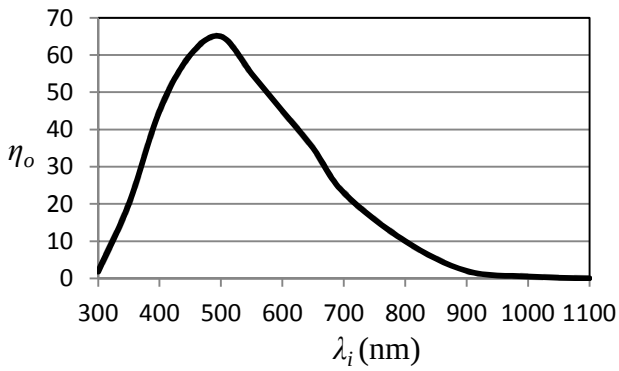

Figure 3.8 Rendement quantique η_o en fonction de la longueur d'onde λ_i de la lumière incidente[1].

Un intensificateur de lumière (IRO) type S20 de marque LaVision® est placé à l'amont de la caméra afin d'améliorer la qualité des images, notamment à basse pression où le niveau de signal de luminescence devient faible. L'IRO est composé (Figure 3.9) :

- d'une fenêtre d'entrée, perméable à la lumière dans un spectre allant de la fin des UV jusqu'au début des IR et équipée d'une photocathode sur sa surface interne. La photocathode a pour rôle de libérer des électrons suite à l'arrivée de photons.
- d'une plaque de microcanaux (*Micro Chanel Plate* - MCP), qui permet de multiplier les électrons transmis par la photocathode.
- d'un écran luminescent en phosphore qui permet de convertir les électrons issus de la MCP en photons, qui sont finalement transmis à la caméra.

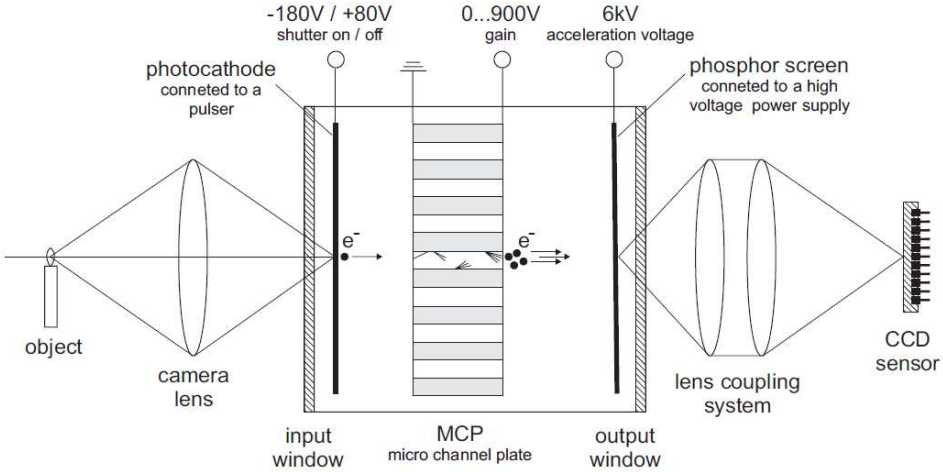

Figure 3.9 Schéma montrant une coupe dans la partie optique de la caméra intensifiée ICCD, ainsi que le chemin optique correspondant[1].

Il est à noter que l'utilisation d'un tel système nécessite un alignement quasi parfait entre la caméra et l'intensificateur, afin de ne pas engendrer des déformations sur les images enregistrées. Notons que les images d'une mire de calibration prises avec la camera intensifié

[1] Courbe donnée par le fournisseur du matériel optique LaVision®

ne montrent aucune déformation visible, ce qui est rassurant quant à l'alignement IRO-caméra.

Nous avons aussi vérifié que l'intensification n'engendre pas de défauts sur les images ; nous avons enregistré deux images d'un même objet, l'une avec l'intensificateur fonctionnant à gain nul, l'autre avec un gain de 5 %. Comme attendu, les images ainsi obtenues ont montré une différence de niveau de gris mais aucune différence mesurable sur la structure de l'image enregistrée (distribution spatiale des niveaux de gris équivalente dans les deux cas).

On définit à l'aide du gain *G* le degré d'intensification du niveau du signal par l'IRO, qui est directement lié au taux de multiplication d'électrons au niveau de la MCP (Figure 3.9). Ce paramètre, qu'on peut faire varier de 0 (sans intensification) à 1 (capacité maximale de l'IRO) avec un pas de 5 %, permet de régler l'intensification du niveau de signal. La sensibilité de l'IRO, définie comme l'intensité du signal enregistré divisée par le nombre de photoélectrons incidents, est donnée en fonction du gain imposé sur la Figure 3.10. Cette figure montre que le gain est un paramètre déterminant dans l'amplification du niveau de signal enregistré par la caméra. Le passage d'un gain de 40 % à un gain de 100 % permet d'amplifier le niveau de signal d'un facteur d'environ 50 000. Cette figure permet également de comparer des signaux obtenus avec des gains différents en les pondérant par les sensibilités correspondantes.

Ainsi, si l'on considère deux signaux S_1 et S_2 obtenus avec deux gains différents G_1 et G_2 à partir de la Figure 3.10 on peut déterminer les deux coefficients de sensibilité S_{b1} et S_{b2} correspondant à ces deux gains. Une comparaison entre les signaux S_1 et S_2 est alors possible en remplaçant S_2 par S_2' calculé selon l'expression :

$$S_2' = S_2 \frac{S_{b1}}{S_{b2}}. \tag{3.3}$$

Une alternative à l'utilisation de la Figure 3.10 consiste à effectuer une double mesure avec des gains différents (dans les mêmes conditions expérimentales), ce qui permet d'estimer le rapport des coefficients de sensibilité S_{b1} / S_{b2}, qui sera ensuite utilisé dans l'équation (3.3). Notons que des écarts importants au niveau du rapport de sensibilité $S_{b1} \backslash S_{b2}$ pouvant atteindre 40 % sont observés entre l'utilisation de la courbe (Figure 3.10) et la méthode de double mesure. Cette dernière méthode qui est plus directe est privilégiée dans le travail expérimental présenté dans cette thèse. Lors d'expériences où le gain change, la correction par la double mesure n'engendre pas de discontinuités dans l'évolution de la propriété étudiée. Par exemple, sur la courbe de décroissance de la phosphorescence avec la pression (Figure

3.22, mélange acétone-argon) le gain passe de 90 % à 100 % à $p = 19{,}8\,\text{kPa}$, comme on peut le constater aucune discontinuité n'est visible dans l'évolution de S_p.

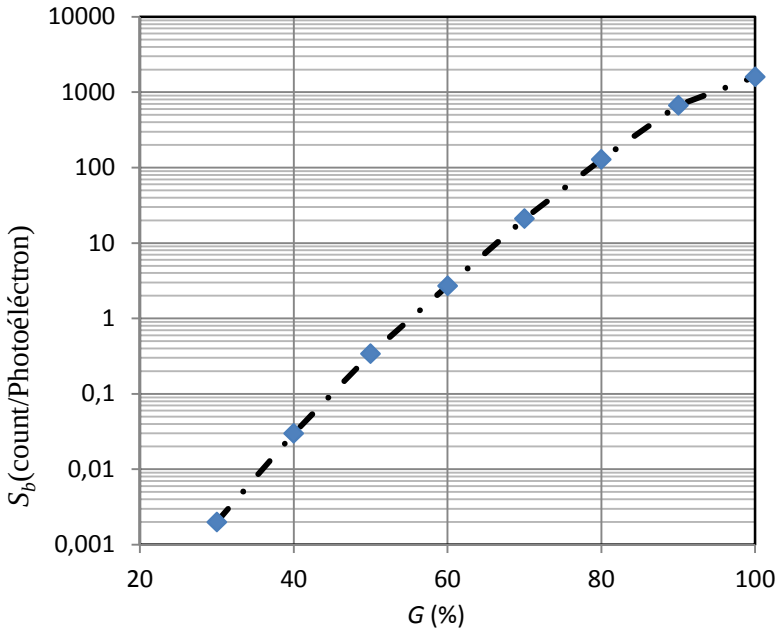

Figure 3.10 Sensibilité de l'IRO donnée en count (niveau de gris) par nombre de photoélectron incidents en fonction du gain imposé[2].

Un module externe appelé IRO-Controler est utilisé pour piloter l'IRO. La synchronisation entre le laser, l'IRO et la caméra est réalisée grâce au module externe appelé PTU (*Programmable Timing Unit*). Le logiciel Davis® du fournisseur LaVision® est utilisé pour piloter les différents éléments du banc (laser, IRO et caméra).

3.2 Acquisition du signal

3.2.1 Technique d'acquisition par intégration

Une technique spécifique d'acquisition du signal appelée « acquisition par intégration » est adoptée. Dans cette technique, la caméra capte tout signal reçu pendant une durée Δt_c assez longue (quelques secondes) pour permettre l'intégration du signal relatif à plusieurs pulses laser sur une seule image. Au cours de Δt_c et pour chaque pulse laser, le signal de luminescence est enregistré après une durée t suivant le pulse laser et durant un intervalle de temps Δt_g contrôlé par le durée d'activation de l'IRO. Une image intégrée contient alors le signal correspondant à $N_l = f_l\,\Delta t_c$ pulses laser. Dans chaque test, N_i images intégrées sont enregistrées et moyennées (Figure 3.11). Par conséquent, N_l est le nombre de pulses laser

[2] Courbe donnée par le fournisseur du matériel optique LaVision®

utilisés pour faire l'acquisition d'une seule image intégrée et N_i le nombre d'images intégrées moyennées pour obtenir un seul point de mesure. Au final, chaque point de mesure est donc le résultat du signal de luminescence associé à $K_l = N_i\ N_l$ pulses laser.

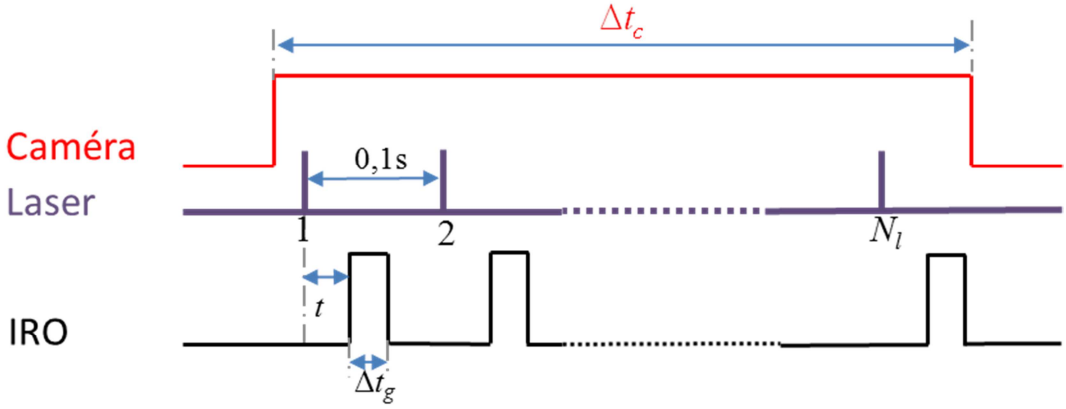

Figure 3.11 Timing de l'acquisition d'une image dans la technique d'acquisition par intégration.

Comparée à l'acquisition simple où pour chaque pulse laser on associe une seule image, cette technique d'acquisition permet d'améliorer la qualité des images. En effet, l'intégration de plusieurs signaux sur une seule image (la caméra étant « ouverte » durant une longue durée), permet de diminuer la fréquence d'ouverture et de fermeture de la caméra et ainsi réduire le bruit associé à la conversion du signal analogique en signal numérique lors de l'enregistrement de chaque image.

Dans la suite de ce travail, le niveau du signal de phosphorescence S_p, pour des conditions expérimentales données, est quantifié suivant la méthode montrée sur la Figure 3.12 :

1. On extrait la distribution du niveau de signal de phosphorescence $S_{p,xy}$ dans la région d'intérêt (RI) centrée sur la ligne phosphorescente (Figure 3.12 a).
2. Pour chaque valeur de y_0 dans la RI, on extrait le profil du niveau du signal le long de l'axe *x*, noté $S_{p,x}(y_0)$ (Figure 3.12 b) et on détermine la valeur du niveau maximale $S_{py}(y)$ correspondante (Figure 3.12 c).
3. Enfin, le niveau de signal de phosphorescence est obtenu en moyennant S_{py} le long de l'axe *y* :

$$S_p = \tfrac{1}{L_y} \int_{L_y} S_{py}\, dy\,, \tag{3.4}$$

où L_y représente la hauteur de la RI.

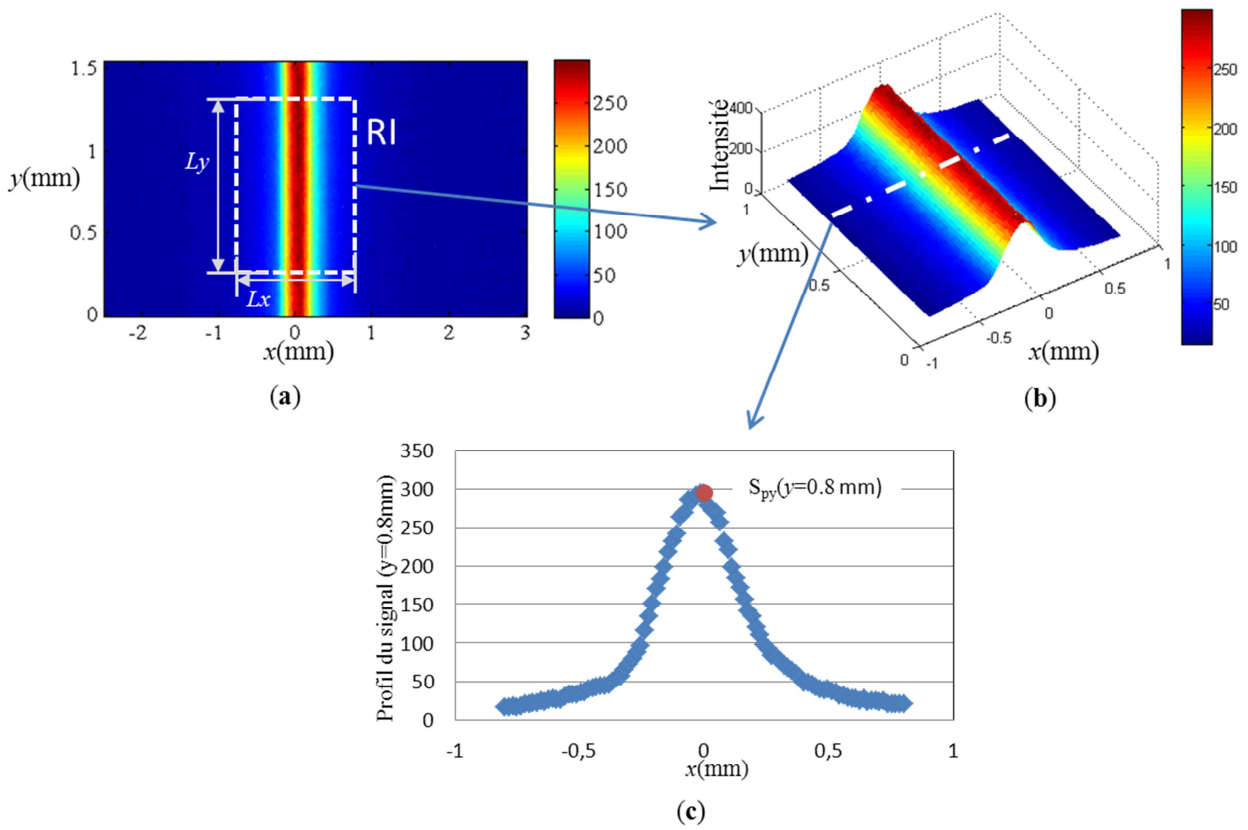

Figure 3.12 (a) Image brute de phosphorescence de l'acétone montrant la région d'intérêt RI.
(b) Distribution du niveau du signal de phosphorescence dans la RI.
(c) Profil du niveau du signal de phosphorescence en fonction de x pour $y = 0,8\,\text{mm}$.

La Figure 3.12 montre que le niveau du signal de phosphorescence S_{py} est uniforme le long de l'axe du laser. Cela montre que le marquage de molécules par le laser est uniforme le long de l'axe *y*. Cette observation à une grande importance dans la modélisation du transport de molécules marquées, qui sera présenté dans le chapitre 4.

3.2.2 Influence des paramètres d'acquisition sur la qualité du signal

Afin de tester l'influence des paramètres d'acquisition N_l et N_i sur la qualité du signal, nous avons fait des mesures de phosphorescence dans une chambre de visualisation contenant un gaz au repos. Le mélange gazeux pour cette étude était composé de dioxyde de carbone (CO_2) et d'acétone, avec une fraction molaire d'acétone $\chi_2 = 0,24$. Toutes les mesures que nous présentons dans ce paragraphe ont été faites avec la même composition de gaz (chambre de visualisation fermée durant le test).

Les molécules d'acétone exposées au rayonnement laser durant une longue durée peuvent se dissocier suivant un processus de photolyse. Ce processus, fortement dépendant de l'énergie du laser (Bryant, Donbar et al. 2000), se manifeste par une diminution linéaire du

niveau du signal de luminescence au cours du temps. Dans notre cas, l'influence de la photolyse de l'acétone apparaît négligeable, comme le montre la Figure 3.13, sur laquelle aucune diminution du niveau du signal de phosphorescence n'est constatée au cours de l'enchaînement des pulses laser. Les fluctuations du niveau du signal observées sur la Figure 3.13, qui n'excèdent pas 3 %, sont en partie dues à des fluctuations au niveau de l'énergie délivrée par le laser montrées sur la Figure 3.7.

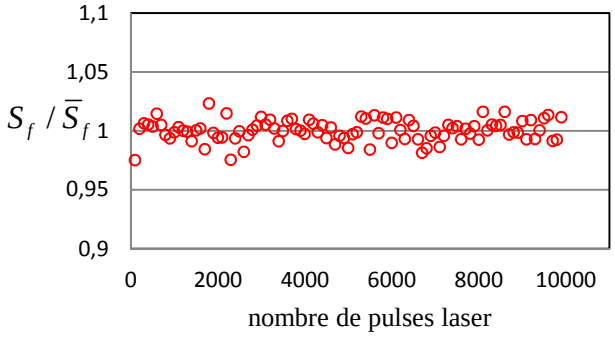

Figure 3.13 Niveau de signal de phosphorescence, normalisé par le signal de phosphorescence moyen, en fonction du nombre de pulses laser ; $t_g = 0,5\,\mu s, \Delta t_g = 0,5\,\mu s, N_l = 100, N_i = 100$ et χ_2 =0,24

Afin d'analyser la qualité du signal de luminescence et plus particulièrement de phosphorescence dans ce cas de figure, nous utilisons le rapport signal sur bruit $R_{S/b}$: ce paramètre décrivant la détectabilité du signal est défini par $R_{S/b} = S_p / bt$, où bt correspond au niveau de bruit obtenu en calculant la moyenne du niveau du signal suffisamment loin de la ligne phosphorescente.

L'évolution du rapport signal sur bruit en fonction de N_l et de N_i est illustrée par la Figure 3.14. Cette figure montre clairement que l'augmentation du nombre de pulses laser par image permet d'augmenter considérablement le rapport signal sur bruit. Ainsi, pour $N_i = 50$, le passage de N_l de 5 à 100 permet de multiplier $R_{S/b}$ par un facteur d'environ 17. Pour des valeurs modérées de N_l, l'augmentation du nombre d'images moyennées permet d'augmenter $R_{S/b}$. Par exemple, pour $N_l = 100$, le passage de $N_i = 50$ à $N_i = 200$ permet d'augmenter $R_{S/b}$ d'environ 30 %. En revanche, pour $N_l > 100$, un phénomène de saturation est observé : le rapport signal sur bruit reste constant malgré l'augmentation du nombre d'images moyennées N_i. D'autre partir de $N_l = 100$, $R_{S/b}$ diminue lorsque N_l augmente. Cela peut être expliqué par le fait que pour une exposition longue de la caméra ($\Delta t_c > 10\,s$) une saturation se produit au niveau de l'accumulation du signal de phosphorescence, tandis que le bruit thermique de la caméra continue à augmenter linéairement avec le temps, ce qui se

traduit par une diminution de $R_{S/b}$.

Dans ce cas test d'acquisition de phosphorescence au début de sa durée de vie à pression atmosphérique, le signal optimal (dans la plage investiguée) est obtenu pour $N_l = 100$ et $N_i = 100$. Notons que cet optimum peut évoluer en fonction des conditions expérimentales. Notamment à basse pression où le signal de luminescence est faible, l'optimum apparaît pour un nombre plus élevé d'image moyennées et de pulses laser par images.

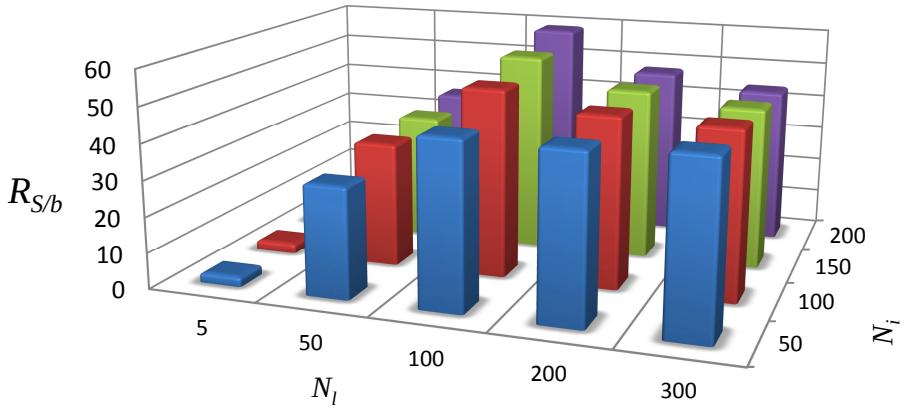

Figure 3.14 Rapport signal sur bruit $R_{S/b}$ en fonction du nombre de pulses laser par image N_l et du nombre d'images moyennées N_i.

3.3 Propriétés de luminescence des cétones

Cette partie est relative aux propriétés de fluorescence et de phosphorescence des cétones. Après quelques rappels théoriques sur les propriétés photo-physiques de l'acétone, nous décrivons la décroissance de la phosphorescence de l'acétone au cours du temps. Nous présentons ensuite une étude sur la sensibilité de la luminescence à la pression et à la présence des parois. Nous terminons cette partie par une étude comparative de la sensibilité de la luminescence de l'acétone et du diacétyle vis-à-vis de la pression.

3.3.1 Propriétés photo-physiques de l'acétone

L'acétone est largement utilisée comme traceur dans la technique PLIF (*Planar Laser Induced Fluorescence*) (Bryant, Donbar et al. 2000, Weinkauff, Trunk et al. 2015) pour ses propriétés de luminescence, sa pression de vapeur saturante relativement élevée (Figure 3.3) et sa toxicité limitée. La fluorescence de l'acétone a été largement étudiée dans la littérature qui fournit notamment des détails sur son évolution en fonction de l'énergie du laser, de la concentration, de la pression et de la température, autant en phase liquide (Tran, Kochar et al. 2005, Tran, Kochar et al. 2006) qu'en phase gazeuse (Thurber, Grisch et al. 1998, Thurber

and Hanson 1999, Bryant, Donbar et al. 2000, Braeuer, Beyrau et al. 2006). En revanche, peu d'études traitant de la phosphorescence sont publiées (Kaskan and Duncan 1950, Groh, Luckey et al. 1953, Charogiannis and Beyrau 2013).

Les molécules d'acétone (CH_3COCH_3) absorbent des photons dans la bande spectrale [225 nm-320 nm] (Koochesfahani and Nocera 2007), ce qui conduit à leur excitation caractérisée par le passage de l'état fondamental S_0 à un état excité S_1, se manifestant par une transition électronique où l'un des électrons de la molécule d'acétone quitte son orbitale pour accéder à une orbitale de plus haute énergie. La loi de conservation du spin, s'appliquant à cette transition, impose que l'électron conserve son spin *S*. Par conséquent, à l'état excité comme à l'état fondamental, la majorité des couples d'électrons sont appariés (spin opposés ½ ;-½). La multiplicité du spin résultante L_s, qui renseigne sur l'état quantique d'une molécule est donnée par :

$$L_s = 2|S| + 1 = 2\left|\tfrac{1}{2} - \tfrac{1}{2}\right| + 1 = 1. \tag{3.5}$$

La relation (3.5) montre que l'état excité S_1 est singulet ($L_s = 1$). Les molécules d'acétone absorbant les photons passent donc d'un niveau vibrationnel de l'état électronique fondamental S_0 à un niveau vibrationnel de l'état singulet excité S_1 (Figure 3.15).

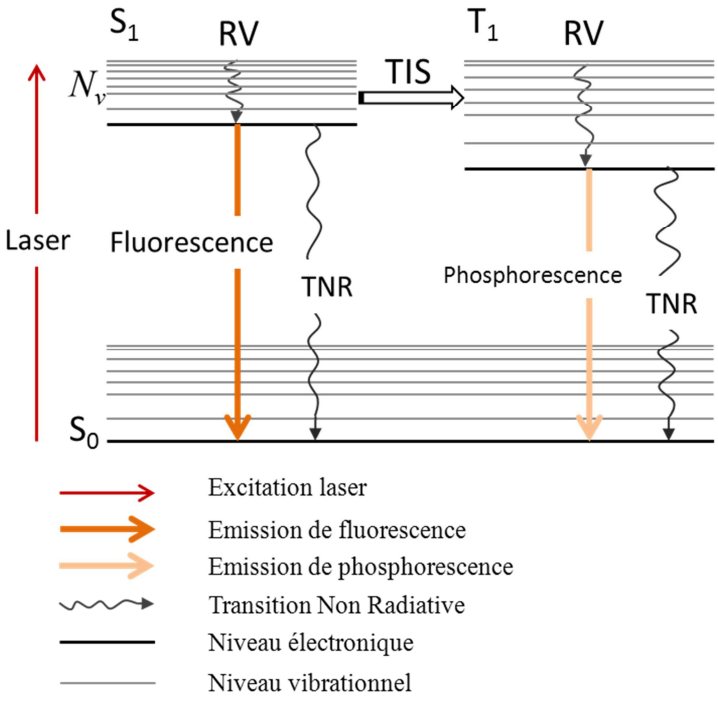

Figure 3.15 Diagramme de Jablonski simplifié pour les molécules d'acétone.

A partir de l'état S_1, les molécules se désexcitent et retournent à l'état fondamental S_0 en suivant soit un processus de transition non radiatif (TNR), soit un processus radiatif

(fluorescence ou phosphorescence) (Thurber and Hanson 1999). La probabilité de transition via l'un ou l'autre des processus dépend de la longueur d'onde d'excitation, de la composition du gaz et des conditions de pression et de température. Une molécule qui occupe un des niveaux vibrationnels N_v, de l'état excité S_1 peut :

(i) soit passer au niveau vibrationnel inférieur suivant un processus de relaxation vibrationnel RV. Ce processus est le résultat d'une collision non élastique où la molécule excitée passe à un niveau vibrationnel de plus faible énergie en cédant une partie de son énergie vibrationnelle à sa partenaire de collision, cette partenaire pouvant être également une molécule d'acétone ou bien une molécule du gaz porteur (He, Ar, N_2 ...).

(ii) soit revenir à l'état fondamental suivant une transition non radiative (TNR) qui inclut la conversion interne d'énergie et l'extinction par collisions (*collision quenching*).

(iii) soit revenir à l'état fondamental en suivant un processus radiatif de fluorescence.

(iv) ou finalement passer à l'état triplet excité T_1, suivant une transition inter-système (TIS).

Cette dernière transition à lieu lorsque l'électron change de spin. On se retrouve alors avec un couple d'électrons ayant un spin identique. Dans ce cas la multiplicité de spin devient $L_s = 2|S|+1 = 2\left|\frac{1}{2}+\frac{1}{2}\right|+1 = 2\left|-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}\right|+1 = 3$, ce qui correspond à un état triplet. A partir d'un niveau vibrationnel de l'état triplet, une molécule d'acétone peut revenir à l'état fondamental soit en suivant le processus non radiatif précédemment décrit, soit en suivant le processus radiatif de phosphorescence.

Notons que l'extinction par collision est causée principalement par des molécules d'oxygène, la présence de ces dernières atténuant la phosphorescence, de manière plus marquée encore que pour la fluorescence.

La fluorescence résulte donc d'une désexcitation de l'état excité singulet vers l'état fondamental qui est aussi singulet. Ce type de transition singulet-singulet est rapide et très probable, ce qui explique la forte intensité de la fluorescence et sa courte durée de vie (de l'ordre de quelques ns). En revanche, la phosphorescence résulte de la désexcitation de l'état excité triplet vers l'état fondamental, précédée par une transition inter-système TIS. Du fait que les transitions triplet-singulet sont peu probables et que le temps caractéristique des TIS est relativement long, la phosphorescence est caractérisée par une faible intensité et une longue durée de vie (de quelques ms) comparées à la fluorescence.

3.3.2 Modélisation de la fluorescence

En ce qui concerne la phosphorescence, il existe très peu de travaux théoriques (Edward O'Neall and Larson 1969) ayant pour but de fournir un modèle capable de prédire l'intensité et l'évolution du niveau du signal. Pour la fluorescence, un modèle de prédiction du niveau du signal en fonction de la température, de la pression, de la composition du gaz et de la longueur d'onde d'excitation a été introduit par Thurber et Hanson (Thurber and Hanson 1999). Plus tard, ce modèle a été amélioré (Braeuer, Beyrau et al. 2006) pour mieux prédire la fluorescence à haute pression. Dans ce modèle, le niveau du signal de fluorescence S_f par unité de surface est donné par :

$$S_f = \eta_o E_L \sigma_{abs}(\lambda_o, T) n_2 \, \Delta y \, \phi_f(\lambda_o, T, p), \tag{3.6}$$

où η_o est le rendement quantique du système d'acquisition (qui représente le rapport du nombre de photons collectés sur le nombre de photons incidents), E_L est l'énergie du rayonnement laser incident par unité de surface (fluence du laser), n_2 est la densité moléculaire d'acétone et Δy est la longueur du chemin d'absorption (distance parcourue par le faisceau laser dans le gaz étudié). La section d'absorption $\sigma_{abs}(\lambda_o, T)$ d'une molécule traceuse (d'acétone) et le rendement de la fluorescence $\phi_f(\lambda_o, T, p)$ dépendent de la longueur d'onde d'excitation λ_o et de la température T ; de plus ϕ_f dépend de la pression totale p. Le rendement quantique de fluorescence φ_f est donné par (Thurber and Hanson 1999) :

$$\begin{aligned}\varphi_f = & \frac{K_f}{K_f + K_{coll} + K_{NR,1}} \\ & + \sum_{i=2}^{N_v-1} \left(\frac{K_f}{K_f + K_{coll} + K_{NR,i}} \prod_{j=1}^{i-1} \left(\frac{K_{coll}}{K_f + K_{coll} + K_{NR,j}} \right) \right). \\ & + \frac{K_f}{K_f + K_{NR,N_v}} \prod_{j=1}^{N_v-1} \left(\frac{K_{coll}}{K_f + K_{coll} + K_{NR,j}} \right)\end{aligned} \tag{3.7}$$

Dans l'équation (3.7), qui décrit la désexcitation de l'acétone montrée sur le diagramme de Jablonski (Figure 3.15), K_f est la vitesse de désexcitation radiative par fluorescence, K_{coll} la vitesse de relaxation vibrationnelle et $K_{NR,i}$ la vitesse de transition non-radiative (TNR) à partir du niveau vibrationnel i de l'état excité S_1. Il est à noter que les « vitesses » s'expriment en fait en s^{-1}. Les TNR comprennent la conversion interne d'énergie, l'extinction par collision et les transitions inter-systèmes (TIS) ; ces dernières, qui peuvent donner lieu à la

phosphorescence (Figure 3.15), sont considérées ici comme des transitions non radiatives car elles ne contribuent pas à la fluorescence.

Le nombre total N_v de niveaux vibrationnels pour une molécule est donné en fonction du nombre d'atomes N_{atome} la composant par :

$$N_v = 3N_{atome} - 6 . \tag{3.8}$$

L'acétone possède ainsi $N_v = 24$ niveaux d'énergie vibrationnels. Dans le modèle (Thurber and Hanson 1999), K_f est considéré comme constant ($K_f = 5\times10^8 \text{s}^{-1}$) et K_{coll} est donnée, dans la limite où la fraction d'acétone est négligeable, par

$$K_{coll} = n_1 Z_{coll} , \tag{3.9}$$

où n_1 est la densité moléculaire du gaz porteur et Z_{coll} est la fréquence de collision de Lennard–Jones donnée entre l'acétone (indice $_2$) et le gaz porteur (indice $_1$) par l'équation

$$Z_{coll} = \pi\sigma_{1,2}\sqrt{\frac{8RT}{\pi M_{1,2}}}Q_{1,2} . \tag{3.10}$$

Dans l'équation (3.10), $\sigma_{1,2}$ est le diamètre de Lennard–Jones moyen et $M_{1,2}$ est la masse molaire réduite du mélange, donnée en fonction de la masse molaire d'acétone et de celle du gaz porteur, notées respectivement M_1 et M_2, par :

$$M_{1,2} = \frac{M_1 M_2}{M_1 + M_2} . \tag{3.11}$$

La valeur approchée de l'intégrale de collision $Q_{1,2}$ est donnée par

$$Q_{1,2} = \left[0,636 + 0,567 \log\left(\frac{k_b T}{\sqrt{\varepsilon_1 \varepsilon_2}} \right) \right]^{-1} , \tag{3.12}$$

où ε_2 et ε_1 représentent respectivement les potentiels de Lennard–Jones de l'acétone et du gaz porteur (Poling, Prausnitz et al. 2000).

La vitesse de transition non-radiative $K_{NR,i}$ est donnée par la relation empirique suivante (Thurber, Grisch et al. 1998) :

$$K_{NR,i} = a_1 + a_2 \exp\left(\frac{E_i}{a_3}\right) + a_4 \exp\left(\frac{E_i}{a_5}\right), \tag{3.13}$$

où E_i est l'énergie du niveau vibrationnel i, $a_1 = -3,82\times10^9 \text{ s}^{-1}$, $a_2 = 8,82\times10^5 \text{ s}^{-1}$, $a_3 = 1650 \text{ cm}^{-1}$, $a_4 = 4,08\times10^9 \text{ s}^{-1}$ et $a_5 = 773000 \text{ cm}^{-1}$. Ici l'énergie E_i est donnée en cm^{-1} car

normalisée par le produit $\hbar c$ de la constante de Planck et la célérité de la lumière.

La différence d'énergie entre deux niveaux vibrationnels successifs i et $i-1$ dans la cascade vibrationnelle, qui correspond à l'énergie $\Delta E_{coll,i}$ cédée par une molécule d'acétone lors d'une collision avec une molécule du gaz porteur, est donnée par :

$$E_i - E_{i-1} = \Delta E_{coll,i} = \alpha_E \left[E_i - \Delta E_{th} \right], \tag{3.14}$$

où ΔE_{th} est l'énergie du niveau vibrationnel initial (*initial thermal energy*) dépendant de la température (Shimanouchi 1972) et α_E le coefficient de proportionnalité du transfert d'énergie qui dépend de la composition du gaz et qui est déterminé expérimentalement (approximation des données expérimentales par la méthode des moindres carrés). Les valeurs de α_E pour quelques gaz sont données dans le Tableau 3.1, la valeur de α_E pour l'argon étant obtenue par un fit des données expérimentales montrées sur la Figure 3.19.

Gaz	α_E	Référence
He	0,0098	(Thurber and Hanson 1999)
Ar	0,015	Présente thèse
N_2	0,021	(Thurber and Hanson 1999)
CH_4	0,030	(Thurber and Hanson 1999)
$(CH_3)_2CO$	0,080	(Thurber and Hanson 1999)
CO_2	0,022	(Thurber and Hanson 1999) (Braeuer, Beyrau et al. 2006)
O_2	0,045	(Braeuer, Beyrau et al. 2006) (Jon and Ronald 2003)

Tableau 3.1 : Coefficient de proportionnalité du transfert d'énergie de l'acétone pour différents gaz porteurs.

Un exemple montrant la dépendance du rendement quantique de fluorescence vis-à-vis de la pression (équation (3.7)) est montré sur la Figure 3.16. Cette figure montre une décroissance de φ_f avec la pression.

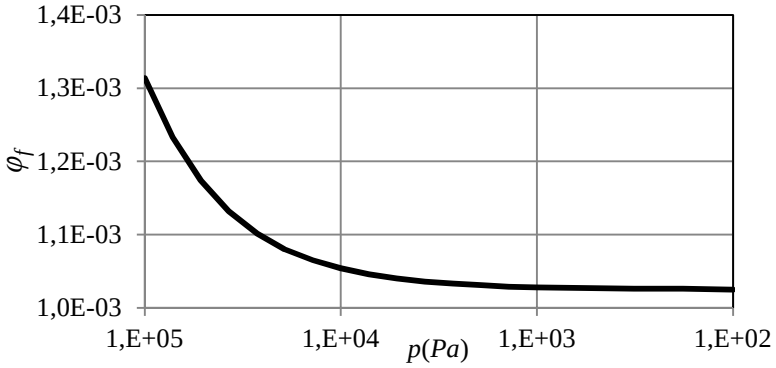

Figure 3.16 Rendement quantique de fluorescence en fonction de la pression pour un mélange acétone-argon. $\chi_2 \approx 0{,}1$, $T = 273\,\mathrm{K}$ et $\lambda_0 = 266\,\mathrm{nm}$.

3.3.3 Décroissance du niveau du signal de phosphorescence au cours du temps

Le banc expérimental de MTV précédemment décrit a été utilisé pour mesurer le signal de phosphorescence. Afin d'étudier les propriétés de luminescence du gaz au repos, on utilise une chambre de visualisation fermée (Figure 3.18). Deux mélanges gazeux ont ainsi été étudiés : un mélange acétone-argon avec une fraction molaire d'acétone de 0,098 et un mélange acétone-azote avec une fraction molaire d'acétone de 0,095. Les acquisitions ont été réalisées à des conditions de température et de pression constantes, proches des conditions ambiantes.

Pour les deux mélanges, le niveau du signal de phosphorescence a été enregistré à des instants t (définis après le pulse laser) compris entre 0,5 et $1200\,\mu\text{s}$, la durée d'exposition de l'IRO ayant été fixée à $\Delta t_g = 0{,}5\,\mu\text{s}$. Deux gains de l'IRO ont été utilisés (90 % et 100 %) et la comparaison des signaux obtenus avec ces deux gains a été réalisée grâce à une double mesure, décrite dans la partie 3.1.3. Le temps d'exposition du CCD de la caméra a été fixé à $\Delta t_c = 10\text{ s}$, ce qui permet d'enregistrer le signal relatif à $N_l = 100$ pulses laser. Chaque point de mesure est obtenu en moyennant $N_i = 50$ images ; par conséquent le nombre de pulses laser utilisés pour obtenir un point de mesure est $K_l = 100 \times 50 = 5000$.

Le niveau du signal de phosphorescence S_p ainsi obtenu, normalisé par sa valeur S_{p0} mesurée à $t_g = 0{,}5\,\mu\text{s}$, est montré sur la Figure 3.17. Les résultats montrent que le niveau du signal de phosphorescence décroit d'abord rapidement entre 0 et 100 µs. Une décroissance plus lente est ensuite observée jusqu'à 1200 µs. Aucun signal exploitable ne peut être enregistré avec le matériel précédemment décrit au-delà de 1200 µs.

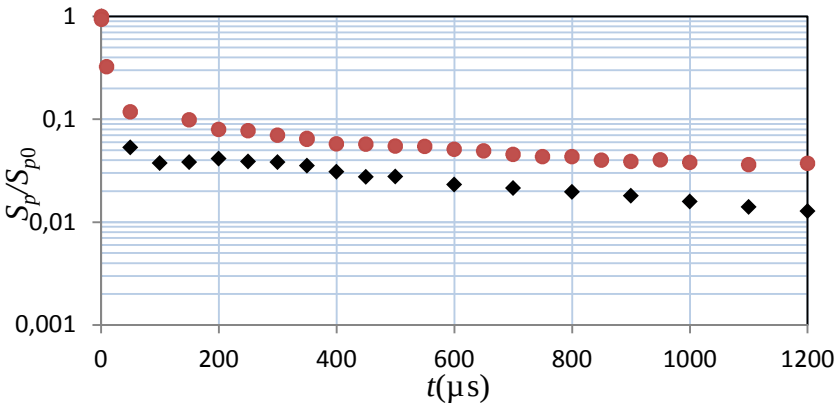

Figure 3.17 Décroissance du niveau du signal de phosphorescence de l'acétone au cours du temps. (●) Acétone-argon avec $T = 294\,\text{K}$, $p = 0{,}99 \times 10^5\,\text{Pa}$ et $\chi_2 = 0{,}098$ (♦) Acétone-azote avec $T = 294\,\text{K}$, $p = 1{,}01 \times 10^5\,\text{Pa}$ et $\chi_2 = 0{,}095$

Partant d'un postulat que la phosphorescence est une émission qui obéit à la loi de

Poisson, c'est-à-dire que signal de phosphorescence, décroit suivant la relation (Basu, Naguib et al. 2010) :

$$\frac{dS_p(t)}{dt} = -\frac{1}{\tau_p} S_p(t), \tag{3.15}$$

la décroissance du niveau du signal de phosphorescence est alors exponentielle :

$$S_p(t) = S_{p0}\, \mathrm{e}^{\frac{-1}{\tau_p}t}, \tag{3.16}$$

avec un taux de décroissance τ_p communément appelé « durée de vie de décroissance », cette durée de vie correspondant à une baisse du niveau de signal de $1/e$ (37 %) par rapport à son niveau initial. A basse pression où la fréquence de collisions intermoléculaires est faible, de précédentes observations expérimentales (Kaskan and Duncan 1950, Groh, Luckey et al. 1953) ont montré une décroissance exponentielle avec une durée de vie de décroissance τ_p=200 µs.

Dans notre cas (à pression atmosphérique), les deux mélanges étudiés montrent une décroissance similaire au cours du temps (Figure 3.17), qui ne suit pas une évolution exponentielle. D'autres auteurs (Charogiannis and Beyrau 2013) ont également observé une décroissance non exponentielle de la phosphorescence au cours du temps, à la pression atmosphérique. Dans leurs travaux, Charogiannis et Beyrau ont mesuré le niveau du signal de phosphorescence d'acétone mélangé à l'azote, de $t = 0$ à $t = 3\mu\mathrm{s}$, sous une excitation laser à 308 nm. Dans des conditions ambiantes où les collisions moléculaires sont fréquentes, les molécules subissent des relaxations vibrationnelles au cours du temps les ramenant à des niveaux vibrationnels de plus faibles énergie. Cela se traduit par l'émission de phosphorescence suite à des désexcitations à partir des différents niveaux vibrationnels constituant l'état T_1 (Figure 3.15). De plus, l'émission se fait à partir de niveaux vibrationnels d'énergie d'autant plus faible que l'on avance dans le temps. On s'attend donc à une décroissance de la phosphorescence instationnaire, suivant une série de fonctions exponentielles, où chacune de ces fonctions correspond au niveau vibrationnel dans T_1 à partir duquel la molécule se désexcite (Charogiannis and Beyrau 2013).

Notons que l'hypothèse de la baisse avec le temps de l'énergie du niveau vibrationnel à partir duquel la phosphorescence est émise est en accord avec les observations expérimentales (Tran, Kochar et al. 2005) réalisés sur la phosphorescence de l'acétone en phase liquide. Les résultats montrent que le spectre de phosphorescence se décale vers de plus longues longueurs d'onde (i.e. vers de plus faibles énergies) à mesure que le délai d'acquisition augmente.

3.3.4 Dépendance de la luminescence de l'acétone vis-à-vis de la pression

Les propriétés de fluorescence et de phosphorescence de l'acétone mélangée à l'argon ou à l'azote sont étudiées dans la plage de pression [10^2 - 10^5 Pa] à la température ambiante. Nous présentons deux types d'expériences : dans un premier temps, seule la pression partielle du gaz porteur (argon) varie, tandis que la pression partielle du traceur (acétone) est maintenue constante. Dans un deuxième temps, c'est la pression totale du mélange (acétone-argon ou acétone-azote) qui est modifiée, en maintenant la concentration d'acétone constante.

3.3.4.1 Influence de la pression partielle d'argon sur la luminescence

Afin d'estimer l'influence de la pression environnante sur la luminescence, les signaux de fluorescence et de phosphorescence ont été mesurés en faisant varier la pression partielle d'argon de 8,3 à 97,9 kPa, tandis que la pression partielle d'acétone a été maintenue constante, égale à 2,16 kPa.

La génération du mélange gazeux dans le circuit de gaz a été faite en trois étapes (Figure 3.18):

(1) Dans la première étape, on génère le vide dans le circuit avec les vannes V2 fermée, V3 ouverte et V1 légèrement ouverte avec la pompe à vide en marche.

(2) Dans la deuxième étape, la chambre de visualisation étant sous vide, on ouvre la vanne V1, ce qui permet à la vapeur d'acétone de passer dans la chambre de visualisation. Afin de s'assurer de la pureté de la vapeur d'acétone ainsi générée, on répète les deux premières étapes plusieurs fois : génération du vide dans la chambre de visualisation, remplissage en acétone vapeur, puis vidange.

(3) Dans la troisième étape, on abaisse la pression d'acétone dans la chambre de visualisation jusqu'à la pression désirée ($\sim$2 kPa dans la présente expérience) et on augmente la pression partielle d'argon en ouvrant la vanne V2 jusqu'à atteindre la pression totale désirée.

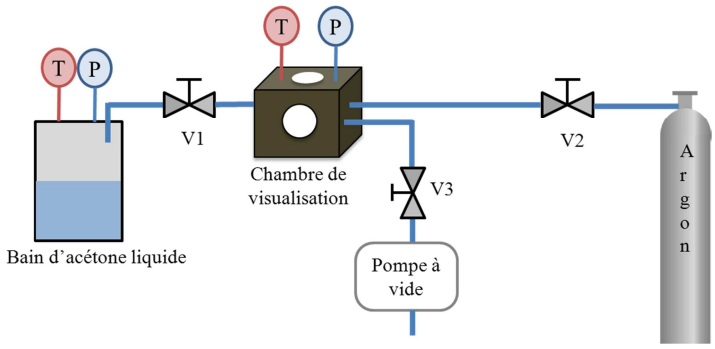

Figure 3.18 Circuit de gaz : variation de la pression partielle d'argon.

Lors de la mesure de fluorescence, le gain de l'IRO est fixé à 50 %. La durée d'exposition

de l'IRO est fixée à la plus petite valeur possible, soit $\Delta t_g = 100\,\text{ns}$. Le délai d'ouverture de l'IRO est choisi de manière à limiter la superposition du signal de phosphorescence au signal de fluorescence, lors de l'acquisition de ce dernier, tout en enregistrant l'intégralité du signal de fluorescence. Par conséquent, l'IRO est ouvert 90 ns avant le pulse laser et le signal de fluorescence est donc collecté entre $t = 0$ et $t = 10$ ns. Cette valeur $t = 10$ ns correspond à la somme de la durée de vie de la fluorescence et de la durée d'un pulse laser, chacune étant de 5ns. Pour la mesure de la phosphorescence, le gain de l'IRO est fixé à 95 %, le début d'ouverture de l'IRO à $t = 100\,\text{ns}$ et le temps d'exposition à $\Delta t_g = 500\,\text{ns}$.

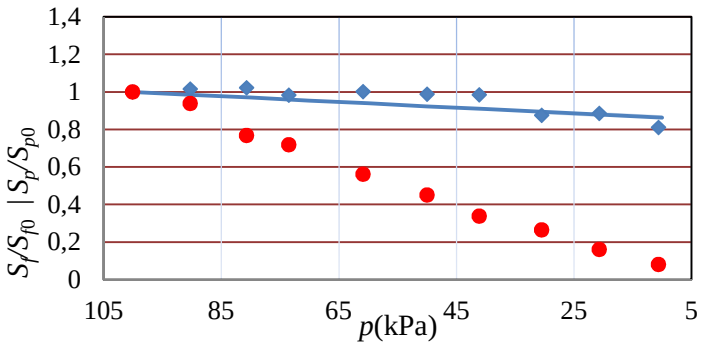

Figure 3.19 Niveau du signal de fluorescence (♦) et de phosphorescence (●) normalisés par leurs valeurs à la pression atmosphérique en fonction de la pression totale dans la chambre, à pression partielle d'acétone constante.
(—) prédictions du modèle de Thurber et Hanson (Eq. (3.6)) ; mélange acétone argon avec $T = 294$ K et $p_{acétone} = 2{,}16\,\text{kPa}$.

Chaque point de mesure représenté sur la Figure 3.19 est le résultat de $K_l = 100 \times 10 = 1000$ pulses laser donnant lieu à 10 images moyennées, dont chacune intègre le signal associé à 100 pulses laser. A pression atmosphérique, le signal de fluorescence est environ 600 fois plus intense que celui de phosphorescence et les deux signaux montrent une diminution avec la pression. Le niveau du signal de phosphorescence diminue quasi linéairement, environ cinq fois plus vite que le niveau du signal de fluorescence. Ce dernier suit les prédictions du modèle de Thurber et Hanson (Thurber and Hanson 1999) avec quelques fluctuations probablement dues aux incertitudes expérimentales. Dans ce modèle, la diminution de la fluorescence avec la pression s'explique par le fait que la fréquence des collisions entre l'acétone et le gaz porteur diminue avec la pression, ce qui implique une diminution des relaxations vibrationnelles de vitesse K_{coll} (Eq. (3.9)), se traduisant par une diminution du rendement quantique de fluorescence (Eq. (3.7)).

Pour la phosphorescence, qui montre une diminution plus sévère avec la pression, la diminution des relaxations vibrationnelles présente un double impact (Figure 3.15) : d'une

part, elle contribue à diminuer la probabilité de transition inter-système de S_1 à T_1 et d'autre part elle diminue la fraction de molécules se désexcitant de T_1 par voie de phosphorescence, d'une manière similaire à ce que nous venons de voir pour la fluorescence. Ce double impact se traduit par une dépendance plus marquée vis-à-vis de la pression.

3.3.4.2 Influence de la pression totale sur la luminescence

Dans les expériences de MTV, c'est généralement la pression totale qui est diminuée en conservant une concentration constante d'acétone, afin d'atteindre le niveau de raréfaction désirée. Cela nous a conduits à étudier les propriétés de luminescence de l'acétone dans deux mélanges (acétone-argon et acétone-azote à concentration fixée), lorsque la pression totale baisse de 100 à 0,1 kPa.

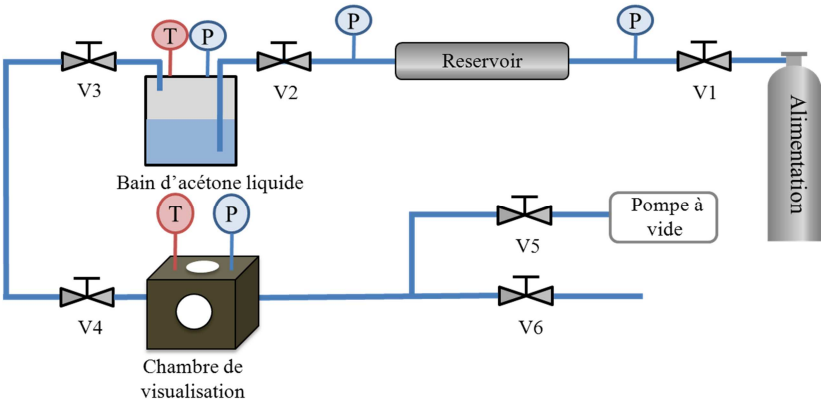

Figure 3.20 Circuit de gaz : variation de la pression totale dans la chambre de visualisation, à concentration d'acétone constante.

Le circuit de gaz utilisé pour cette expérience est montré sur la Figure 3.20. Le mélange gazeux est généré comme suit : dans une première étape, la chambre de visualisation est mise sous vide en ouvrant la vanne V5, en fermant les vannes V4 et V6 et en mettant la pompe à vide en marche. Ensuite, un écoulement du mélange acétone-argon (respectivement acétone-azote) est généré à travers la chambre de visualisation, toutes les vannes étant ouvertes sauf la vanne V5. Afin de limiter la consommation en gaz, la pression de l'écoulement est fixée à une valeur légèrement supérieure à celle de la pression atmosphérique (□102 kPa). Finalement, toutes les vannes sont fermées et la pression dans la chambre de visualisation est diminuée graduellement en agissant sur la vanne V5 pour atteindre les différentes pressions investiguées. Pour assurer une stabilité thermique au cours de la mesure, l'acquisition est lancée 30 minutes après avoir atteint la pression désirée. Les signaux de fluorescence et de phosphorescence sont enregistrés dans les mêmes conditions expérimentales, avec les paramètres d'acquisition regroupés dans le Tableau 3.2.

Propriété	Fluorescence	Phosphorescence
Gain *G* (%)	55	85; 90; 100
Début d'ouverture de l'IRO t_g (ns)	-90	100
Durée d'exposition Δt_g (ns)	100	500
Nombre de pulses par image N_l	100	100
Nombre d'images moyennées N_i	10	50

Tableau 3.2 Paramètres d'acquisition

Pour les deux mélanges étudiés, le niveau du signal de fluorescence diminue avec la pression, suivant une loi de puissance unique : $S_f \propto p^{0,853}$ (ligne pointillée sur la Figure 3.21). Le niveau du signal de fluorescence à la plus basse pression totale investiguée (0,14 kPa pour le mélange acétone-argon) est environ 200 fois plus faible qu'à la pression atmosphérique. Cependant, le signal est clairement détectable et parfaitement exploitable pour des expériences en MTV.

Les mesures expérimentales sont comparées à un modèle simple supposant que le niveau du signal de fluorescence est proportionnel à la densité moléculaire d'acétone, donc proportionnel à la pression totale pour une concentration d'acétone fixée. La comparaison montre que le niveau du signal de fluorescence diminue moins vite que la pression totale, donc que le niveau du signal de fluorescence par molécule d'acétone augmente. Les prédictions du modèle de Thurber et Hanson (Thurber and Hanson 1999) ne s'accordent pas avec les mesures expérimentales dans le cas présent. On peut noter que ce modèle ne prend pas en compte les interactions entre les molécules d'acétone. Contrairement à l'expérience précédente (partie 3.3.4.1), ici, la densité moléculaire d'acétone a été diminuée, ce qui se traduit par une diminution de la fréquence de collision entre les molécules d'acétone. Dans le cas où une auto-extinction existe entre les molécules d'acétone excitées à l'état S_1, la diminution de la fréquence de collision entre les molécules d'acétone se traduirait par une augmentation de la fluorescence par molécule d'acétone. Ce point nécessite une analyse plus approfondie.

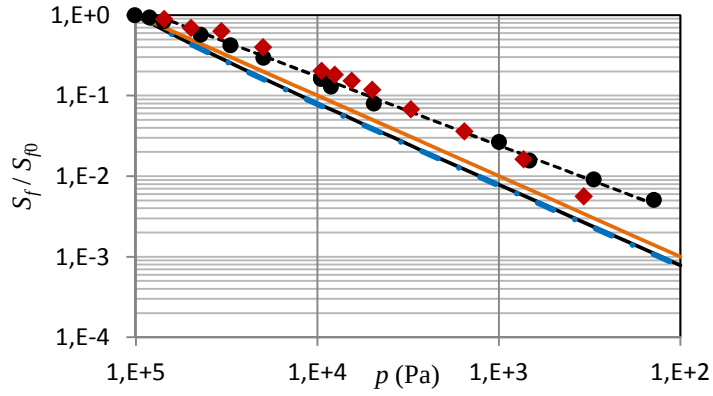

Figure 3.21 Niveau du signal de fluorescence de l'acétone normalisé par sa valeur à pression atmosphérique en fonction de la pression totale, pour une concentration constante d'acétone : points expérimentaux acétone-argon (●) et acétone-azote (♦). Prédictions du modèle de Thurber et Hanson pour le mélange acétone-argon (—), pour le mélange acétone-azote (—▪). Modèle simple supposant la fluorescence proportionnelle à la pression (—), approximation par une loi de puissance (---). $T = 294$ K et $\chi_2 = 0{,}1$

Le niveau S_p* du signal de phosphorescence par molécule d'acétone, normalisé par sa valeur à pression atmosphérique $S_{p0}*$ est représenté sur la Figure 3.22. Les résultats montrent que la phosphorescence de l'acétone diminue avec la pression. La comparaison d'une part entre les données obtenues dans cette expérience où la pression partielle d'acétone a été modifiée et d'autre part avec les données précédentes pour lesquelles la pression partielle d'acétone était fixée (partie 3.3.4.1), montre une diminution équivalente du niveau du signal avec la pression. Contrairement à la fluorescence, la phosphorescence se montre ainsi peu sensible à la pression partielle d'acétone, cela pouvant être expliqué par l'absence d'auto-extinction des molécules excités à l'état T_1. On note aussi que la décroissance de la luminescence d'acétone avec la pression est peu sensible au gaz porteur, dans la limite des gaz étudiés.

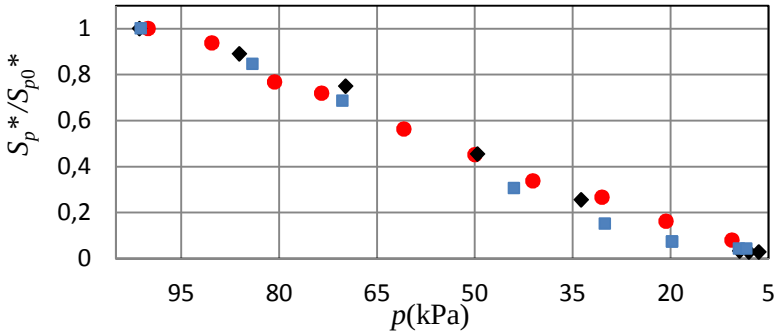

Figure 3.22 : Niveau du signal de phosphorescence par molécule d'acétone, normalisé par sa valeur à pression atmosphérique, en fonction de la pression totale dans la chambre de visualisation: (♦) mélange acétone-azote, $\chi_2 \approx 0{,}1$; (▪) mélange acétone-argon, $\chi_2 \approx 0{,}1$; (●) mélange acétone-argon, $p_{acétone} = 2{,}16$ kPa , (données extraites de la Figure 3.19). $T = 294$ K .

Aucun signal exploitable ne peut être collecté en dessous de 6 kPa avec les paramètres

précédemment utilisés. L'augmentation du gain et du temps d'exposition de l'IRO à 100 % et 1000 ns respectivement, ainsi que l'augmentation de la concentration en acétone à 24 % et du nombre d'images moyennés à 100, permettent néanmoins d'obtenir un signal de phosphorescence exploitable à 2,2 kPa (Figure 3.23).

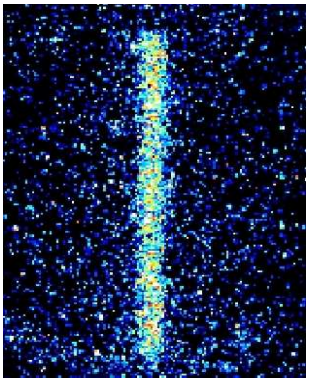

Figure 3.23 Image brute de phosphorescence à $t_g = 50\,\mu\text{s}$, avec $T = 294$ K, $p = 2,2$ kPa, $N_l = 100$, $N_i = 100$ et $\chi_2 \approx 0,24$.

3.3.4.3 Décroissance du niveau du signal de phosphorescence du diacétyle avec la pression

Dans cette partie, nous comparons la sensibilité de phosphorescence de l'acétone et du diacétyle ($C_4H_6O_2$) vis-à-vis de la pression. Le niveau du signal de phosphorescence des deux cétones a été enregistré dans des conditions expérimentales très proches ($\chi_2 \approx 0,1$; $T = 294$ K) et avec les mêmes paramètres d'acquisition ($G = 100\,\%$, $t_g = 100$ ns, $\Delta t_g = 500$ ns, $N_i = 10$ et $N_l = 100$).

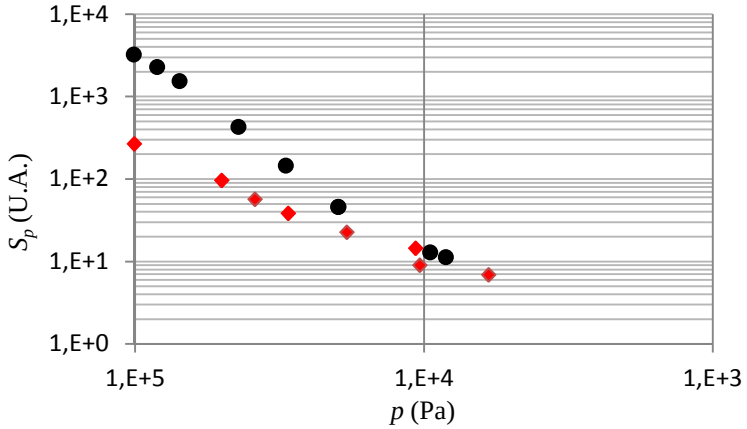

Figure 3.24 : Niveau du signal de phosphorescence en fonction de la pression ; (●) acétone-argon ; (♦) diacétyle-argon.

Les niveaux des signaux de phosphorescence obtenus sont montrés sur la Figure 3.24 en unités arbitraires (U.A.) identiques dans les deux cas. A des pressions proches de la pression atmosphérique, la phosphorescence du diacétyle est environ 10 fois moins intense que celle de

l'acétone. Le niveau du signal de phosphorescence du diacétyle diminue beaucoup moins vite avec la pression que celui de l'acétone. Aux plus basses pressions investiguées ($\square 6\,\mathrm{kPa}$), l'intensité de la phosphorescence de l'acétone et celle du diacétyle sont assez proches et sont du même ordre de grandeur que l'intensité du bruit.

3.3.4.4 Influence de la paroi sur la phosphorescence

Comme la mesure locale de vitesse près des parois à une importance capitale dans l'analyse du régime glissant, nous nous intéressons dans cette partie à l'évolution temporelle du niveau du signal de phosphorescence près des parois.

Pour cela, une plaque de dimensions $10\times30\,\mathrm{mm}^2$ en Suprasil® (même matériau que les lentilles du canal) a été introduite dans la chambre de visualisation et placée perpendiculairement au faisceau laser (Figure 3.25). Le faisceau traverse cette plaque, ce qui permet de collecter le signal au-dessus et en dessous de celle-ci. Afin d'obtenir une vue assez large couvrant toute la chambre de visualisation, l'objectif Micro Nikkor 28 mm a été enlevé et l'image ainsi obtenue couvre une zone de 31,2×23,2 mm^2 sur laquelle on définit une région d'intérêt de 3×14 mm^2.

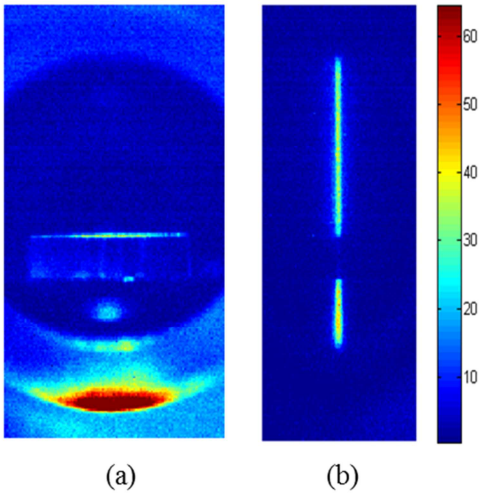

Figure 3.25 (a) image brute de la plaque en Suprasil® dans la chambre de visualisation.
(b) signal de phosphorescence à $t_g = 50\,\mu\mathrm{s}$.

Le niveau du signal de phosphorescence en unité arbitraire (U.A.), enregistré à différents instants après le pulse laser (10, 20, 30, et 50 µs), est montré sur la Figure 3.26. La forte atténuation du signal observée entre y=8,7 mm et y=11,2 mm correspond à la position de la plaque. Comme attendu, le niveau du signal de phosphorescence diminue au cours du temps. Cependant, la région proche des parois de la plaque ne montre pas une diminution sensiblement plus importante que celle observée loin des parois. Cette expérience montre que

les interactions avec la paroi des molécules excitées à l'état T_1 n'influent pas significativement sur leur niveau de phosphorescence, ce qui est encourageant pour l'analyse d'écoulement en proche paroi.

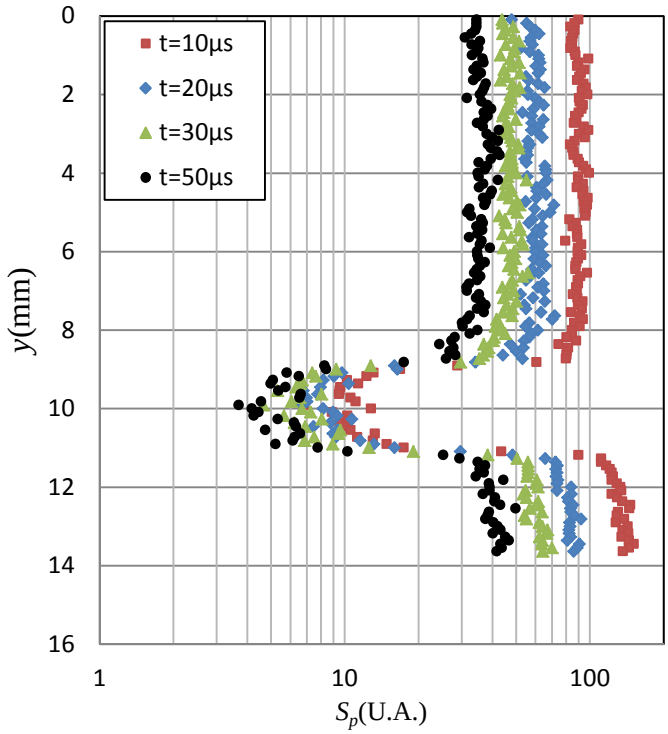

Figure 3.26 Niveau du signal de phosphorescence de l'acétone au-dessus et en dessous de la plaque en Suprasil®, cette dernière étant située à 8,7 mm < y < 11,2 mm.

3.4 Conclusions

Nous avons vu dans ce chapitre les détails du banc de MTV composé de : (i) un circuit de gaz permettant de générer des écoulements de mélange gaz traceur - gaz porteur, (ii) un laser UV capable d'exciter les molécules du gaz traceur, (iii) une caméra intensifiée qui permet d'enregistrer la luminescence émise par le gaz traceur.

Ce banc d'essais a été utilisé pour étudier les propriétés de luminescence de l'acétone (gaz traceur). Les résultats ont montré qu'à pression atmosphérique la phosphorescence de l'acétone présente une décroissance au cours du temps et qu'au-delà de 1,2 ms aucun signal exploitable ne peut plus être enregistré. Pour les temps plus courts, les images obtenues peuvent être utilisées pour des mesures par MTV. Cela ouvre la possibilité d'étudier avec la MTV des écoulements relativement lents. L'enregistrement des positions de molécules marquées 1 ms après le marquage par le faisceau laser, avec une caméra de résolution spatiale de 20 µm permet ainsi d'étudier un écoulement d'argon dans un canal de taille millimétrique à des nombres de Reynolds de l'ordre de 10.

Les signaux de phosphorescence et de fluorescence diminuent avec la pression, avec une diminution moins rapide pour la fluorescence, cette dernière présentant un signal exploitable en MTV jusqu'à la plus basse pression investiguée (0,14 kPa). La décroissance de la fluorescence avec la pression est bien prédite par le modèle de Thurber et Hanson (Thurber and Hanson 1999) lorsque seule la pression du gaz porteur est diminuée, tandis que les prédictions de ce modèle s'éloignent des observations experimentales lorsque la pression totale est diminuée et la concentration en acétone est constante. Ils semble donc que des effets non pris en compte dans le modèle soient mis en jeu. Ce point particulier nécessite une analyse complémentaire, des mesures de fluorrescence à différents niveaux de pression en faiséant varier à chaque niveau la concentration de l'acétone, donnerait une base de données de fluorescence plus compléte, qui permetrait d'examiner finnement l'influence du taux d'interaction acétone-acétone et acétone-gaz porteur sur le comportement de la fluorescence.

Comparée à la fluorescence, la phosphorescence de l'acétone présente une plus forte sensibilité à la pression. L'optimisation des paramètres d'acquisition permet d'enregister des images exploitables à 2,2 kPa, une pression qui correspond à un écoulement d'argon au début du régime glissant ($Kn = 2,5\times10^{-3}$) dans un canal de 1mm de hauteur. L'utilisation de gaz plus légers comme l'hélium permet d'augmenter encore le degré de raréfaction à des nombres de Knudsen de l'ordre de 10^{-2}. L'utilisation de diacétyle comme traceur excité à 266 nm montre les mêmes limites que l'acétone en termes de signal à basse pression. Il apparait donc qu'à cause de cette diminution du signal de phosphorescence avec la pression, le banc de MTV précédemment décrit ne permet pas aujourd'hui d'atteindre des niveaux de raréfaction plus poussés.

Références

Basu, R., A. M. Naguib and M. M. Koochesfahani (2010). "Feasibility study of whole-field pressure measurements in gas flows: molecular tagging manometry." Experiments in Fluids 49(1): 67-75.

Braeuer, A., F. Beyrau and A. Leipertz (2006). "Laser-induced fluorescence of ketones at elevated temperatures for pressures up to 20 bars by using a 248 nm excitation laser wavelength: experiments and model improvements." Applied Optics 45(20): 4982-4989.

Bryant, R. A., J. M. Donbar and J. F. Driscoll (2000). "Acetone laser induced fluorescence for low pressure/low temperature flow visualization." Experiments in Fluids 28(5): 471-476.

Charogiannis, A. and F. Beyrau (2013). "Laser induced phosphorescence imaging for the investigation of evaporating liquid flows." Experiments in Fluids C7 - 1518 54(5): 1-15.

Edward O'Neall, H. and C. W. Larson (1969). "Primary Processes in the Acetone Photochemical System." The Journal of Phyaical Chemistry 73(4).

Groh, H. J., G. W. Luckey and W. A. Noyes (1953). "The Mechanism of Acetone Vapor Fluorescence." The Journal of Chemical Physics 21(1): 115-118.

James, G. S. (2004). Lange's Handbook of Chemistry, MCGRAW-HILL.

Jon, K. and H. Ronald (2003). A Photophysics Model for 3-pentanone PLIF: Temperature, Pressure, and Excitation Wavelength Dependences. 41st Aerospace Sciences Meeting and Exhibit, American Institute of Aeronautics and Astronautics.

Kaskan, W. E. and A. B. F. Duncan (1950). "Mean Lifetime of the Fluorescence of Acetone and Biacetyl

Vapors." The Journal of Chemical Physics 18(4): 427-431.
Koochesfahani, M. M. and D. G. Nocera (2007). Molecular tagging velocimetry, Spinger.
Poling, B. E., J. M. Prausnitz and J. P. O'Connell (2000). THE PROPERTIES OF GASES AND LIQUIDS, McGRAW-HILL.
Samouda, F. (2012). Développement de la technique de Vélocimétrie par Marquage Moléculaire pour l'étude expérimentale des micro-écoulements gazeux. PHD, INSA Toulouse
Shimanouchi, T. (1972). Tables of Molecular Vibrational Frequencies, National Bureau of Standards.
Thurber, M. C., F. Grisch, B. J. Kirby, M. Votsmeier and R. K. Hanson (1998). "Measurements and Modeling of Acetone Laser-Induced Fluorescence with Implications for Temperature-Imaging Diagnostics." Appl. Opt. 37(21): 4963-4978.
Thurber, M. C. and R. K. Hanson (1999). "Pressure and composition dependences of acetone laser-induced fluorescence with excitation at 248, 266, and 308Â nm." Applied Physics B 69(3): 229-240.
Tran, T., Y. Kochar and J. Seitzman (2005). Measurements of Liquid Acetone Fluorescence and Phosphorescence for Two-Phase Fuel Imaging. 43rd Aerospace Sciences Meeting and Exhibit. Reno, AIAA.
Tran, T., Y. Kochar and J. Seitzman (2006). Measurements of Acetone Fluorescence and Phosphorescence at High Pressures and Temperatures. 44th Aerospace Sciences Meeting and Exhibit. Nevada, American Institute of Aeronautics and Astronautics.
Weinkauff, J., P. Trunk, J. H. Frank, M. J. Dunn, A. Dreizler and B. Böhm (2015). "Investigation of flame propagation in a partially premixed jet by high-speed-Stereo-PIV and acetone-PLIF." Proceedings of the Combustion Institute 35(3): 3773-3781.

Chapitre 4

Effet de la diffusion moléculaire sur la MTV

Dans cette partie, nous analysons les effets de la diffusion des molécules traceuses dans l'écoulement porteur sur la vitesse mesurée avec la technique de MTV. Nous introduisons cette partie par la mise en évidence expérimentale de ces effets cités par quelques auteurs puis nous détaillons la modélisation numérique par DSMC et son utilisation pour l'étude de la diffusion moléculaire du traceur. Nous proposons ensuite une méthode de prise en compte de ces effets, basée sur l'équation d'advection diffusion. Finalement, la validation de cette méthode à l'aide de données numériques générées par DSMC est présentée. Le travail présenté dans ce chapitre a été réalisé grâce à la collaboration avec le Professeur Aldo Frezzotti de l'Université Polytechnique de Milan.

4.1 Mise en évidence des effets de diffusion

Des effets de diffusion moléculaire ont été observés par différents auteurs lors de l'analyse expérimentale d'écoulements gazeux confinés (Samouda, Colin et al. 2015). Dans une moindre proportion, des effets de diffusion sont également rapportés dans des écoulements de liquides au sein de microcanaux (Schembri, Bodiguel et al. 2015).

Dans les deux études présentées par la suite, des effets de diffusion ont été observés au niveau du profil de vitesse. Ce dernier a été extrait d'une manière directe à partir des mesures par MTV en considérant que profils de déplacement et de vitesse sont simplement homothétiques, avec un facteur de proportionnalité égal à la durée entre le flash laser et l'instant où le signal de phosphorescence est analysé. L'objet de ce chapitre est de montrer que les effets de diffusion non pris en compte dans cette approche directe expliquent les écarts entre le profil de vitesse extrait et le profil théorique attendu et qu'ils sont à l'origine d'un glissement apparent, mais non réel, au niveau des parois.

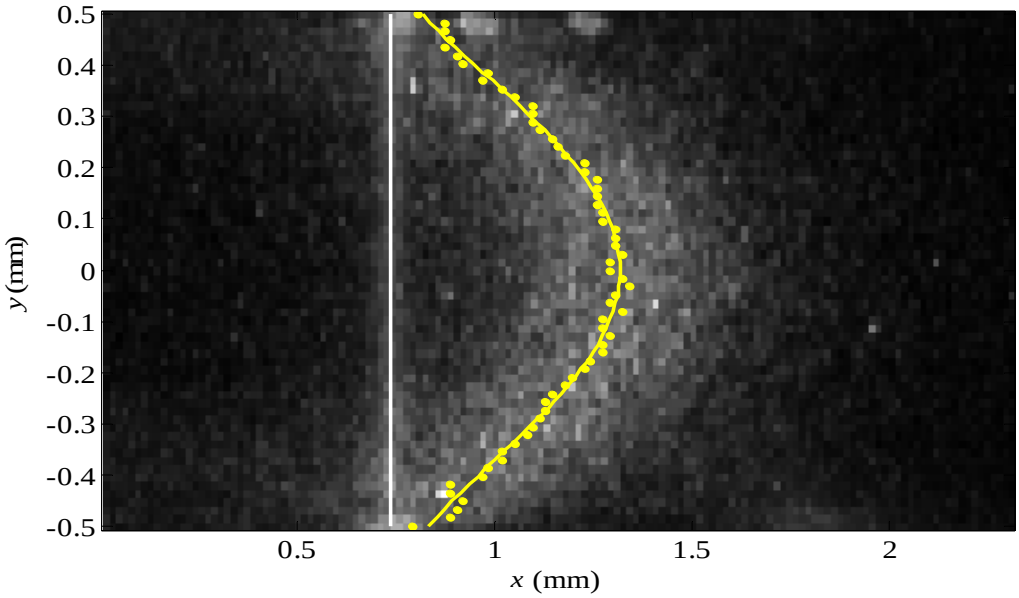

Figure 4.1 Lignes initiale (■) et déformée (■) dans un écoulement d'argon pleinement développé, ensemencé avec des molécules d'acétone. $p_{in} = 105,7\,\text{kPa}$, $p_{out} = 103,7\,\text{kPa}$, $T = 274\,\text{K}$ et $\Delta t = 100\,\mu\text{s}$. (●) Déplacement moyen dans la direction *x* des molécules d'acétone marquées pour chaque valeur de *y*.

La Figure 4.1 montre une image typique de 1D-MTV obtenue dans un écoulement gazeux à une pression moyenne proche de la pression atmosphérique et à température ambiante, dans un canal long de section rectangulaire, de hauteur $L_y = 1\,\text{mm}$ et de profondeur $L_z = 5\,\text{mm}$ (voir Figure 4.3). Cette image est obtenue dans le plan (*x*, *y*) de symétrie du canal, plan dans lequel le laser marque verticalement une ligne de molécules qui émettent instantanément de la fluorescence. La ligne initiale est ainsi obtenue avec un lissage linéaire du maximum d'intensité de la fluorescence émise. Le profil déformé qui correspond au signal de phosphorescence est enregistré 100 µs après le marquage. Le déplacement moyen des molécules marquées pour chaque *y* (points jaunes) est obtenu par un lissage de type gaussien du profil d'intensité le long de l'axe *x*. Finalement, la distribution des point jaunes est approximée par un lissage polynomial d'ordre quatre (qui fournit dans ce cas le meilleur coefficient de corrélation vis-à-vis des points expérimentaux).

Cette image montre, d'une part que le déplacement des molécules marquées suit une distribution polynomiale d'ordre quatre alors que le profil de vitesse attendu devrait être parabolique. D'autre part, un glissement est observé au niveau des parois malgré les conditions expérimentales qui correspondent ici à un écoulement continu non glissant.

Ce glissement fictif à la paroi a été également observé récemment dans un écoulement liquide au sein de microcanaux de 50 et 100 µm de hauteur, en utilisant une technique similaire à la MTV : la vélocimétrie par photoblanchiment (Schembri, Bodiguel et al. 2015).

Les auteurs ont noté la présence d'une vitesse de glissement apparente à la paroi (donnée par le déplacement selon x divisé par le temps Δt) proportionnelle à la vitesse maximale de l'écoulement, vitesse qu'ils ont attribuée à l'effet de la diffusion moléculaire (Figure 4.2). Les auteurs (Schembri, Bodiguel et al. 2015) ont corrigé l'effet de la diffusion en approximant la distribution du niveau de signal lié au photoblanchiment par un model semi-analytique.

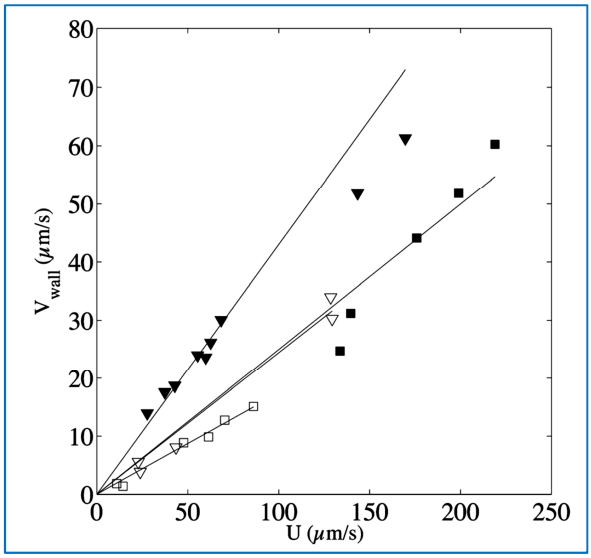

Figure 4.2 Vitesse de glissement apparente V_{wall} en fonction de la vitesse maximale de l'écoulement U. (■) hauteur du canal $h = 100\,\mu\text{m}$ et viscosité du liquide $\mu = 0{,}0059$ Pa s ; (□) $h = 100\,\mu\text{m}$ et $\mu = 0{,}039$ Pa s ; (▲) $h = 50\,\mu\text{m}$ et $\mu = 0{,}0059$ Pa s ; (Δ) $h = 50\,\mu\text{m}$ et $\mu = 0{,}039$ Pa s (Schembri, Bodiguel et al. 2015).

4.2 Simulation de la diffusion des molécules traceuses par DSMC

Dans cette partie, nous utilisons la simulation directe de Monte Carlo pour analyser les effets de la diffusion moléculaire des molécules marquées dans l'écoulement porteur. Ces simulations ont une double utilité : premièrement, elles permettent le diagnostic des effets de diffusion en fonction du degré de raréfaction et deuxièmement, ces simulations permettent de générer des données (profils de vitesses et de déplacements) qui seront utilisées pour valider la technique de reconstruction du profil de vitesse que nous avons développée.

4.2.1 Formulation du problème

Afin de nous rapprocher au mieux des conditions expérimentales rencontrées en MTV, nous considérons un écoulement stationnaire d'un mélange gazeux (composé du gaz porteur et du gaz traceur) dans un canal de section rectangulaire de grand rapport de forme, ce qui permet de l'assimiler à un écoulement entre deux plaques planes. L'écoulement est généré par une différence de pression $\Delta p = p_{in} - p_{out}$ entre l'entrée et la sortie du canal, supposée assez petite pour permettre un écoulement quasi isotherme, faiblement compressible et avec des gradients transversaux négligeables.

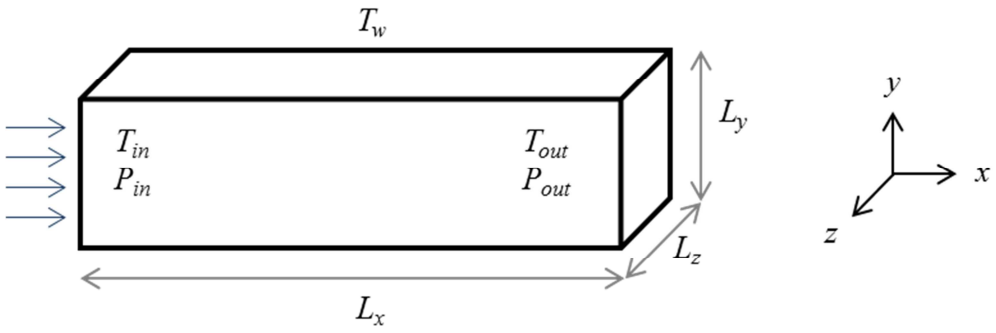

Figure 4.3 Géométrie du canal et coordonnées du système.

L'étude de la diffusion à une échelle moléculaire ainsi que l'étude de l'influence du degré de raréfaction sur la diffusion nécessitent l'utilisation d'une approche moléculaire. L'écoulement du mélange gazeux est gouverné par le système d'équations de Boltzmann suivant (Ferziger and Kaper 1972) :

$$\frac{\partial f_i}{\partial t} + \mathbf{v}.\frac{\partial f_i}{\partial \mathbf{r}} = \sum_{j=1}^{2} Q_{ij}(f_j, f_i), \quad i = 1,2. \tag{4.1}$$

Dans l'équation (4.1), les indices 1 et 2 sont attribués respectivement au gaz porteur et au gaz traceur et f_i représente la fonction de distribution des vitesses moléculaires $\mathbf{v}$ pour chaque espèce *i* à une position de l'espace repérée par le vecteur $\mathbf{r}$.

Il est à noter que les molécules traceuses sont soumises aux processus d'excitation et de désexcitation décrits au chapitre 3. De ce fait, une molécule marquée voit ses énergies de rotation, de vibration et électronique évoluer au même titre que son énergie de translation (Shen 2005). On admet que dans notre cas où l'écoulement est quasi isotherme à la température ambiante, la structure interne des molécules traceuses n'a pas une grande répercussion sur la dynamique de l'écoulement. Par conséquent, les molécules traceuses tout comme les molécules du gaz porteur sont considérées comme des sphères dures de masse m_i et de diamètre σ_i (voir partie 1.2). Le terme $Q_{ij}(f_j, f_i)$ dans les équations (4.1) décrivant les collisions des molécules d'espèces *i* et *j* est donné par :

$$Q_{ij}(f_j, f_i) = \frac{1}{2}\left(\frac{\sigma_i + \sigma_j}{2}\right)^2 \int_{\Omega} d^2\hat{\boldsymbol{\kappa}} \int_{R^3} d\mathbf{w}\left[f_j(\mathbf{r}, \mathbf{w}^*, t)\, f_i(\mathbf{r}, \mathbf{v}^*, t) - f_j(\mathbf{r}, \mathbf{w}, t)\, f_i(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)\right] |\mathbf{v_r} \cdot \hat{\mathbf{k}}|, \tag{4.2}$$

où $\hat{\mathrm{k}}$ représente un vecteur unitaire appartenant à la sphère unitaire Ω, définissant la position relative de deux molécules au moment de leur collision et $\mathbf{v_r}$ représente leur vitesse relative. La détermination des vitesses moléculaires post-collisionnelles $\mathbf{v}^*$ et $\mathbf{w}^*$ à partir des vitesses avant collision v et w, ainsi que la détermination des propriétés macroscopiques de

l'écoulement à partir des propriétés moléculaires, sont données dans le premier chapitre (voir parties 1.2 et 1.4).

Nous imposons des conditions aux limites maxwelliennes aux parois (voir équation (1.17)) et définissons les propriétés du mélange gazeux à partir des propriétés de chaque composant comme suit :

- La densité moléculaire et la masse volumique sont données par :

$$n(\mathbf{r},t)=\sum_{i=1}^{2} n_i(\mathbf{r},t), \quad \rho(\mathbf{r},t)=\sum_{i=1}^{2}\rho_i(\mathbf{r},t) \ ; \tag{4.3}$$

- La fraction molaire du composant *i* est donnée par :

$$\chi_i(\mathbf{r},t)=\frac{n_i(\mathbf{r},t)}{n(\mathbf{r},t)} \ ; \tag{4.4}$$

- La vitesse hydrodynamique locale de l'écoulement est quant à elle donnée par :

$$u^{hyd}(\mathbf{r},t)=\frac{\sum_{i=1}^{2}\rho_i(\mathbf{r},t)\mathbf{u}_i(\mathbf{r},t)}{\rho(\mathbf{r},t)} . \tag{4.5}$$

Nous introduisons enfin le libre parcours moyen global défini à l'état d'équilibre à la température T_0 pour le mélange gazeux avec des densités moléculaires n_{0j} :

$$\lambda_0=\sum_{i=1}^{2}\chi_{0i}\left(\frac{1}{\sum_{j=1}^{2} n_{0j}\pi\sigma_{ij}^2\sqrt{\frac{m_i+m_j}{m_j}}}\right), \tag{4.6}$$

avec $\sigma_{ij}=\frac{1}{2}(\sigma_i+\sigma_j)$. Le temps moyen global entre deux collisions est alors donné par :

$$\tau_0=\frac{\lambda_0}{\sqrt{\frac{k_b T_0}{m_0}}}, \tag{4.7}$$

où $m_0=\sum_{i=1}^{2}\chi_{0i}m_i$ représente la masse moléculaire moyenne du mélange.

4.2.2 Résolution numérique du problème

Les équations principales (4.1) sont résolues par simulation directe de Monte Carlo (DSMC - *Direct Simulation Monte Carlo*). Cette méthode résout numériquement la forme instationnaire des équations cinétiques, la solution stationnaire étant obtenue comme la limite à des temps longs de la solution instationnaire (Bird 1994). Dans la DSMC, la fonction de

distribution $f(\mathrm{r},\mathrm{v},t)$ est représentée par des milliers de molécules simulées ; chacune de ces molécules représente un très grand nombre de molécules réelles.

Les quantités macroscopiques associées aux molécules simulées (positions, vitesses, énergies) évoluent dans le temps suivant une série d'étapes. Chacune de ces étapes est subdivisée en deux phases : une phase de mouvement libre et une phase de collisions ponctuelles et instantanées. La première phase correspond au terme advectif du membre de gauche des équations (4.1). Dans cette phase, seules les positions des molécules sont modifiées, sauf si une ou plusieurs molécules entrent en collision avec les parois, auquel cas les vitesses de ces molécules sont alors modifiées suivant le modèle de paroi adopté (Cercignani 1988).

Durant la deuxième phase, les molécules sont affectées à des cellules de résolution spatiale appropriée. Leurs positions sont maintenues inchangées, tandis que leurs vitesses sont modifiées suite aux collisions. La sélection de partenaires de collision dans une cellule est faite avec la méthode NTC « *No Time Counter* » (Bird 1994, Venkattraman, Alexeenko et al. 2012). Le taux de collisions, ainsi que les vitesses après collision, sont déterminés suivant des lois stochastiques en accord avec l'intégrale de collision (équation (4.2)) et la dynamique des sphères dures (voir partie 1.2).

Finalement les propriétés macroscopiques locales de l'écoulement sont obtenues en moyennant les propriétés microscopiques dans chaque cellule et dans le temps (Bird 1998, Shen 2005).

Les premiers résultats de simulations que nous présentons concernent un écoulement de Poiseuille bidimensionnel d'argon. Une procédure de suivi de molécules similaire à la MTV, en trois étapes, a été mise en place :

(i) un écoulement bidimensionnel est tout d'abord généré à $t=0$ par une différence de pression appliquée entre l'entrée ($x=-L_x/2$) et la sortie du canal ($x=L_x/2$). On laisse l'écoulement évoluer pendant une longue période (typiquement $4000\tau_0$) jusqu'à l'obtention d'un écoulement établi et globalement stationnaire.

(ii) à l'instant $t=0$, une bande de molécules de largeur ΔL est marquée perpendiculairement à l'axe *x* (phase de marquage). La largeur de la bande est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des molécules ($\Delta L \propto \lambda_0$).

(iii) à l'instant t, on enregistre les positions des molécules marquées (phase de lecture).

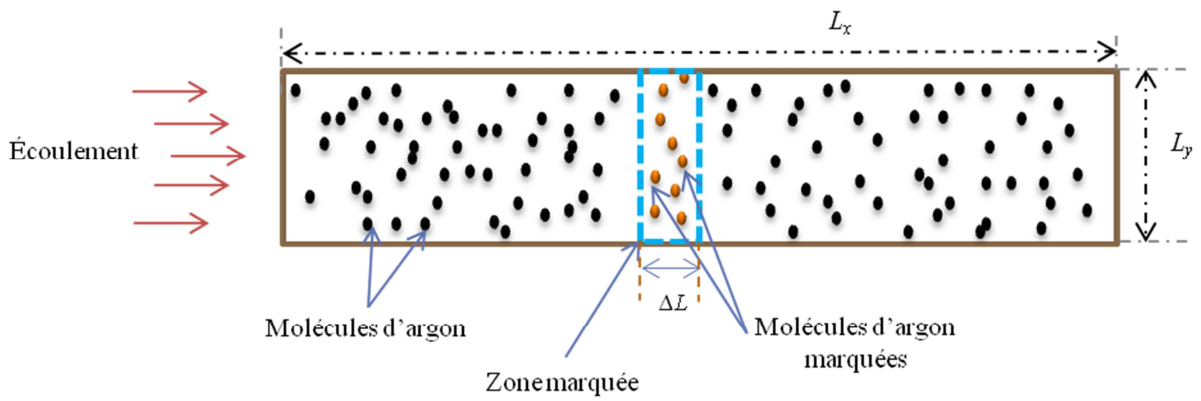

Figure 4.4 Schéma de simulation d'un écoulement de Poiseuille montrant la procédure de marquage

Techniquement, le marquage des molécules d'argon se trouvant dans la bande de longueur ΔL est réalisé en considérant ces molécules comme appartenant à une seconde espèce, repérée par l'indice $i = 2$, mais en conservant leurs propriétés (masse et diamètre moléculaire). Le déplacement moyen des molécules marquées suivant l'axe x est donné pour chaque y par :

$$s_x(y,t) = \frac{\int x\, n_2(x,y,t)dx}{\int n_2(x,y,t)dx}. \tag{4.8}$$

Un exemple montrant deux profils de déplacement obtenus à deux intervalles de temps différents après le marquage, ainsi que le profil de vitesse de l'écoulement, est représenté sur la Figure 4.5. On constate un décalage important entre la vitesse apparente obtenue en divisant le déplacement par le temps (Figure 4.5-a) et la vitesse réelle de l'écoulement (Figure 4.5-b). Un glissement plus important est observé au niveau des parois. Comme on peut s'y attendre, l'effet de la diffusion sur le déplacement des molécules marquées est d'autant plus fort que l'intervalle de temps entre le marquage et la lecture est important.

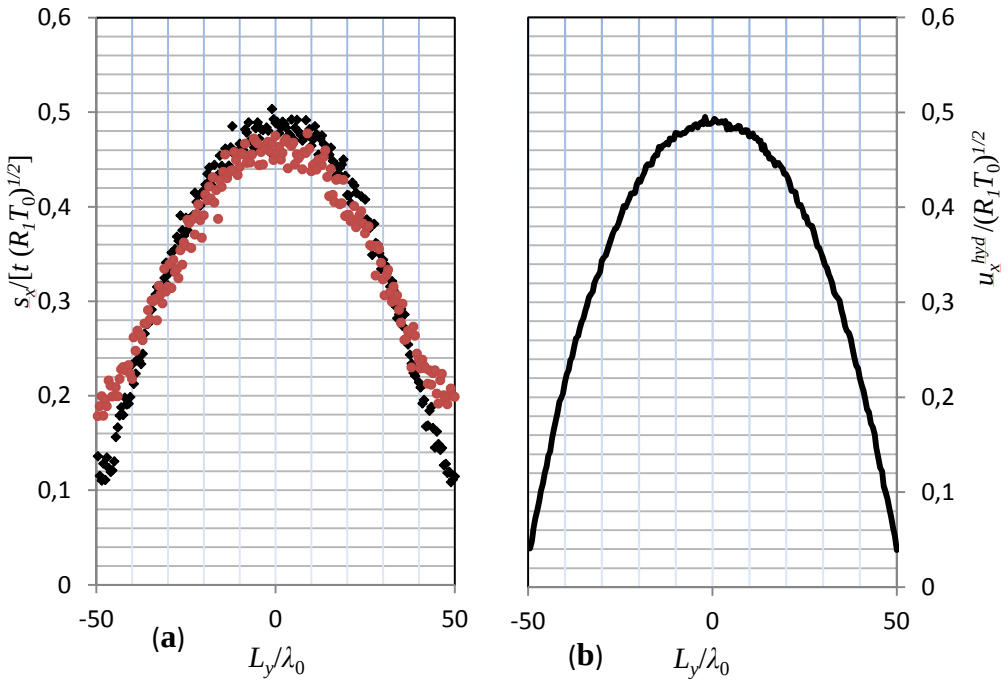

Figure 4.5 (**a**) Profil de déplacement normalisé : (♦) $s_x/(t\sqrt{R_1T_0})$ à $t=20\tau_0$; (●) $s_x/(t\sqrt{R_1T_0})$ à $t=100\tau_0$; (**b**) profil de vitesse $u_x^{hyd}/\sqrt{R_1T_0}$. $Kn=0,05$.

Afin de quantifier l'écart entre la vitesse apparente et la vitesse réelle de l'écoulement, on introduit le paramètre d'écart :

$$\varepsilon=\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}\frac{\left|u_x^{hyd}(y)-s_x(y)/t\right|}{u_x^{hyd}(y=0)}dy\,. \tag{4.9}$$

Les résultats obtenus pour ε à différents niveaux de raréfaction, en fonction de $Kn_0=\lambda_0/L_y$, sont regroupés dans le Tableau 4.1. Les profils de déplacement ont été obtenus à $t=20\tau_0$. Les résultats montrent que l'écart ε augmente avec la raréfaction. Les effets de diffusion qui sont observables dès le régime continu (voir partie 4.1) deviennent tellement importants en régime glissant qu'ils ne peuvent en aucun cas être ignorés lors de l'analyse du signal de MTV.

Kn_0	3,67E-03	5,50E-03	1,10E-02	2,20E-02
ε	0,022	0,026	0,063	0,129

Tableau 4.1 Ecart relatif entre la vitesse apparente et la vitesse réelle de l'écoulement.

4.3 Approximation par l'équation d'advection-diffusion

Lorsque les molécules traceuses sont ajoutées à l'écoulement stationnaire du gaz porteur en petite quantité, les équations principales (4.1) peuvent être réécrites de la manière suivante :

$$\mathrm{v}\cdot\frac{\partial f_1}{\partial \mathrm{r}}=Q_{11}(f_1,f_1)\,, \tag{4.10}$$

$$\frac{\partial f_2}{\partial t} + \mathrm{v} \cdot \frac{\partial f_2}{\partial \mathrm{r}} = Q_{21}(f_2, f_1). \tag{4.11}$$

L'équation (4.11) décrit la diffusion instationnaire des molécules traceuses dans l'écoulement stationnaire du gaz porteur décrit par l'équation (4.10). Les interactions entre les molécules traceuses sont supposées négligeables (c'est-à-dire que $Q_{22}(f_2, f_2) = 0$) et leur introduction est supposée ne pas perturber l'écoulement du gaz porteur, soit $Q_{12}(f_1, f_2) = 0$. Ces deux équations ((4.10) et (4.11)) peuvent être utilisées pour décrire le déplacement des molécules traceuses et aussi pour retrouver la vitesse à partir de ce déplacement. Néanmoins, leur complexité mathématique rend leur résolution très difficile.

4.3.1 Déduction du déplacement des molécules marquées

Une description plus simple du mouvement des molécules traceuses est donnée par l'équation d'advection diffusion (Ferziger and Kaper 1972, Crank 1975) :

$$\frac{\partial n_2}{\partial t} + \mathbf{u}^{hyd}.\nabla n_2 = D_{2/1}\nabla^2 n_2 - \frac{1}{\tau_p} n_2. \tag{4.12}$$

Le coefficient de diffusion $D_{2/1}$ des molécules de gaz traceur 2 dans le gaz porteur 1, supposé constant (vu les faibles gradients dans l'écoulement), est donné par :

$$D_{2/1} = \frac{3}{16 n\, m_{12}} \frac{\sqrt{2\pi m_{12} k_b T}}{\pi \sigma_{12}^2\, \Omega_D} f_D \; avec \; m_{12} = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}, \tag{4.13}$$

où f_D est un coefficient correctif de l'ordre de l'unité. Si m_1 et m_2 sont du même ordre de grandeur f_D est compris entre 1 et 1,02 ; en revanche si une grosse disparité existe entre les masses moléculaires du mélange f_D est compris entre 1 et 1,1 (Poling, Prausnitz et al. 2000). La variable Ω_D est l'intégrale de collision liée à la diffusion, qui dépend du modèle moléculaire adopté (Neufeld, Janzen et al. 1972).

Le terme source $-1/\tau_p\, n_2$ a été ajouté dans l'équation (4.12), pour prendre en compte la décroissante de la phosphorescence : τ_p représente la durée de vie de la phosphorescence (Kaskan and Duncan 1950). Ce terme source peut être éliminé avec la normalisation suivante :

$$n_2(x, y, z, t) = N_0 \exp(-\frac{1}{\tau_p} t) P(x, y, z, t), \tag{4.14}$$

où N_0 représente le nombre total de molécules traceuses marquées à l'état initial. Sous l'hypothèse de canal long et en se positionnant assez loin des deux extrémités du canal, la

vitesse de l'écoulement se réduit à sa composante axiale $u_x(y,z)$. La nouvelle inconnue $P(x,y,z,t)$ qui représente la probabilité de présence des molécules marquées à la position (x,y,z) à l'instant *t* vérifie l'équation :

$$\frac{\partial P}{\partial t}+u_x(y,z)\frac{\partial P}{\partial x}=D_{2/1}\nabla^2 P\,. \tag{4.15}$$

Dans les expériences de MTV, le déplacement des molécules marquées entre la phase de marquage et celle de lecture, de l'ordre de 0,5 mm, est petit devant la longueur du canal égale à 200 mm environ. De ce fait, on considère que la coordonnée *x* n'est pas bornée et *P* est donc défini dans le domaine $\left\{(x,y,z)\in\mathbb{R}^3;-\infty<x<+\infty,\ -L_y/2<y<L_y/2,\ -L_z/2<z<L_z/2\right\}$. Suite à l'analyse expérimentale faite dans la partie 3.3.4.4, nous supposons qu'il n'y pas d'extinction de la phosphorescence des molécules marquées suite à des collisions avec les parois ; ainsi les conditions aux limites suivantes sont adoptées :

$$\begin{cases}\dfrac{\partial P}{\partial y}=0, & y=\pm L_y/2\\[2mm] \dfrac{\partial P}{\partial z}=0, & z=\pm L_z/2\end{cases}\,. \tag{4.16}$$

La distribution initiale $P(x,y,z,t=0)=P_0(x,y,z)$ est liée à la manière dont les molécules traceuses sont excitées par le faisceau laser (Figure 4.6). Afin de nous rapprocher au mieux des conditions expérimentales, nous supposons que le laser engendre une distribution initiale uniforme de molécules marquées dans un cylindre de section circulaire et donc que le marquage est invariant suivant l'axe *y*. Rappelons que cette dernière hypothèse a été vérifiée dans la partie 3.2, où les images obtenues avec un gaz au repos montrent un signal de luminescence uniforme le long de l'axe du laser. Ainsi,

$$P_0(x,z)=\begin{cases}\dfrac{1}{V_0} & (x,y,z)\in\xi_0\\[2mm] 0 & (x,y,z)\notin\xi_0\end{cases}, \tag{4.17}$$

avec $\xi_0=\left\{(x,y,z)\in\mathbb{R}^3;\,x^2+z^2<r_0^{\,2},\ \ -L_y/2<y<L_y/2\right\}$ et $V_0=\pi r_0^2 L_y$ représente le volume du cylindre illuminé.

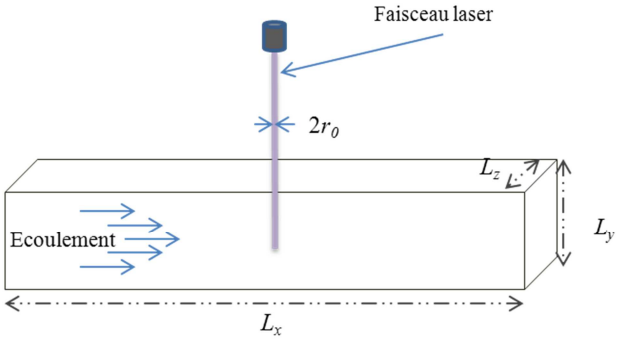

Figure 4.6 Marquage de molécules par le faisceau laser et génération de l'état initial P_0

Le déplacement moyen longitudinal $s_x(y,t)$ des molécules marquées est obtenu à partir de la probabilité P comme suit :

$$s_x(y,t) = \frac{1}{P_y(y,t)} \int_{-L_z/2}^{L_z/2} \int_{-\infty}^{+\infty} xP(x,y,z,t)\,dxdz \ , \tag{4.18}$$

où P_y représente la somme des probabilités dans le plan (x, z) à y fixé :

$$P_y(y,t) = \int_{-L_z/2}^{L_z/2} \int_{-\infty}^{+\infty} P(x,y,z,t)\,dxdz \ . \tag{4.19}$$

La variable P_y est directement liée à la densité de molécules marquées se trouvant sur le plan (x, z) pour chaque y par l'équation (4.14). L'évolution de P_y est obtenue en intégrant l'équation (4.15) suivant x et z et en prenant en compte les conditions aux limites (4.16) :

$$\frac{\partial P_y}{\partial t} = D_{2/1} \frac{\partial^2 P_y}{\partial y^2} \ . \tag{4.20}$$

Comme le marquage des molécules ne dépend pas de y (voir partie 3.2), l'état initial est donc indépendant de y :

$$P_y(y,0) = P_0 \ . \tag{4.21}$$

Il est évident que P_0, qui est constante, est une solution de l'équation (4.20) et le théorème d'unicité impose que P_0 en soit l'unique solution. Cela revient à dire que le mouvement diffusif ne contribue pas à une redistribution des molécules marquées dans la direction y. Ainsi, dans un cas idéal où il n'y aurait pas de décroissance de luminescence des molécules marquées au cours du temps, le nombre de molécules marquées pour chaque y resterait fixe et égal par unité de hauteur à N_0 / L_y.

Le déplacement des molécules $s_x(y,t)$ est finalement obtenu en multipliant l'équation (4.15) par x et en intégrant selon x et z :

$$\frac{\partial s_x}{\partial t} = \bar{u}_x(y,t) + D_{2/1}\frac{\partial^2 s_x}{\partial y^2} \tag{4.22}$$

avec la condition initiale $s_x(y,0)=0$ et les conditions aux limites $\frac{\partial s_x}{\partial y}=0$ à $y=\pm L_y/2$. La vitesse $\bar{u}_x(y,t)$, qui représente la moyenne dans le plan (*x*, *y*), pondérée par la probabilité de présence des molécules marquées, est donnée par :

$$\bar{u}_x(y,t) = \frac{\int u_x(y,t)P(x,y,z,t)dx\,dz}{P_0}. \tag{4.23}$$

Les molécules marquées sont transportées sous l'effet de la vitesse moyenne $\bar{u}_x(y,t)$, qui est liée à la fois au champ de vitesse $u_x(y,z)$ dans la section et à la distribution $P(x,y,z,t)$ des molécules marquées. Dans le cas d'un canal large tel que $L_z \gg L_y$, dans la partie centrale du canal où $\frac{\partial u_x}{\partial z}=0$, la vitesse ne dépend que de la coordonnée *y*. Dans ce cas et sous l'hypothèse supplémentaire que les molécules restent dans la partie centrale du canal (là où le gradient $\partial u_x/\partial z = 0$), on a $\bar{u}_x(y,t) \approx u_x(y)$.

Cette même hypothèse impose un ordre de grandeur du temps limite Δt_l à ne pas dépasser pour la durée t entre le marquage des molécules et la lecture de leurs positions :

$$\Delta t_l = \frac{L_z^2}{2D_{2/1}}. \tag{4.24}$$

Δt_l correspond à la durée au bout de laquelle les molécules initialement marquées au voisinage de $z=0$ atteignent par diffusion les parois latérales du canal situées à $z=\pm L_z/2$. D'une manière générale, pour $t \ll \Delta t_l$, l'équation (4.22) devient :

$$\frac{\partial s_x}{\partial t} = u_x(y) + D_{2/1}\frac{\partial^2 s_x}{\partial y^2}. \tag{4.25}$$

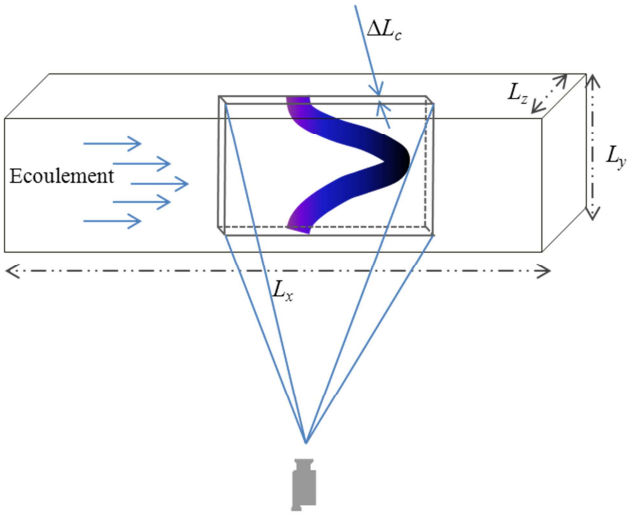

Figure 4.7 Schéma du suivi des molécules marquées par une caméra

Dans la pratique, le déplacement des molécules marquées est suivi à l'aide d'une caméra. Même si les molécules marquées s'étalent dans le plan (*x*, *z*), seules les molécules situées dans la zone correspondant à la profondeur de champ de la caméra sont suivies. De ce fait, lorsque la caméra est focalisée sur le centre du canal et que sa profondeur de champ est petite devant la largeur du canal ($\Delta L_c \ll L_z$), on n'est plus conditionné par le temps limite Δt_l.

L'équation différentielle linéaire du deuxième ordre (4.25) relie le déplacement $s_x(y)$ mesurable avec la MTV et la vitesse $u_x(y)$ recherchée. On constate que dans le cas présent, la relation entre le déplacement et la vitesse est plus complexe que la relation classique

$$u = \frac{\partial s}{\partial t} \approx \frac{\Delta s}{\Delta t} \tag{4.26}$$

communément utilisée en vélocimétrie (voir partie 2.4). Dans le cas où la diffusion est négligeable ($D_{2/1}$ très petit), ce qui caractérise notamment des liquides (Elsnab 2008) et se rencontre aussi dans des écoulements peu confinés avec de faibles gradients de vitesse (Chen, Li et al. 2015), le terme diffusif dans l'équation (4.25) peut être négligeable et on retrouve ainsi la relation (4.26). En revanche, dans notre cas, avec un confinement poussé et en écoulement à basse pression, le profil de vitesse doit être obtenu à partir du profil de déplacement à l'aide de l'équation (4.25).

4.3.2 Décomposition du mouvement des molécules marquées

On peut obtenir l'évolution du déplacement moyen des molécules marquées à partir de l'équation (4.25) en l'intégrant selon y :

$$\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}\frac{\partial s_x}{\partial t}dy=\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}u_x(y,t)dy+\underbrace{D_{2/1}\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}\frac{\partial^2 s_x}{\partial y^2}dy}_{0}. \tag{4.27}$$

Le dernier terme de l'équation (4.27) s'annule en appliquant les conditions aux limites et on trouve l'équation

$$\langle s_x\rangle(t)=\langle u_x\rangle t \tag{4.28}$$

qui montre que, pour un écoulement stationnaire, le déplacement moyen des molécules marquées $\langle s_x\rangle=\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}s_x dy$ n'est pas affecté par la diffusion et évolue sous l'effet de la vitesse moyenne $\langle u_x\rangle=\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}u_x dy$. L'équation (4.28) peut être directement utilisée en MTV pour calculer la vitesse moyenne de l'écoulement à partir d'une séquence de déplacements moyens mesurés dans les mêmes conditions.

Il est intéressant de décomposer la solution $s_x(y,t)$ de l'équation (4.25), dans le cas d'un écoulement stationnaire, sous la forme d'un déplacement moyen résultant d'une translation uniforme $\langle u_x\rangle t$, d'un déplacement stationnaire $s_\infty(y)$ et d'un déplacement instationnaire $\tilde{s}_x(y,t)$:

$$s_x(y,t)=\langle u_x\rangle t+s_\infty(y)+\tilde{s}_x(y,t). \tag{4.29}$$

La contribution stationnaire obéit à l'équation et aux conditions aux limites suivantes :

$$\frac{d^2 s_\infty}{dy^2}=\frac{1}{D_{2/1}}\left[\langle u_x\rangle-u_x(y)\right], \tag{4.30}$$

$$\left(\frac{ds_\infty}{dy}\right)_{y=\pm\frac{L_y}{2}}=0,\quad \int_{-\frac{L_y}{2}}^{\frac{L_y}{2}}s_\infty(y)dy=0. \tag{4.31}$$

La contribution instationnaire suit l'équation de diffusion monodimensionnelle suivante :

$$\frac{\partial\tilde{s}_x}{\partial t}=D_{2/1}\frac{\partial^2\tilde{s}_x}{\partial y^2}, \tag{4.32}$$

avec la condition initiale et les conditions aux limites

$$\tilde{s}_x(y,0) = -s_\infty(y), \quad \left(\frac{\partial \tilde{s}_x}{\partial y}\right)_{y=\pm\frac{L_y}{2}} = 0. \tag{4.33}$$

Une conséquence de l'équation (4.32) est que la contribution instationnaire décroit exponentiellement avec le temps, avec un exposant de l'ordre de $L_y^2 / D_{2/1}$. Par conséquent, le comportement asymptotique de $s_x(y,t)$ est une translation de la contribution stationnaire $s_\infty(y)$ avec une vitesse uniforme $\langle u_x \rangle$. A des temps suffisamment longs, l'information sur le profil de vitesse $u_x(y)$ apportée par le profil de déplacement $s_x(y)$ est complétement contenue dans la contribution asymptotique $s_\infty(y)$. Cet effet est clairement illustré dans l'exemple suivant. Considérons un écoulement de Poiseuille glissant entre deux plaques planes, dont on peut approximer le profil de vitesse par l'expression parabolique

$$u_x(y) = a_0 + a_2 \frac{4}{L_y^2}\left(\frac{L_y^2}{4} - y^2\right). \tag{4.34}$$

La vitesse moyenne et la contribution asymptotique sont données par :

$$\langle u_x \rangle = a_0 + \frac{2}{3} a_2 , \tag{4.35}$$

$$s_\infty(y) = a_2 \frac{L_y^2}{D_{2/1}} \overbrace{\left[\frac{7}{720} - \frac{y^2}{3L_y^2}\left(\frac{1}{2} - \frac{y^2}{L_y^2}\right)\right]}^{A}. \tag{4.36}$$

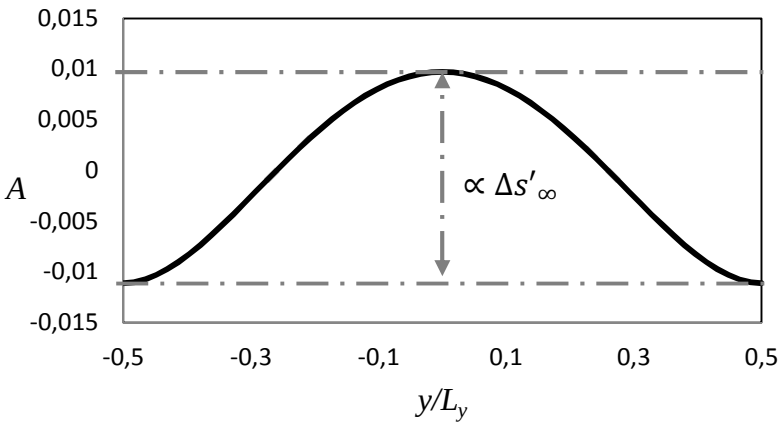

Figure 4.8 Profil du terme *A* et signification du paramètre $\Delta s'_\infty$

Le terme *A* entre crochets dans l'équation (4.36) est un polynôme du quatrième ordre, qui présente une variation le long de l'axe vertical du canal de 1/48 : $A(y=0) - A(y = L_y/2) = 1/48$ (Figure 4.8). On introduit alors le paramètre $\Delta s'_\infty$ qui nous renseigne sur la forme de $s_\infty(y)$ et qui caractérise sa variation sur la demi hauteur du canal :

$$\Delta s'_{\infty} = \frac{\left[s_{\infty}(0) - s_{\infty}(+L_y/2) \right]}{\lambda_0} = \frac{a'_2}{48 D'_{12}\, Kn^2}\,, \tag{4.37}$$

où $a'_2 = a_2 \sqrt{\frac{m_0}{k_b T_0}}$ et $D'_{2/1} = D_{2/1} \frac{\tau_0}{\lambda_0^2}$ sont respectivement la vitesse et le coefficient de diffusion adimensionnés.

L'équation (4.37) montre que la forme de $s_{\infty}(y)$ est plus courbée pour de petits nombres de Knudsen. Cela est bien illustré sur la Figure 4.9 qui montre deux simulations où la diffusion moléculaire joue des rôles différents. Sur la Figure 4.9-b où $Kn = 0{,}1$, la contribution instationnaire $\tilde{s}_x(y,t)$ décroit très rapidement. Le profil de déplacement est réduit à sa composante asymptotique $s_{\infty}(y)$ qui montre une forme quasiment plate ($\Delta s'_{\infty} \sim 1$). Sur la Figure 4.9-a où Kn est cinq fois plus petit et $D_{2/1}$ est aussi plus faible (car le mélange gazeux considéré est différent), la contribution du terme instationnaire $\tilde{s}_x(y,t)$ est plus évidente et elle se manifeste par un changement visible de la forme de $s_x(y,t)$ entre les deux premiers instants ($t = 100\,\tau_0$ et $t = 1500\,\tau_0$). Par la suite, $\tilde{s}_x(y,t)$ décroit et le profil de déplacement se réduit à sa composante asymptotique $s_{\infty}(y)$ dont la forme ne change plus entre les instants $t = 1500\,\tau_0$ et $t = 3000\,\tau_0$. La forme de $s_{\infty}(y)$ est désormais beaucoup plus prononcée et présente une variation adimensionnelle $\Delta s'_{\infty} \propto 60$, en accord avec les prédictions de l'équation (4.37).

Par ailleurs, la solution de l'équation (4.25) avec la condition initiale et les conditions aux limites précédemment décrites est donnée sous la forme (Crank 1975) :

$$s_x(y,t) = (W_0 \circ u_x)\, t\, W_0 + \sum_{k=1}^{\infty} \tau_k (W_k \circ u_x) \left(1 - e^{-t/\tau_k}\right) W_k(y)\,, \tag{4.38}$$

où le symbole ($\circ$) fait référence au produit scalaire entre deux fonctions, défini par :

$$(f \circ g) = \int_{-L_y/2}^{-L_y/2} f(y)\, g(y)\, dy \tag{4.39}$$

Les fonctions W_k (modes spatiaux) sont quant à elles données par :

$$W_k = \begin{cases} \dfrac{1}{\sqrt{L_y}}, & k = 0 \\ \sqrt{\dfrac{2}{L_y}} \cos\left(\dfrac{2\pi k}{L_y} y \right), & k = 1, 2, \ldots, \infty \end{cases} \tag{4.40}$$

et obéissent à la relation $(W_k, W_l) = \delta_{k,l}$, où $\delta_{k,l}$ représente symbole de Kronecker. Les constantes temporelles $\tau_k = \frac{1}{D_{2/1}}(\frac{L_y}{2\pi k})^2$ dans l'équation (4.38) caractérisent l'évolution exponentielle de l'amplitude des modes spatiaux W_k (Crank 1975).

4.3.3 Comparaison entre l'équation d'advection-diffusion et la DSMC

L'analyse rigoureuse justifiant l'utilisation de l'équation d'advection-diffusion (4.15) à la place de l'équation de Boltzmann (4.11) dans le régime glissant n'a pas été développée. Pour combler ce manque, une comparaison entre le déplacement des molécules marquées donné par l'équation (4.25) et celui obtenu par DSMC est montré sur la Figure 4.9. On constate que la «simple » équation (4.25) d'advection-diffusion reproduit fidèlement les déplacements calculés par DSMC, même à des nombres de Knudsen relativement élevés allant jusqu'à 10^{-1}.

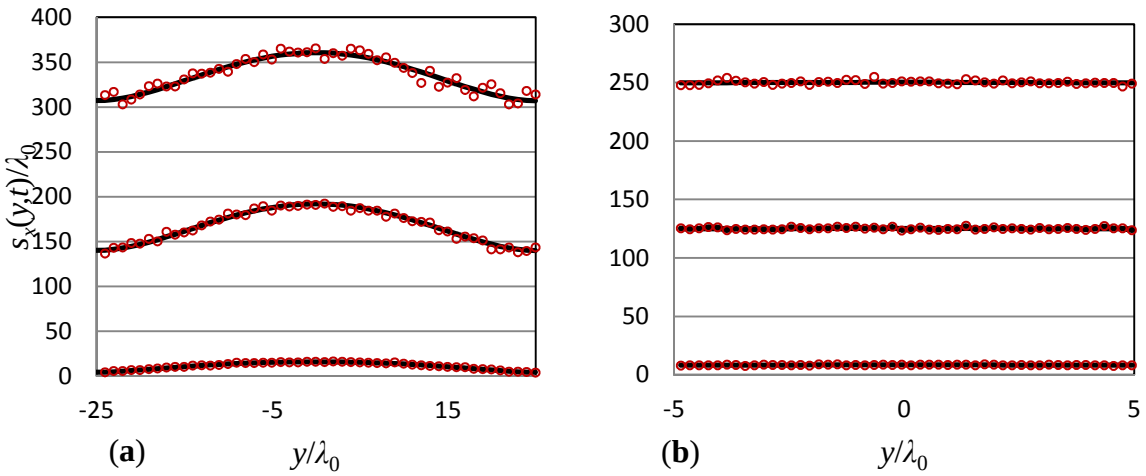

Figure 4.9 Déplacements moyens des molécules marquées à $t = 100\,\tau_0, 1500\,\tau_0$ et $3000\,\tau_0$: comparaison entre les prédictions de la DSMC (○) et l'équation (4.25) d'advection-diffusion (—). (**a**) Mélange hélium-acétone $Kn_0 = 0,02$; $\chi_2 = 0,05$. (**b**) Mélange argon-acétone $Kn_0 = 0,1$; $\chi_2 = 0,05$.

Il est à noter que la bonne prédiction des déplacements par l'équation d'advection-diffusion repose sur l'utilisation d'un coefficient de diffusion binaire approprié. En régime raréfié, le mouvement diffusif dépend non seulement des interactions molécule-molécule mais aussi des interactions molécule-paroi. De ce fait, l'extension de l'équation d'advection-diffusion requiert le remplacement du coefficient de diffusion $D_{2/1}$ de Chapman-Enskong (Ferziger and Kaper 1972) par un coefficient D_{eff} effectif (Dongari, Sharma et al. 2009, Veltzke, Baune et al. 2012) qui rend compte de la présence des parois. Dans ce travail, D_{eff} est calculé pour chaque Kn à partir de simulation par DSMC du comportement de mélanges gazeux dans le canal considéré, en absence d'écoulement. D_{eff} est ainsi obtenu à partir de

l'évolution temporelle linéaire de la variance des positions x occupées par les molécules simulées (Figure 4.10), suivant la relation d'Einstein :

$$\left\langle x^2 \right\rangle (t) = 2D_{eff}\, t \,. \tag{4.41}$$

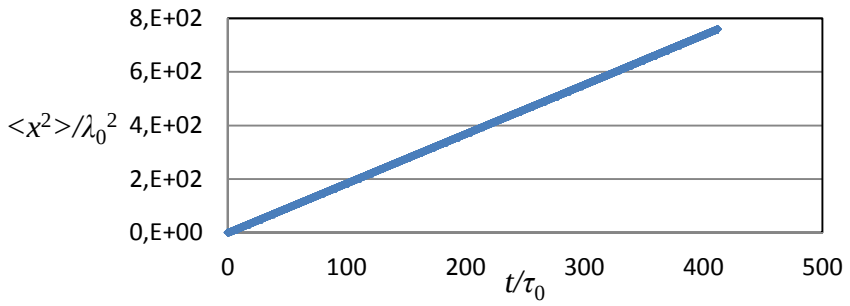

Figure 4.10 Evolution de la variance des positions des molécules en fonction du temps. Simulation par DSMC de la diffusion de l'argon à $Kn_0 = 0,05$ en absence d'écoulement.

Les résultats obtenus pour D_{eff} sont comparés à la valeur de Chapman-Enskog sur la Figure 4.11, cette dernière valeur étant donnée par

$$D_{2/1} = \left(\frac{3\sqrt{\pi}}{2^{5/2}} \frac{\lambda_0^2}{\tau_0} \right) f_D \,, \tag{4.42}$$

où le terme entre parenthèses représente la première approximation du coefficient de diffusion, qui est améliorée en introduisant le coefficient multiplicateur $f_D = 1,018954$ (Bruno, Catalfamo et al. 2006). Comme on pouvait s'y attendre, on retrouve la valeur de Chapman-Enskog avec les simulations par DSMC avec moins de 0,5 % d'écart, lorsque la paroi est complétement spéculaire ($\alpha = 0$). Ce cas de figure est similaire à celui résultant de l'adoption de conditions aux limites périodiques aux parois et par conséquent, à la simulation de la diffusion du gaz dans un domaine infini. L'influence des parois ici est alors nulle et on retrouve bien la valeur du coefficient de Chapman-Enskog. Pour une paroi complétement diffuse ($\alpha = 1$), D_{eff} décroit lorsque le nombre de Knudsen augmente et tend vers la valeur de Chapman-Enskog lorsque $Kn \to 0$.

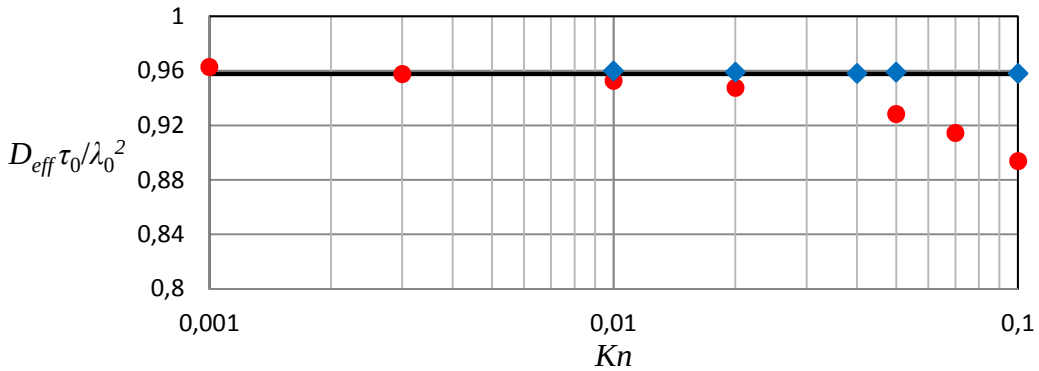

Figure 4.11 Coefficient effectif d'autodiffusion de l'argon : (—) valeur de Chapman-Enskog ; (♦) parois complément spéculaires ($\alpha = 0$) ; (●) parois complément diffuses ($\alpha = 1$).

4.4 Méthode de reconstruction du profil de vitesse

Nous décrivons ici une technique permettant de remonter au profil de vitesse à partir du profil de déplacement tout en prenant en compte les effets diffusifs. Cette méthode ne se limite pas à la contribution asymptotique mais elle prend également en compte la contribution instationnaire qui est non négligeable à des temps courts, notamment à de faibles Kn. Comme on l'a vu dans la partie 4.3.2, le déplacement $s_x(y,t)$ peut être obtenu à partir de la vitesse $u_x(y)$ selon

$$s_x(y,t) = \int_{-L_y/2}^{L_y/2} G(y,y',t)\, u_x(y')\, dy' \tag{4.43}$$

où G est la fonction de Green associée à l'équation (4.25) liant le déplacement et la vitesse. En supposant que le profil de vitesse

$$u_x(y) = \sum_{k=0}^{k=N_u} a_k U_k(y) \tag{4.44}$$

est composé d'une série de fonctions de base $\{U_k\ ; k = 1, 2 ... N_u\}$ (typiquement des fonctions polynomiales), la linéarité caractérisant la relation entre le déplacement $s_x(y,t)$ et vitesse $u_x(y)$ formulée par l'équation (4.43) permet d'écrire :

$$s_x(y,t) = \sum_{k=0}^{k=N_u} a_k S_k(y,t) \quad ; \quad S_k(y,t) = \int_{-L_y/2}^{L_y/2} G(y,y',t) U_k(y') dy' . \tag{4.45}$$

En d'autres termes et en quatre étapes, partant d'un profil de déplacement $s_x(y,t)$ connu (issu d'une mesure par MTV ou d'une simulation par DSMC) :

1) On exprime le profil de vitesse sous la forme d'une superposition de fonctions de bases U_k connues avec des coefficients a_k inconnus.
2) Pour chaque fonction de base U_k on retrouve le déplacement S_k correspondant à l'aide de l'équation (4.43) dont la solution est déjà donnée par l'équation (4.38).
3) Connaissant S_k, on retrouve les coefficients a_k à partir du profil de déplacement $s_x(y,t)$ en minimisant l'erreur quadratique $E_s = \left(s_x(y,t) - \sum_1^{N_U} a_k S_k(y,t) \right)^2$.
4) Les coefficients a_k apparaissant à la fois dans l'expression de la vitesse et du déplacement sont désormais connus, on retrouve finalement le profil de vitesse via

l'équation (4.44).

4.5 Validation numérique de la méthode de reconstruction du profil de vitesse

Dans cette partie, nous allons appliquer la technique de reconstruction (voir partie 4.4) à des déplacements obtenus à l'aide de simulations par DSMC. Les simulations concernent un écoulement de Poiseuille entre deux plaques planes supposées très longues : $L_x \gg L_z \gg L_y$ (Figure 4.3). Nous nous focalisons sur l'influence du degré de raréfaction, la composition du mélange gazeux ainsi que le niveau de bruit que contiennent les données du déplacement sur la précision de la méthode de reconstruction. En effet, les données expérimentales contiennent souvent du bruit (fluctuations d'origines diverses évoquées dans le chapitre 3). Nous étudions ici l'influence de ce paramètre en exploitant le bruit « naturellement » présent dans les résultats de la DSMC. La variation du nombre de molécules traceuses N_T par cellule nous permet de jouer sur ce niveau de bruit contenu dans les données du déplacement que nous traitons ensuite avec la méthode de reconstruction.

Nous présentons ainsi des simulations par DSMC dans la plage de Knudsen $[0,01-0,1]$ réalisées pour trois mélanges gazeux :

- Molécules traceuses de la même espèce que le gaz porteur : $m_2/m_1=1,\ \sigma_1/\sigma_2=1.$
- Argon-Acétone : $m_2/m_1 \approx 1,452$, $\sigma_2/\sigma_1 \approx 1,88$ et $\chi_2 = 0,05$.
- Hélium-Acétone : $m_2/m_1 \approx 14,49$, $\sigma_2/\sigma_1 \approx 3,14$ et $\chi_2 = 0,05.$

Tous les résultats que nous montrons dans cette partie ont été obtenus en utilisant pour la vitesse les simples fonctions de bases suivantes :

$$U_0 = 1, \quad U_2 = \frac{4}{L_y^2}\left(\frac{L_y^2}{4} - y^2\right). \tag{4.46}$$

Ce choix de fonctions de bases « paraboliques » pour approximer le profil de vitesse dans un écoulement de Poiseuille en régime glissant introduit une erreur systématique notamment à des Kn élevés. Nous estimons cependant que ce choix convient pour une simple évaluation de la méthode de reconstruction et qu'une amélioration est possible en ajoutant d'autres fonctions de base plus complexes (comme des polynômes d'ordre plus élevé par exemple).

Pour chaque simulation par DSMC, une fois que le régime stationnaire est établi, on initialise l'origine temporelle et à $t=0$ on marque une ligne de molécules au centre du canal

le long de l'axe y. Une série de N_s déplacements $s_x(y,t_k)$ de molécules marquées est enregistrée aux instants $\{t_k\ ;k=1,2,...N_s\}$ espacés d'un même intervalle de temps et ce durant une longue période (de l'ordre de $3000\,\tau_0$). Pour chaque déplacement $s_x(y,t_k)$, la méthode de reconstruction est utilisée pour obtenir une estimation $u_x^{(k)}(y)$ du profil de vitesse $u_x(y)$. Cette dernière vitesse, considérée comme étant la vitesse de référence, est obtenue en moyennant les vitesses moléculaires dans chaque cellule. La comparaison de chaque profil estimé $u_x^{(k)}(y)$ au profil de vitesse de référence $u_x(y)$ donne lieu à N_s erreurs de reconstruction, calculées comme suit :

$$\varepsilon_v(t_k)=\frac{1}{u_x(y=0)}\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}\left|u_x^{(k)}(y)-u_x(y)\right|dy\,. \tag{4.47}$$

Les résultats ainsi obtenus sont regroupés dans le Tableau 4.2 où l'erreur minimale $\varepsilon_v(\min)$, l'erreur maximale $\varepsilon_v(\max)$ et l'erreur moyenne $\langle\varepsilon_v\rangle$ des N_s déplacements sont représentées en fonction de Kn, de la composition du gaz et du niveau de bruit ε_d des données du déplacement, ce dernier paramètre étant calculé selon :

$$\varepsilon_d^2=\frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2}\left[s_x(y,t_k)-a_0S_0(y,t_k)-a_2S_2(y,t_k)\right]^2dy. \tag{4.48}$$

Le paramètre ε_d représente ainsi la dispersion du profil de déplacement $s_x(y,t_k)$ par rapport au lissage obtenu avec les fonctions de base.

Mono espèce				
Kn	D_{eff}	N_T / *maille*	$a\left(\varepsilon_d = a\sqrt{t}\right)$	$\varepsilon_v(\min), \langle\varepsilon_v\rangle, \varepsilon_v(\max)$
0,10	0,894	50	0,194	0,01; 1,7; 5,7
0,10	0,894	500	0,06	0,01; 0,52; 1,6
0,10	0,894	5000	0,019	0,01; 0,15; 0,47
0,05	0,928	50	0,198	0,02; 0,30; 1,40
0,05	0,928	500	0,06	0,006; 0,07; 0,2
0,04	0,933	50	0,198	0,06; 0,16; 0,46
0,04	0,933	500	0,06	0,007; 0,05; 0,14
0,02	0,947	50	0,20	0,006; 0,03; 0,10
0,02	0,947	500	0,06	0,006; 0,01; 0,03
0,01	0,953	50	0,21	0,004; 0,01; 0,02
0,01	0,953	500	0,07	0,006; 0,01; 0,02

Argon-Acétone				
0,10	0,420	500	0,04	0,01; 0,19; 0,65
0,05	0,422	250	0,06	0,007; 0,04; 0,13
0,04	0,425	200	0,07	0,005; 0,03; 0,10
0,02	0,430	100	0,10	0,004; 0,01; 0,02
0,01	0,440	50	0,17	0,006;0,008; 0,014

Acétone-Hélium				
0,10	0,142	500	0,025	0,01; 0,03; 0,10
0,05	0,144	250	0,04	0,006; 0,01; 0,03
0,04	0,145	200	0,05	0,004; 0,008; 0,014
0,02	0,146	100	0,09	0,003; 0,005; 0,008
0,01	0,147	50	0,13	0,005; 0,007; 0,01

Tableau 4.2 Erreur obtenue sur la vitesse reconstruite en fonction du nombre de Knudsen, du niveau de bruit et de la composition du mélange gazeux. Pour tous les cas présentés, $\chi_2 = 0,05$.

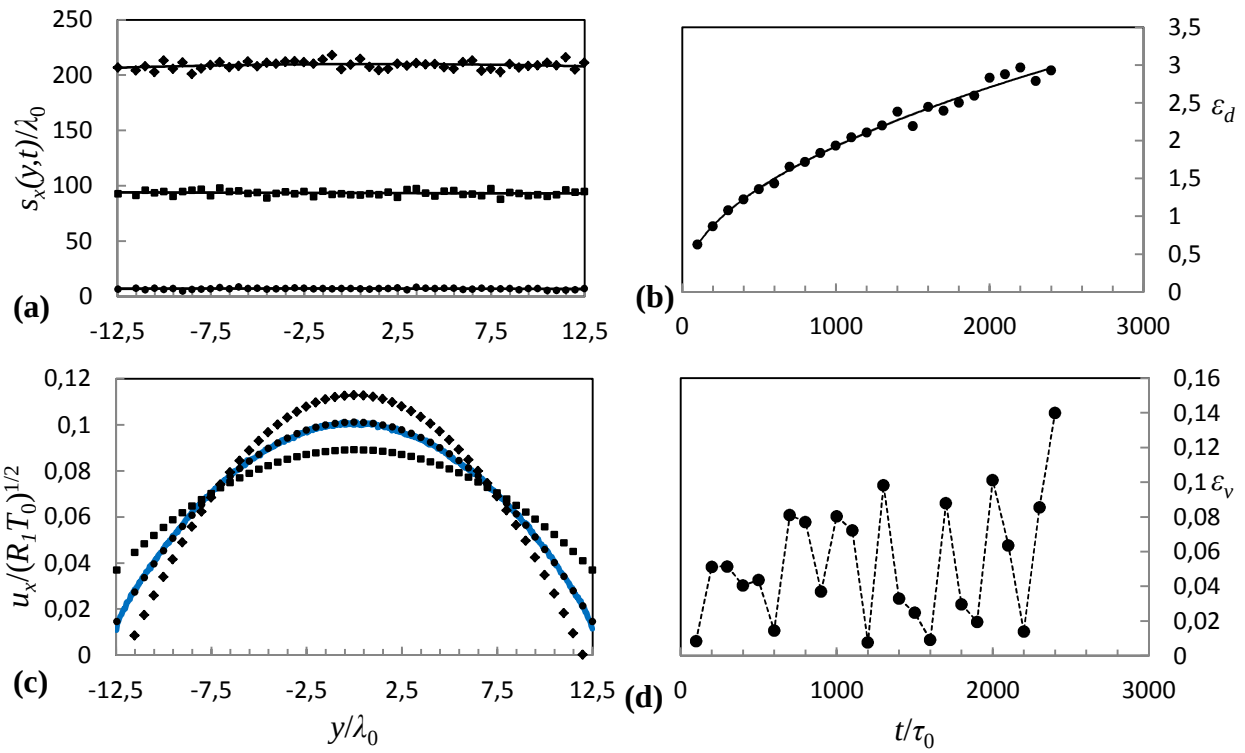

Figure 4.12 Résultats de DSMC pour un écoulement mono-espèce à $Kn = 0{,}1$.
(**a**) Profils de déplacement issus de la DSMC à $t_k = 100\tau_0$ (●) ; à $t_k = 1500\tau_0$ (■) ; à $t_k = 3000\tau_0$ (♦) ; (—) lissage avec les fonctions de base $a_0 S_0(y,t) + a_2 S_2(y,t)$.
(**b**) Evolution temporelle de $\varepsilon_d(t)$ donnée par la DSMC (●) ; (—) lissage avec la fonction $\varepsilon_d(t) = a\sqrt{t - t_{tag}}$.
(**c**) profils de vitesse reconstruits $u_x^k(y,t_k)$ à partir des déplacements à $t_k = 100\tau_0$ (●) ; à $t_k = 1500\tau_0$ (■) ; à $t_k = 3000\tau_0$ (♦) ; (—) vitesse de référence issue de la DSMC.
(**d**) évolution de l'erreur de reconstruction ε_v avec le temps.

Rappelons que $s_x(y,t_k)$ représente la moyenne des déplacements moléculaires, dont la variance augmente linéairement avec le temps, suivant la relation d'Einstein (4.41). De ce fait, $\varepsilon_d(t)$ évolue avec le temps suivant la fonction $\varepsilon_d(t) = a\sqrt{t}$, comme le montre la Figure 4.12-b. L'amplitude *a* de la dispersion est inversement proportionnelle à la racine carrée du nombre de molécules utilisées pour estimer les déplacements $s_x(y,t_k)$, comme le montre le Tableau 4.2 où, dans le cas de simulations mono-espèce à $Kn = 0{,}1$, l'augmentation du nombre de molécules par cellule de 50 à 5000 permet de réduire le niveau du bruit d'un facteur 10.

L'influence du niveau du bruit $\varepsilon_d(t)$ sur la reconstruction de la vitesse dépend fortement du degré de raréfaction, c'est-à-dire qu'à des Kn élevés, de l'ordre de 0,1, le profil de déplacement est réduit à sa contribution asymptotique $s_\infty(y)$, qui présente une forme assez plate facilement cachée par le bruit statistique (ou le bruit expérimental). Cela se traduit par une erreur de reconstruction ε_v importante (Tableau 4.2). Le même cas (mono-espèce à

$Kn = 0{,}1$) mais avec un déplacement obtenu avec une meilleure précision, donne une erreur de reconstruction bien moins importante. Les résultats obtenus ici nous conduisent à considérer qu'une reconstruction précise du profil de vitesse à partir du profil de déplacement nécessite que l'amplitude du bruit que contient le profil de déplacement $s_x(y,t_k)$, exprimée par $\varepsilon_d(t)/\lambda_0$, soit petite devant la déformation du profil de déplacement caractérisé par $\Delta s'_\infty$ (Figure 4.8).

Un exemple montrant la combinaison d'un nombre Knudsen relativement élevé et d'un coefficient de diffusion important est montré sur la Figure 4.12. La reconstruction de profils de vitesse à partir de profils de déplacements présentant une forme assez plate et un niveau de bruit important s'avère difficile. Pour un même niveau de bruit et un nombre de Knudsen moins élevé (toujours dans le régime glissant), la reconstruction présente une erreur ε_v considérablement plus faible. Dans ce dernier cas, le profil de déplacement étant beaucoup plus prononcé, la reconstruction est moins sensible au bruit statistique comme le montre la Figure 4.13.

La comparaison des erreurs de reconstruction pour les trois compositions de gaz étudiées montre que, comme on pouvait s'y attendre, l'erreur de reconstruction ε_v est d'autant plus grande que le coefficient de diffusion est élevé.

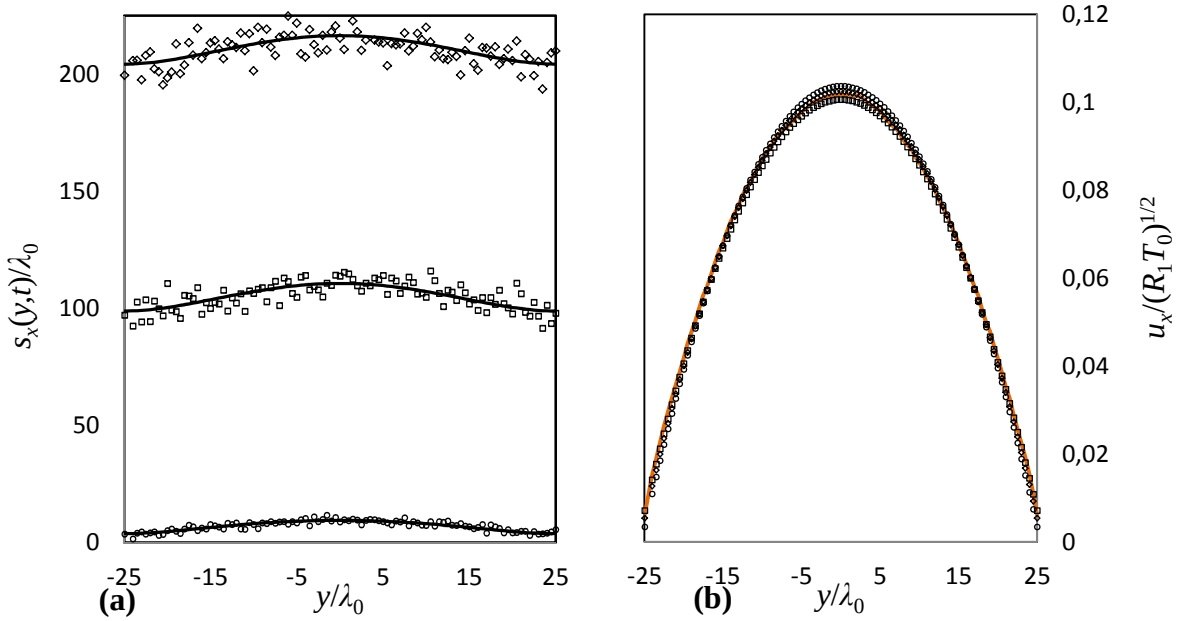

Figure 4.13 Résultats de DSMC pour un écoulement de mélange argon-acétone à $Kn = 0{,}02$.
(**a**) profils de déplacement issus de la DSMC à $t_k = 100\tau_0$ (○) ; à $t_k = 1500\tau_0$ (□) ; à $t_k = 3000\tau_0$ (◊); (—) lissage avec les fonctions de base $a_0S_0(y,t) + a_2S_2(y,t)$.
(**b**) profils de vitesse reconstruits $u_x^k(y,t_k)$ à partir des déplacements à $t_k = 100\tau_0$ (○) ; à $t_k = 1500\tau_0$ (□) ; à $t_k = 3000\tau_0$ (◊) ; (—) vitesse de référence DSMC.

Le développement réalisé dans ce chapitre correspond à un cas limite où la fraction de molécules traceuses χ_2 est négligeable. Ce cas de figure peut ne pas correspondre à certaines configurations expérimentales, notamment en écoulements gazeux où le signal de luminescence (souvent faible) est amélioré en augmentant la concentration en molécules traceuses (Samouda, Colin et al. 2015). Une extension de l'approche précédente au cas général où les molécules traceuses sont présentes en quantité quelconque est possible. Dans ce cas, l'équation (4.10) est remplacée par un système de deux équations de Boltzmann stationnaires décrivant la dynamique des molécules du gaz porteur (indice 1) et de celles du gaz traceur non marquées (indice 2). La description lagrangienne du mouvement des molécules traceuses marquées (indice *T*) est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{\partial f_T}{\partial t} + \mathrm{v} \cdot \frac{\partial f_T}{\partial \mathrm{r}} = Q_{21}(f_T, f_1) + Q_{22}(f_T, f_2)\,. \tag{4.49}$$

Comme nous l'avons fait précédemment, il est possible de remplacer cette dernière équation par une équation d'advection-diffusion de la même forme que l'équation (4.12), mais où le coefficient de diffusion est celui du traceur dans le mélange traceur-gaz porteur ($D_{2/1,2}$). Ce dernier est donné en fonction du coefficient de diffusion du gaz traceur dans le gaz porteur $D_{2/1}$ et du coefficient d'autodiffusion du traceur $D_{2/2}$ par (Poling, Prausnitz et al. 2000).

$$\frac{1}{D_{2/1,2}} = \frac{\chi_1}{D_{2/1}} + \frac{\chi_2}{D_{2/2}}\,. \tag{4.50}$$

Ainsi le reste du développement, excepté le coefficient de diffusion, reste inchangé.

4.6 Conclusion

Les observations expérimentales ainsi que les simulations par DSMC mettent en évidence les effets de la diffusion qui affecte la dynamique des molécules traceuses. Ces effets se manifestent par un aplatissement du profil de déplacement des molécules traceuses qui augmente proportionnellement au carré du nombre de Knudsen et au coefficient de diffusion.

La comparaison entre la simulation par DSMC et l'utilisation de l'équation d'advection-diffusion montre que cette dernière équation est capable de décrire fidèlement le déplacement « complexe » des molécules traceuses si l'on modifie le coefficient de diffusion pour prendre en compte la présence des parois.

Une méthode de reconstruction du profil de vitesse à partir du profil de déplacement basée sur l'équation d'advection-diffusion a été développée et testée sur des déplacements obtenus par DSMC et contenant un bruit statistique contrôlable. Ces tests ont montré que la

reconstruction du profil de vitesse est difficile à des Kn de l'ordre 0,1 et pour des déplacements contenant un niveau de bruit élevé. Néanmoins, une reconstruction précise est obtenue à des Kn légèrement moins élevés appartenant au régime glissant.

Le développement théorique réalisé dans ce chapitre, ainsi que la validation numérique de la méthode de reconstruction, nécessitent une confrontation à des mesures expérimentales. Nous proposons donc dans le chapitre suivant une analyse expérimentale par la technique de MTV des effets diffusifs au sein d'un écoulement de Poiseuille confiné.

References

Bird, G. (1994). Molecular gas dynamics and the direct simulation of gas flows. New York, Oxford Science Publications.

Bird, G. A. (1998). "Recent advances and current challenges for DSMC." Computers & Mathematics with Applications **35**: 1-14.

Bruno, D., C. Catalfamo, A. Laricchiuta, D. Giordano and M. Capitelli (2006). "Convergence of Chapman-Enskog calculation of transport coefficients of magnetized argon plasma." Physics of Plasmas **13**(7): 072307.

Cercignani, C. (1988). The Boltzmann Equation and Its Applications, Springer New York.

Chen, F., H. Li and H. Hu (2015). "Molecular tagging techniques and their applications to the study of complex thermal flow phenomena." Acta Mechanica Sinica **31**(4): 425-445.

Crank, J. (1975). The mathematics of diffusion Clarendon press

Dongari, N., A. Sharma and F. Durst (2009). "Pressure-driven diffusive gas flows in micro-channels: from the Knudsen to the continuum regimes." Microfluidics and Nanofluidics **6**(5): 679-692.

Elsnab, J. R. (2008). Mean velocity profile in a high aspect ratio microchannel PHD, University of Utah.

Ferziger, J. H. and H. G. Kaper (1972). Mathematical Theory of Transport Processes in Gases.

Kaskan, W. E. and A. B. F. Duncan (1950). "Mean Lifetime of the Fluorescence of Acetone and Biacetyl Vapors." The Journal of Chemical Physics **18**(4): 427-431.

Neufeld, P. D., A. R. Janzen and R. A. Aziz (1972). "Empirical Equations to Calculate 16 of the Transport Collision Integrals Ω(l, s)* for the Lennard-Jones (12–6) Potential." The Journal of Chemical Physics **57**(3): 1100-1102.

Poling, B. E., J. M. Prausnitz and J. P. O'Connell (2000). The properties of gases and liquids, McGRAW-HILL.

Samouda, F., S. Colin, C. Barrot, L. Baldas and J. Brandner (2015). "Micro molecular tagging velocimetry for analysis of gas flows in mini and micro systems." Microsystem Technologies **21**(3): 527-537.

Schembri, F., H. Bodiguel and A. Colin (2015). "Velocimetry in microchannels using photobleached molecular tracers: a tool to discriminate solvent velocity in flows of suspensions." Soft Matter **11**(1): 169-178.

Shen, C. (2005). Rarefied Gas Dynamics Fundamentals, Simulations and Micro Flows, Springer.

Veltzke, T., M. Baune and J. Thoming (2012). "The contribution of diffusion to gas microflow: An experimental study." Physics of Fluids **24**(8): 082004.

Venkattraman, A., A. A. Alexeenko, M. A. Gallis and M. S. Ivanov (2012). "A comparative study of no-time-counter and majorant collision frequency numerical schemes in DSMC." AIP Conference Proceedings **1501**(1): 489-495.

Chapitre 5

Etude expérimentale d'écoulements gazeux confinés

Dans ce chapitre, nous abordons l'étude d'écoulements gazeux dans un canal rectangulaire d'un millimètre de hauteur. Nous accordons une attention particulière aux effets diffusifs, qui, grâce à la technique de reconstruction précédemment développée, seront pris en compte pour l'analyse et le traitement des données expérimentales obtenues par MTV. Nous proposons également quelques perspectives qui doivent permettre de pouvoir analyser des écoulements glissants avec la technique de MTV.

5.1 Configuration expérimentale

Dans cette partie, nous utilisons le banc de MTV pour analyser les écoulements gazeux confinés. Le banc d'essais étant déjà décrit dans la partie 3.1, on se contente dans cette partie de montrer un schéma global et simplifié du banc (Figure 5.1) et de donner les caractéristiques principales du canal d'écoulement utilisé.

5.1.1 Protocole expérimental

Le gaz porteur (Ar, He… etc.) sortant du réservoir d'alimentation (Figure 5.1) traverse un réservoir permettant de réduire les fluctuations de pression avant d'être ensemencé en acétone au niveau du bain d'acétone liquide. Ce dernier est maintenu à une température d'environ 10 °C et à une pression légèrement au-dessus de la pression régnant dans le canal. Dans ces conditions, la fraction molaire d'acétone, obtenue avec l'équation (3.1), est typiquement $\chi_2 \approx 0{,}15$. Le mélange gazeux arrivant dans le réservoir d'entrée traverse le canal pour ensuite arriver dans le réservoir de sortie. Les deux réservoirs sont équipés de capteurs de pression de type capacitif (*Capacitive Gauge* - CG) de marque Inficon®, dont les propriétés sont données dans le Tableau 5.1.

Inficon® CG 025-1000 Torr	
Pression pleine échelle (Pa)	1,333 105
Pression maximale admissible (Pa)	1,333 105
Pression minimale (Pa)	1,333 104
Précision	0,2 % de la lecture
Résolution	0,0015 % de la pleine échelle

Tableau 5.1 Caractéristiques des capteurs de pression utilisés

Le mélange gazeux sortant du réservoir de sortie est dirigé soit vers l'extérieur via la valve V4 dans le cas d'écoulement à pression supérieure à la pression ambiante, soit vers la pompe à vide via la valve V5 lors d'écoulements à basse pression.

Ne disposant pas de mesures de pressions locales à l'entrée et à la sortie du canal, seules les pressions des réservoirs amont et aval sont mesurées. La différence entre ces deux pressions est de l'ordre de 1 kPa mais la précision absolue des capteurs de pression lorsqu'on est proche de la pression atmosphérique est de l'ordre de 0,2 kPa. D'autre part, ces capteurs ne donnent pas une mesure de la pression au niveau des sections d'entrée et de sortie du canal, c'est pourquoi les pressions relevées par ces capteurs ne sont utilisées que pour le paramétrage du banc d'essais, notamment pour vérifier la stabilité de la pression dans les réservoirs amont et aval.

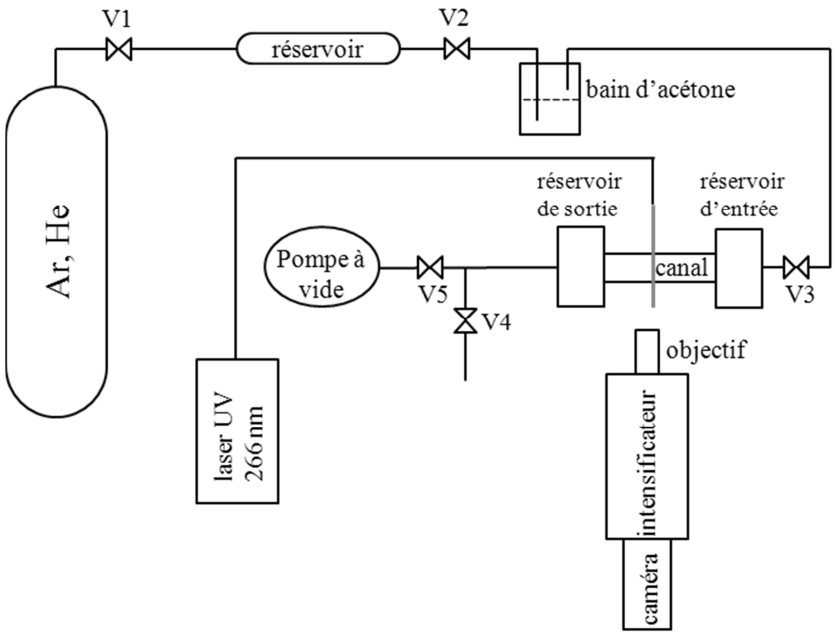

Figure 5.1 Schéma du banc d'essais de MTV

Avant de commencer chaque test on met le circuit de gaz sous vide pendant une trentaine de minutes et on génère ensuite l'écoulement du mélange à travers le canal comme décrit plus haut. Une fois les pressions aval et amont stabilisées aux valeurs désirées grâce aux vannes V1, V3 et V4/V5, l'acquisition des images (images initiales, images différées) peut commencer. L'acquisition se fait avec la méthode d'intégration (voir partie 3.2). Lors de l'acquisition du signal initial, l'IRO est ouvert 90 ns avant le déclenchement du pulse laser et pendant $\Delta t_g = 100\,\text{ns}$. Pour le profil initial, on moyenne $N_i = 10$ images, où chaque image est le résultat intégré de $N_l = 100$ pulses laser. On prend ensuite une séquence d'images différées à différents instants après le pulse laser dans un intervalle de temps compris entre 30

µs et 150 µs, avec un pas de 20 µs. Les paramètres d'acquisition d'une seule image du profil différé sont $N_l = 100$ et $N_i = 100$. La durée d'une acquisition est donnée par $\Delta t_{acq} = N_i N_l / f_l$; elle est typiquement de 2 min pour l'image du profil initial et de 20 min pour l'image du profil différé (voir partie 3.3.4.1). La durée est plus longue pour cette dernière car elle est basée sur le signal de phosphorescence, significativement plus faible que le signal de fluorescence sur lequel est basée l'image du profil initial, ce qui nécessite d'acquérir un plus grand nombre de signaux pour obtenir une image exploitable. Le système d'acquisition utilisé dans cette étude, le binning étant activé, permet de couvrir la hauteur du canal avec une soixantaine de pixels. La taille d'un pixel étant de 16,01 µm.

5.1.2 Caractéristiques du canal

Le canal utilisé dans cette étude a été réalisé dans le cadre d'une précédente thèse de l'ICA (Samouda 2012) à l'Institut Technologique de Karlsruhe (KIT). Dans cette partie, nous en donnons les principales caractéristiques.

5.1.2.1 Dimensions et étanchéité

Le canal, fabriqué en Polyétheréthercétone (PEEK), contient deux lentilles en Suprasil® offrant deux accès optiques verticaux au faisceau laser (Figure 5.2). Le Suprasil®, qui est un type spécifique de silice fondue, a été choisi comme matériau des lentilles pour sa bonne transparence aux UV et sa faible luminescence propre suite à une sollicitation par un rayonnement UV. Les deux parois latérales sont fabriquées en verre borosilicate pour permettre un accès optique à la caméra. Le canal est également équipé de trois thermocouples. Il a une longueur $L_x = 200\,\text{mm}$, une largeur $L_z = 5\,\text{mm}$ et une hauteur $L_y = 1\,\text{mm}$.

L'étanchéité au niveau de la partie latérale du canal est assurée par un joint d'étanchéité placé entre le corps du canal en PEEK et la paroi en verre. Des joints toriques sont également utilisés pour assurer l'étanchéité entre les lentilles et le corps du canal. Malgré tous ces efforts pour obtenir une bonne étanchéité, le canal présente des fuites résiduelles significatives. La pression la plus basse que l'on peut atteindre en utilisant une pompe à vide est de l'ordre de 100 Pa et quand on arrête la pompe à vide, la pression remonte jusqu'à la pression atmosphérique en quelques minutes. Des tests réalisés avec un détecteur de fuite à l'hélium montrent que le canal présente des fuites importantes au niveau des fenêtres latérales en verre et des lentilles. La présence de fuites peut introduire des perturbations non négligeables dans l'écoulement mais surtout, le canal non étanche peut laisser entrer des molécules d'oxygène (notamment en fonctionnement à basse pression) et ces dernières, même en faible quantité,

contribuent à l'extinction du signal de phosphorescence via le processus d'extinction partielle décrit dans la partie 3.3.

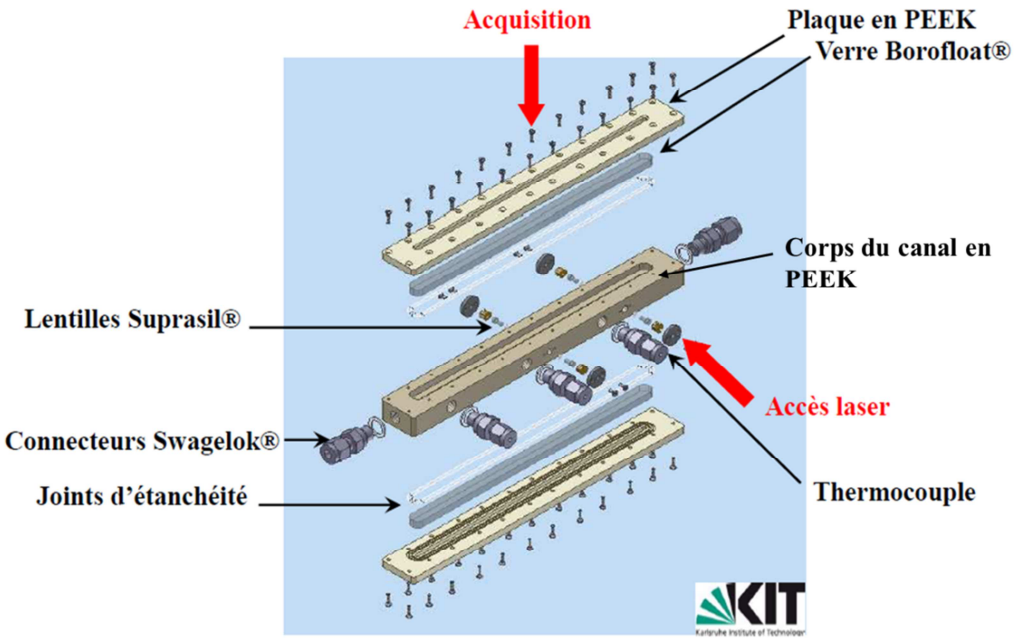

Figure 5.2 Géométrie du canal

5.1.2.2 Efforts de flexion et déformation du canal

Lors d'écoulement à basse pression, l'environnent extérieur au canal étant à la pression atmosphérique, le canal est donc soumis à une différence de pression (entre l'intérieur et l'extérieur du canal) qui engendre un effort de flexion sur ses parois. En effet, la mesure de la hauteur du canal lorsque la pression à l'intérieur de ce dernier varie montre des variations importantes : elle diminue de 20 % ($\Delta L_y = 0,2\,\text{mm}$) dans sa partie centrale lorsque la pression du canal passe de 1 bar à 0,05 bar (Figure 5.3). Un calcul par éléments finis a confirmé que le corps du canal en PEEK se déforme sous l'effet de la pression. Les résultats de ce calcul montrent cependant une déformation plus importante ($\Delta L_y = 0,8\,\text{mm}$) que celle observée expérimentalement. Ceci s'explique par le fait que lors du calcul par éléments finis, seul le corps du canal en PEEK est modélisé. L'effet raidisseur résultant du serrage par les plaques latérales en PEEK et du blocage exercé par la fenêtre en verre insérée dans un lamage du corps de canal n'a pas été pris en compte, ce qui explique la surestimation du calcul de la déformation.

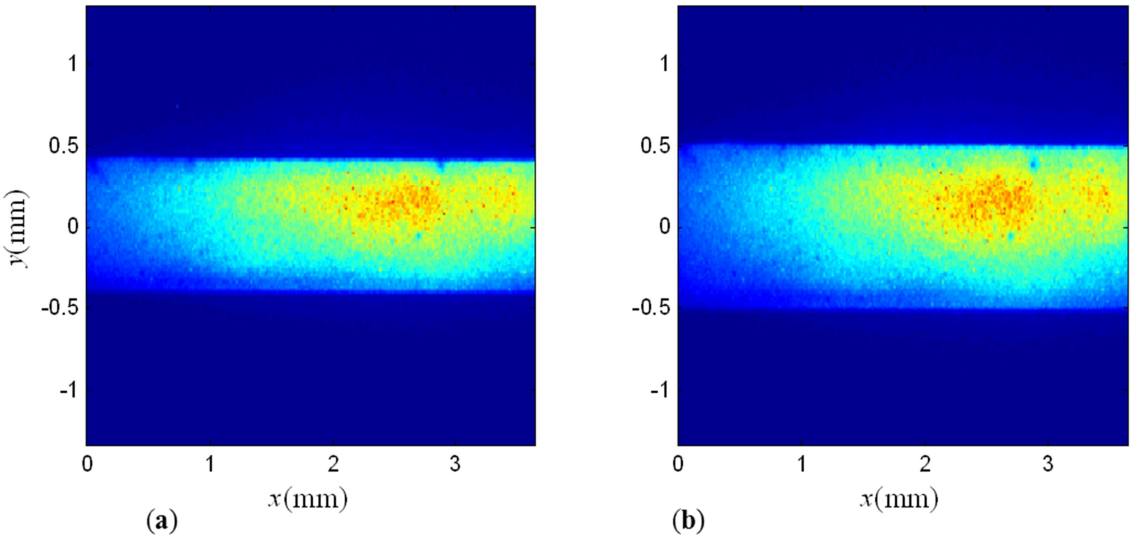

Figure 5.3 Images brutes montrant le profil du canal : (**a**) image à $p = 0,05\,\text{bar}$, $L_y = 0,8109$ mm ; (**a**) image à $p = 1\,\text{bar}$, $L_y = 1,006$ mm.

Cette déformation du canal induit par la baisse de la pression implique des déplacements au niveau des joints, ce qui contribue à augmenter les fuites et ainsi à ajouter une difficulté supplémentaire lors de l'analyse d'écoulements à basse pression.

Comme le déplacement des parois (de l'ordre de 0,1 mm) est faible devant la longueur du canal ($200\,\text{mm}$), nous supposons que le canal reste localement plan même à basse pression. Pour chaque expérience de MTV, nous déterminons les positions des parois (supérieure et inférieure) avec une méthode optique (voir partie 5.3.1) et nous calculons la hauteur L_y du canal correspondante qui sera ensuite utilisée dans l'analyse de l'écoulement.

5.2 Champs de vitesse et transport de molécules marquées

Dans cette partie, nous donnons la solution analytique du champ de vitesse pour un écoulement de Poiseuille non glissant dans un canal de section rectangulaire. Nous décrivons ensuite le transport de molécules initialement marquées au centre du canal sous l'effet de ce champ de vitesse.

5.2.1 Distribution de vitesse

Soit un écoulement stationnaire dans un canal de section rectangulaire supposé long, c'est-à-dire tel que $L_x \gg L_y$ et $L_x \gg L_z$. On suppose que l'écoulement est généré par un gradient de pression le long de l'axe x dans des conditions isothermes. En se positionnant loin des extrémités du canal, avec l'hypothèse d'écoulement laminaire, les équations de Navier-Stokes décrivant le problème se réduisent à :

$$\mu\left[\frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2}+\frac{\partial^2 u_x}{\partial z^2}\right]-\frac{\partial p}{\partial x}=0\,. \tag{5.1}$$

On y associe des conditions aux limites d'adhérence aux parois :

$$u_x\left(y,z=\pm L_z/2\right)=0,\ u_x\left(y=\pm L_y/2,z\right)=0 \tag{5.2}$$

et de symétrie au centre du canal :

$$\frac{\partial u_x(y=0,z)}{\partial z}=0,\qquad \frac{\partial u_x(y,z=0)}{\partial y}=0. \tag{5.3}$$

La résolution du système d'équations précédentes conduit à (Spiga and Morini 1994)

$$u_x(y,z)=\frac{dp}{dx}\frac{4\pi^2}{\mu}\sum_{n=1}^{\infty}\sum_{m=1}^{\infty}W_{n,m}\sin\left(n\pi(\frac{y}{L_y}-\frac{1}{2})\right)\sin\left(m\pi(\frac{z}{L_z}-\frac{1}{2})\right) \tag{5.4}$$

avec

$$W_{n,m}=\frac{1}{n\,m}\frac{\left(1-(-1)^n\right)\left(1-(-1)^m\right)}{\pi^2\left[(n/L_y)^2+(m/L_z)^2\right]}\,. \tag{5.5}$$

La solution donnée par l'équation (5.4) appliquée à notre cas (facteur de forme de la section $a=L_z/L_y=5$) est montrée sur la Figure 5.4.

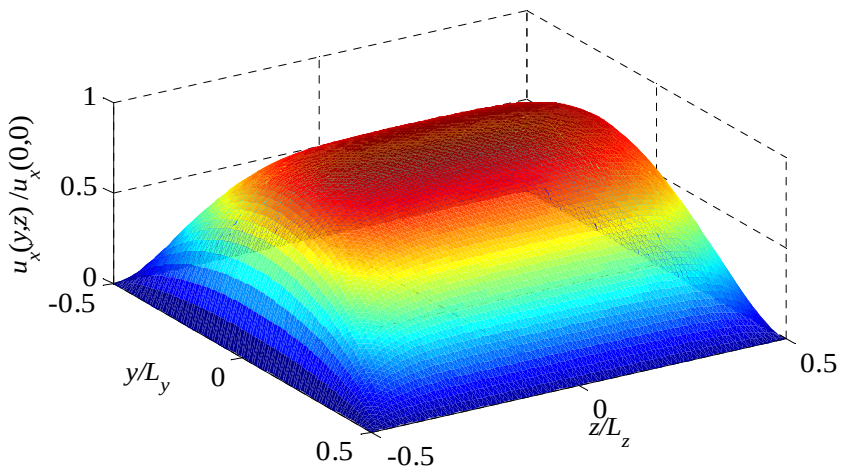

Figure 5.4 Champs de vitesse dans une section du canal, normalisée par la vitesse au centre du canal

La distribution de vitesse présente peu de variations le long de l'axe *z* dans la partie centrale du canal, comme le montre la Figure 5.5-b. Le profil de vitesse le long de l'axe *y* au centre du canal, lorsque $z=0$, est montré sur la Figure 5.5-a (ligne noire continue). Comme nous l'avons précédemment mentionné (partie 4.3.1), lors des mesures par MTV, le profil de déplacement enregistré correspond à un déplacement moyenné dans une zone limitée par la profondeur de champ de la caméra utilisée. Dans le cas présent, la profondeur de champ de la

caméra ICCD est inférieure à un millimètre ($<\frac{1}{5}L_z$). Le profil selon y de la vitesse moyenne sur une zone couvrant deux cinquièmes de la largeur du canal, donnée sous forme adimensionnelle par

$$\overline{u}_x(y) = \frac{1}{u_x(0,0)} \frac{\int_{-L_z/5}^{L_z/5} u_x(y,z)dz}{\frac{2L_z}{5}}, \tag{5.6}$$

est comparée au profil de vitesse au centre du canal sur la Figure 5.5-a. On constate que l'écart entre les deux profils de vitesse est assez faible (inférieur à 1%), ce qui permet de conclure que lorsque la caméra est focalisée sur le centre du canal ($z=0$), la vitesse « moyenne » mesurée par MTV est assez proche de la vitesse réelle sur l'axe central du canal, en $z=0$.

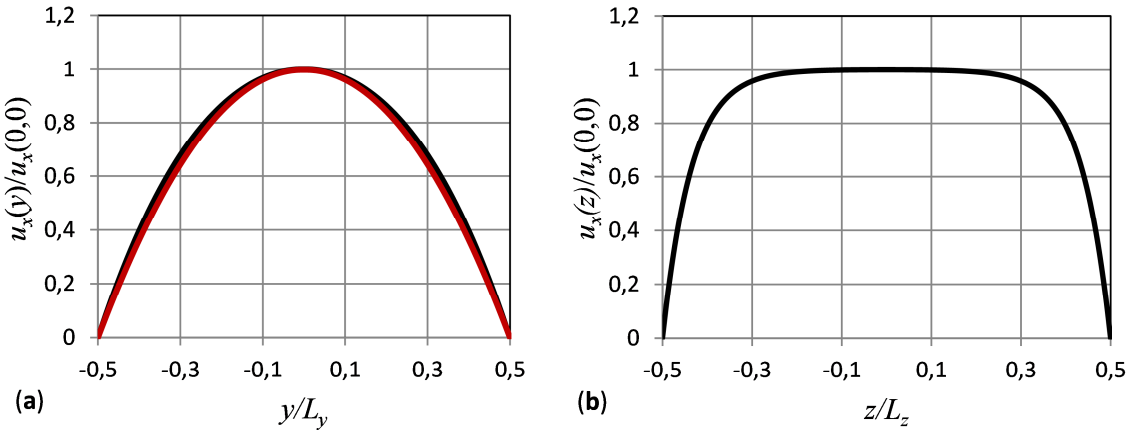

Figure 5.5 Profils de vitesse dans la partie centrale du canal :
(**a**) (**—**) profil de vitesse au centre du canal le long de l'axe y : $u_x(y,z=0)/u_x(y=0,z=0)$;
(**—**) profil de vitesse moyenne dans la partie centrale du canal dans une bande couvrant $\frac{2}{5}L_z$: $\overline{u}_x(y)$;
(**b**) (**—**) profil de vitesse dans le plan de symétrie du canal le long de l'axe z : $u_x(y=0,z)/u_x(y=0,z=0)$.

5.2.2 Transport de molécules marquées

Les molécules marquées initialement par le laser dans une zone au centre du canal sont transportées dans le canal sous l'effet combiné du champ de vitesse $u_x(y,z)$ et de la diffusion. Dans le régime continu, ce champ de vitesse est donné par l'équation (5.4) et peut-être relié à la probabilité de densité de molécules tracées $P(x,y,z,t)$ par l'équation d'advection-diffusion :

$$\frac{\partial P}{\partial t} + u_x(y,z)\frac{\partial P}{\partial x} = D_{2/1,2}\left(\frac{\partial^2 P}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 P}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 P}{\partial z^2}\right). \tag{5.7}$$

Pour la résolution de cette équation, des conditions aux limites supposant qu'aucune production ni extinction de molécule lumineuse ne s'opère aux niveaux des parois du canal

sont adoptés (voir partie 3.3.4.4) :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial P}{\partial x} = 0, & x = \pm L_x/2 \\ \dfrac{\partial P}{\partial y} = 0, & y = \pm L_y/2 \\ \dfrac{\partial P}{\partial z} = 0, & z = \pm L_z/2 \end{cases} . \tag{5.8}$$

On considère une distribution initiale uniforme dans le cylindre de section circulaire marqué par le laser, dont l'axe est confondu avec l'axe O*y* (voir paragraphe 4.3.1), l'origine O étant définie au centre de la section :

$$P_0(x,z) = \begin{cases} \dfrac{1}{V_0} & (x,y,z) \in \xi_0 \\ 0 & (x,y,z) \notin \xi_0 \end{cases} \tag{5.9}$$

avec $\xi_0 = \left\{(x,y,z) \in \mathbb{R}^3 : x^2 + z^2 < r_0^{\,2},\ \ -L_y/2 < y < L_y/2\right\}$ et $V_0 = \pi r_0^2 L_y$ représente le volume du cylindre.

Dans l'équation (5.7), $D_{2/1,2}$ est le coefficient de diffusion de l'acétone (indice 2) dans le mélange gaz porteur-acétone (indices 1,2) donné par l'équation (4.50). Le coefficient de diffusion binaire entre deux espèces 1 et 2 est quant à lui donné dans le chapitre 4 (équation 4.13).

Dans cette partie, nous utilisons une formulation du coefficient de diffusion basé sur le modèle moléculaire de Lennard-Jones qui est différente de la formulation basée sur une hypothèse de sphère dure utilisée dans le chapitre 4. Cette formulation de type sphère dure avait été choisie afin de permettre une comparaison des prédictions de l'équation d'advection-diffusion avec des résultats de DSMC obtenus avec un modèle de collision de sphère dure. Ici, l'intégrale de collision est donnée pour le modèle de Lennard-Jones par la relation empirique (Neufeld, Janzen et al. 1972) :

$$\Omega_D = \frac{A}{(T^*)^B} + \frac{C}{\exp(DT^*)} + \frac{E}{\exp(FT^*)} + \frac{G}{\exp(HT^*)} \tag{5.10}$$

avec :

$$T^* = k_b T / \varepsilon_{1,2} \qquad A = 1{,}06036 \qquad B = 0{,}1560$$
$$C = 0{,}19300 \qquad D = 0{,}47635 \qquad E = 1{,}03587$$
$$F = 1{,}52996 \qquad G = 1{,}76474 \qquad H = 3{,}89411$$

où $\varepsilon_{1,2}$ est le potentiel de Lennard-Jones des deux molécules (Poling, Prausnitz et al. 2000). En l'absence de données concernant l'acétone, nous utilisons un coefficient de corrélation f_D (équation 4.13) égal à l'unité.

L'équation (5.7) avec les conditions aux limites (5.8) et la condition initiale (5.9) est résolue numériquement avec la méthode des différences finies au second ordre. Le terme advectif de l'équation (5.7) est discrétisé avec un schéma décentré « *upwind* » tandis que le terme diffusif est discrétisé avec un schéma centré (Ferziger and Peric 2002). L'intégration temporelle est faite en utilisant le schéma explicite d'Euler. Cette résolution numérique présente une erreur de troncature de l'ordre de $\vartheta(\Delta t, \Delta x^2)$ et l'analyse de stabilité de Von Neumann donne ce schéma stable sous la condition :

$$\left(\frac{u_x \Delta t}{\Delta x}\right) \leq \frac{2D_{2/1,2}\Delta t}{\Delta x^2} \leq 1 \tag{5.11}$$

Un exemple de distribution de molécules marquées dans le plan de symétrie du canal à $t_f = 100\mu s$ est montré sur la Figure 5.6 qui représente $P(x, y, z = 0, t_f = 100\mu s)$. Sur cette dernière figure on peut y voir les effets des deux processus diffusif et advectif sur la distribution de molécules marquées. La simulation numérique de la distribution de molécules marquées a une double utilité : d'une part elle nous permet de planifier a priori les expériences de MTV, d'autre part elle permet de générer des images numériques contrôlées qui vont servir de modèle pour tester les méthodes de post-traitement d'images que nous développons.

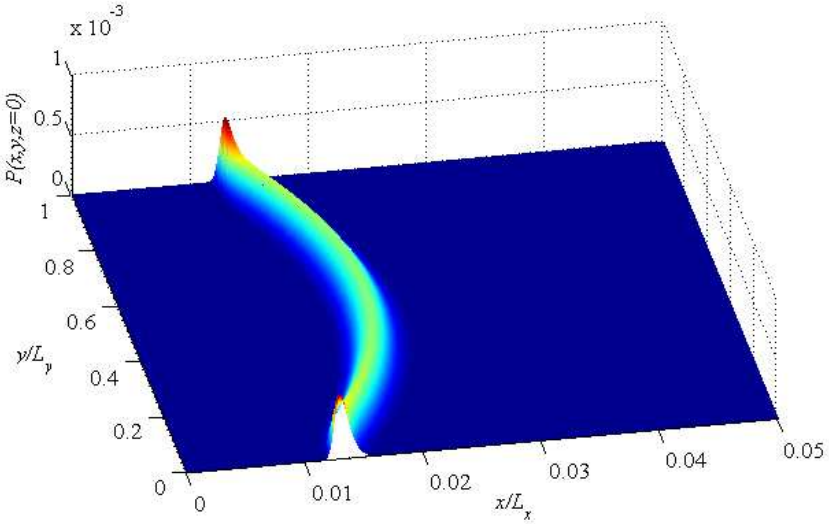

Figure 5.6 Distribution de molécules marquées dans le plan de symétrie du canal ($z = 0$) à $t_f = 100\mu s$ pour un écoulement d'argon ensemencé d'acétone, à une pression proche de la pression atmosphérique.

5.3 Post-traitement des résultats de MTV

Dans cette partie, nous abordons la question de l'extraction du profil de vitesse à partir d'images brutes de MTV. Cela se fait en deux étapes : dans la première, le déplacement des molécules marquées est extrait des images de MTV en utilisant une technique de traitement d'image spécifique ; dans la seconde étape, le profil de déplacement extrait est traité avec la méthode de reconstruction décrite dans le chapitre 4 pour obtenir finalement le profil de vitesse.

5.3.1 Extraction du profil de déplacement

Comme nous l'avons vu précédemment dans le chapitre 2, la technique de MTV repose sur la comparaison de positions de molécules marquées à deux (ou plusieurs) instants différents. Dans cette partie, nous décrivons la méthode adoptée pour extraire ces deux profils de position en utilisant le logiciel MATLAB®. Etant donné que les parois du canal sont susceptibles de bouger entre deux essais à pressions différentes (voir partie 5.1.2.2), nous commençons systématiquement le post-traitement d'images de MTV par la détection des positions des parois supérieure et inférieure du canal, en exploitant la réflexion de la lumière laser sur les lentilles supérieure et inférieure du canal. On définit pour cela deux régions d'intérêt (RI) autour de la tache lumineuse qui résulte de la réflexion du faisceau laser (Figure 5.7a). Pour chaque position x dans les deux RI, on détermine l'ordonnée du point correspondant au maximum d'intensité et on obtient ainsi les points montrés sur la Figure 5.7-b. Finalement, les ordonnées des deux parois sont données par les moyennes des ordonnées des points obtenus. L'épaisseur du canal déterminée avec cette méthode à la pression atmosphérique est en bon accord avec celle retrouvée en utilisant un projecteur de profil.

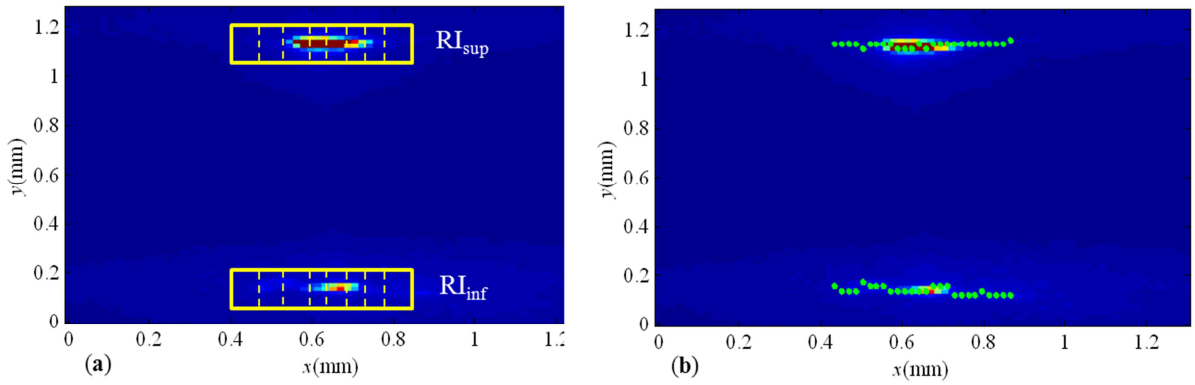

Figure 5.7 Détermination de la position des parois dans le plan $z = 0$: (**a**) image brute montrant les deux régions d'intérêt ; (**b**) coordonnées des parois au niveau des lentilles (●).

Connaissant les positions des deux parois, on détermine ensuite la position de la ligne initiale de molécules marquées par le laser. Cette étape est relativement facile car le signal initial correspondant à la fluorescence ou au début de la phosphorescence est d'une très bonne qualité (le niveau d'intensité étant élevé, le rapport signal sur bruit est important pour ces images). On enregistre une image, peu de temps après le pulse laser, sur laquelle on détermine une RI dont les frontières inférieure et supérieure correspondent aux positions des parois précédemment déterminées. Pour chaque *y* dans la RI, on extrait le profil de densité le long de *x* et on détermine l'abscisse du point correspondant au maximum de *P* (Figure 5.8). La densité *P*(*x*,*y*) est obtenue en normalisant le niveau du signal de sorte que l'intégrale de la densité sur la RI soit égale à 1. Les artéfacts visibles sur les bords de la Figure 5.8, résultant de la réflexion du faisceau laser sur les parois (lentilles en Suprasil®) n'influencent pas la suite de l'analyse qui sera présentée. Ces artéfacts ne sont plus visibles sur les images différées prises quelque temps après le pulse laser (Figure 5.9). Finalement le profil initial $s_x(y,t_i)$ est approximé par une ligne droite (ligne blanche sur la Figure 5.10-a).

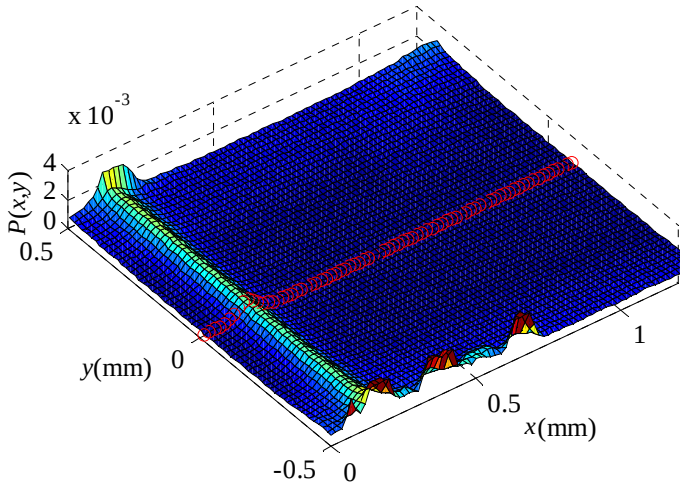

Figure 5.8 Densité initiale des molécules marquées au centre du canal ($z=0$) à $t=0{,}1\,\mu\text{s}$; (•) profil de densité sur la ligne $y=0$. Ecoulement du mélange argon-acétone avec $p_{in}=105{,}7\,\text{kPa}$, $p_{out}=103{,}7\,\text{kPa}$ et $T=274\,\text{K}$.

L'image différée (Figure 5.9-a) contenant le profil de déplacement est enregistrée quelques dizaines de microsecondes après le pulse laser. Après avoir exploré plusieurs méthodes d'extraction du profil de déplacement telles que la recherche directe de l'intensité maximale (Samouda, Colin et al. 2015), la corrélation unidirectionnelle d'image (Elsnab 2008) et la recherche du barycentre d'intensité (voir partie 4.2.2 équation (4.8)), nous avons opté finalement pour la méthode de lissage gaussien (Lempert, Boehm et al. 2003) qui donne de meilleurs résultats, notamment en termes de dispersion au niveau du profil de déplacement.

Dans cette méthode, on extrait pour chaque y le profil de densité de molécules marquées que l'on lisse avec une fonction gaussienne de la forme :

$$P_{gauss}(x,y) = a_1(y)e^{-\frac{(x-a_2(y))^2}{2a_3(y)}} + a_4(y). \tag{5.12}$$

Cela permet de déduire le profil de position différé des molécules marquées :

$$s_x(y, t = t_f) = a_2(y). \tag{5.13}$$

La fonction a_4 a été ajoutée dans l'équation (5.12) afin de prendre en compte le bruit présent sur les images de MTV. L'approximation de la distribution est faite avec la méthode des moindres carrés. Cette approximation de la densité de molécules marquées $P(x,y)$ par la « simple » fonction gaussienne $P_{gauss}(x,y)$ présente une erreur systématique à proximité des parois. Ce lissage permet néanmoins de réduire considérablement le bruit et donc la dispersion au niveau des positions des molécules marquées, comme le montre la Figure 5.9.

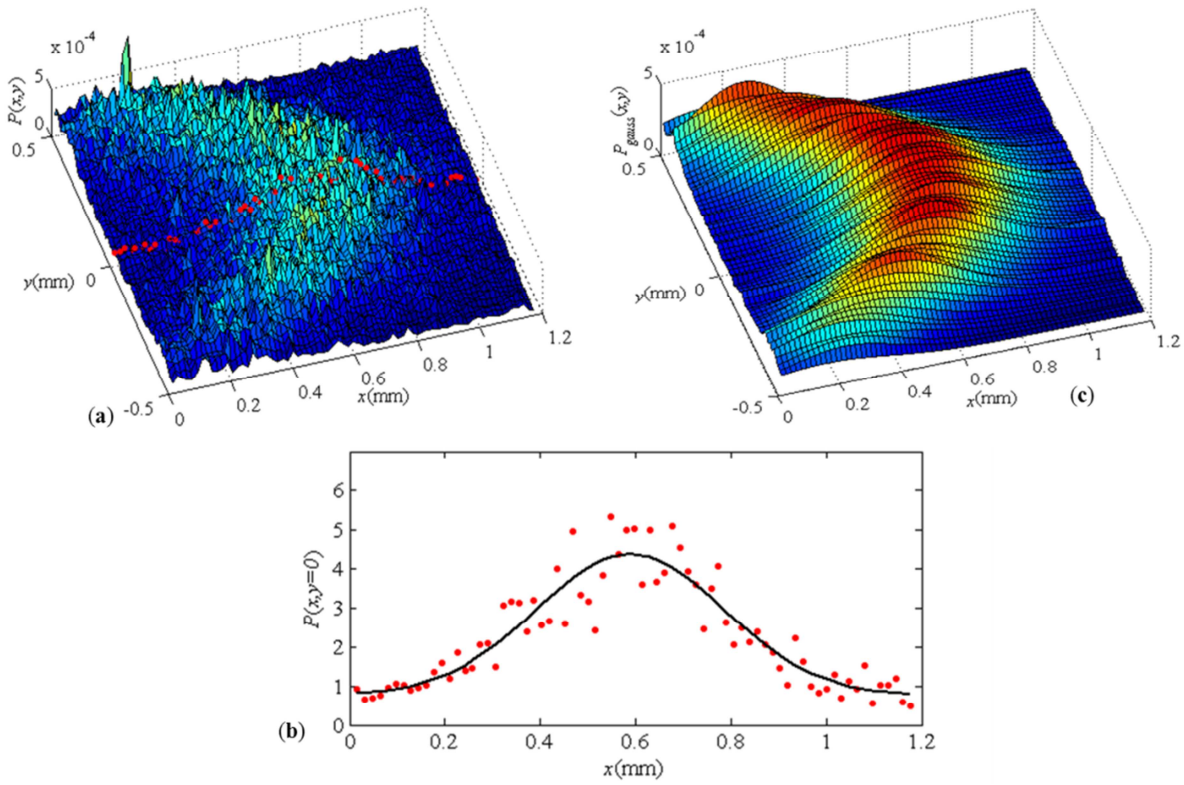

Figure 5.9 Image différée à $t = 100\,\mu s$. (**a**) densité de molécules marquées $P(x,y)$;
(**b**) (●) profil de densité de molécules marquées au centre du canal $P(x, y = 0)$;
(—) lissage gaussien $P_{gauss}(x, y = 0)$;
(**c**) lissage gaussien de la densité de molécules marquées $P_{gauss}(x,y)$

Finalement, la superposition du profil initial et du profil différé permet d'extraire le profil de déplacement : $s_x(y, \Delta t) = s_x(y, t = t_f) - s_x(y, t = t_i)$ comme le montre la Figure 5.10-a.

5.3.2 Extraction du profil de vitesse

Une fois le profil de déplacement extrait, on utilise la méthode de reconstruction développée dans le chapitre précédent pour déterminer le profil de vitesse $u_x(y)$ (Figure 5.10-c). On constate qu'on retrouve bien une vitesse nulle à la paroi ce qui est normal en régime non glissant. On utilise dans la méthode de reconstruction des fonctions de base pour la vitesse de la forme $U_0 = a_0$ et $U_2 = a_2(L_y^2 - 4y^2)$. Ces fonctions de base U_0 et U_2 associées à la vitesse permettent d'obtenir les fonctions de base S_0 et S_2 associées aux déplacements à travers l'équation (4.38). La Figure 5.10-b montre les déplacements mesurés ainsi que le lissage par les fonctions de base $S_0 + S_2$. Nous utilisons ici les mêmes fonctions de base que dans le chapitre précèdent (voir partie 4.4).

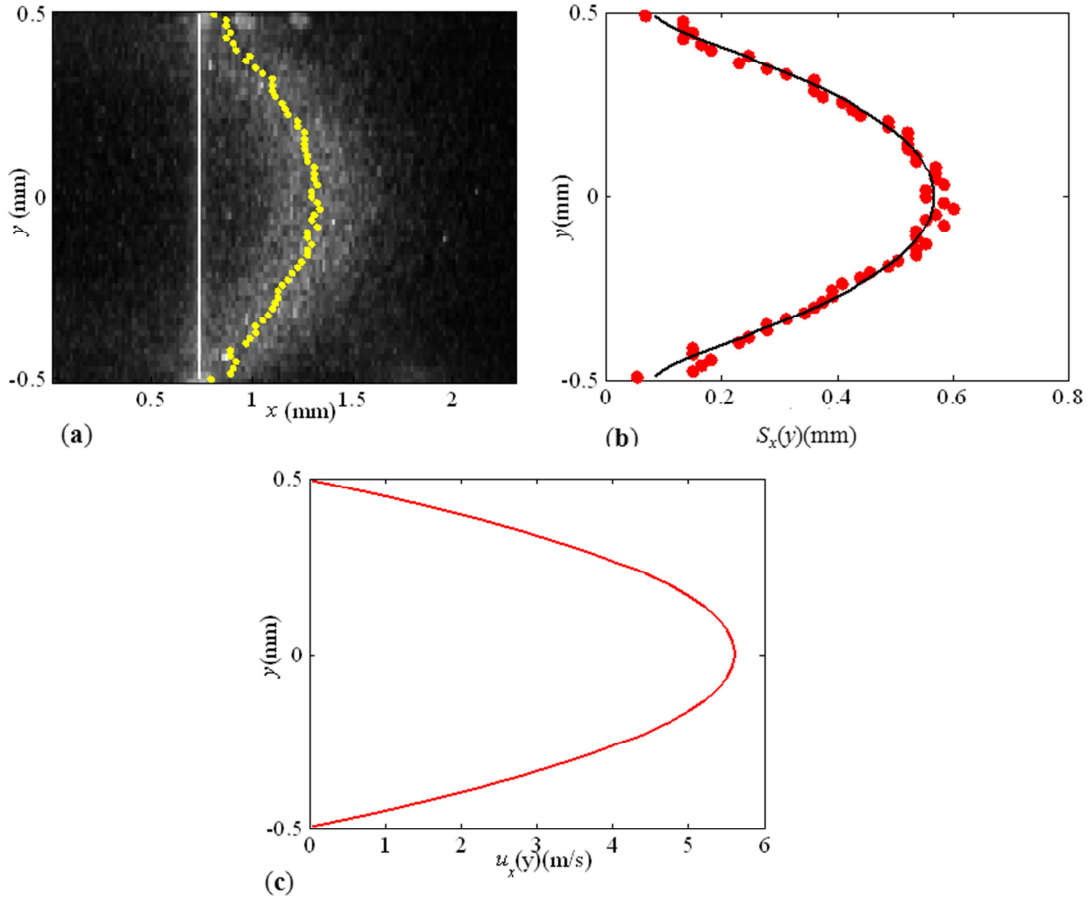

Figure 5.10 Déplacement de molécules marquées dans un écoulement d'argon ensemencé en acétone avec $p_{in} = 105,7$ kPa, $p_{out} = 103,7$ kPa et $T = 294$ K :
(**a**) positions initiales des molécules marquées (■) ; position des molécules marquées à $t = 100\,\mu s$ (◆) ;
(**b**) profil de déplacement des molécules (●) ; lissage par les fonctions de base (—).
(**c**) profil de vitesse reconstruit à partir du profil déplacement de la figure (**b**)

5.4 Application aux écoulements confinés

Dans cette partie, nous analysons avec la MTV des écoulements confinés à la pression atmosphérique dans le canal précédemment décrit. Dans chaque test, après avoir généré un écoulement établi, on extrait un profil initial suivi de plusieurs profils différés, obtenus à des temps différents dans les mêmes conditions de pression et de température. Pour chaque profil extrait, on applique le post-traitement détaillé dans la partie 5.3 pour en déduire le profil de déplacement $s_x(y,t_k)$, que nous traitons ensuite avec la méthode de reconstruction (voir partie 4.4) afin d'obtenir le profil de vitesse correspondant $u_x^k(y)$. Finalement le profil de vitesse $u_x(y)$ représente la moyenne des différents profils $u_x^k(y)$.

5.4.1 Ecoulements d'hélium à la pression atmosphérique

Les premiers résultats que nous présentons concernent un écoulement d'hélium ensemencé en acétone. La pression moyenne de l'écoulement est proche de la pression atmosphérique. Les profils de déplacement $s_x(y,t_k)$ mesurés aux différents instants t_k sont approximés par des fonctions de base de la forme $S_0 + S_2$ (Figure 5.11-a). L'écart entre les mesures et le lissage, exprimé par ε_d, est montré sur la Figure 5.11-d. La « simple » décomposition de la vitesse en fonctions de base de forme parabolique permet d'obtenir des fonctions de base de déplacement $S_0 + S_2$ qui approximent assez bien le déplacement des molécules marquées ; en effet, ε_d est de l'ordre de la taille du pixel de la caméra ICCD que nous utilisons. L'écart ε_d augmente quasi linéairement avec le temps et passe de 12 à 38 µm en l'espace de 70 µs. On note que cette augmentation est plus rapide que l'augmentation proportionnelle à $\sqrt{t}$ due à la diffusion moléculaire et observée dans les simulations par DSMC (voir partie 4.5). En effet, dans les expériences de MTV, en plus de la dispersion engendrée par la diffusion s'ajoute une dispersion expérimentale liée aux incertitudes expérimentales de la MTV. Cette dernière dispersion augmente du fait de la diminution du signal de phosphorescence avec le temps, ce qui rend l'extraction du profil de déplacement encore plus difficile à des temps plus élevés. Par conséquent, ε_d augmente relativement vite mais reste petit devant l'amplitude Δs du déplacement. Typiquement :

$$\varepsilon_d \approx \tfrac{1}{20}\Delta s \approx \tfrac{1}{20}\left[s_x(y=0,t_k) - s_x(y=\pm L_y/2,t_k) \right] \tag{5.14}$$

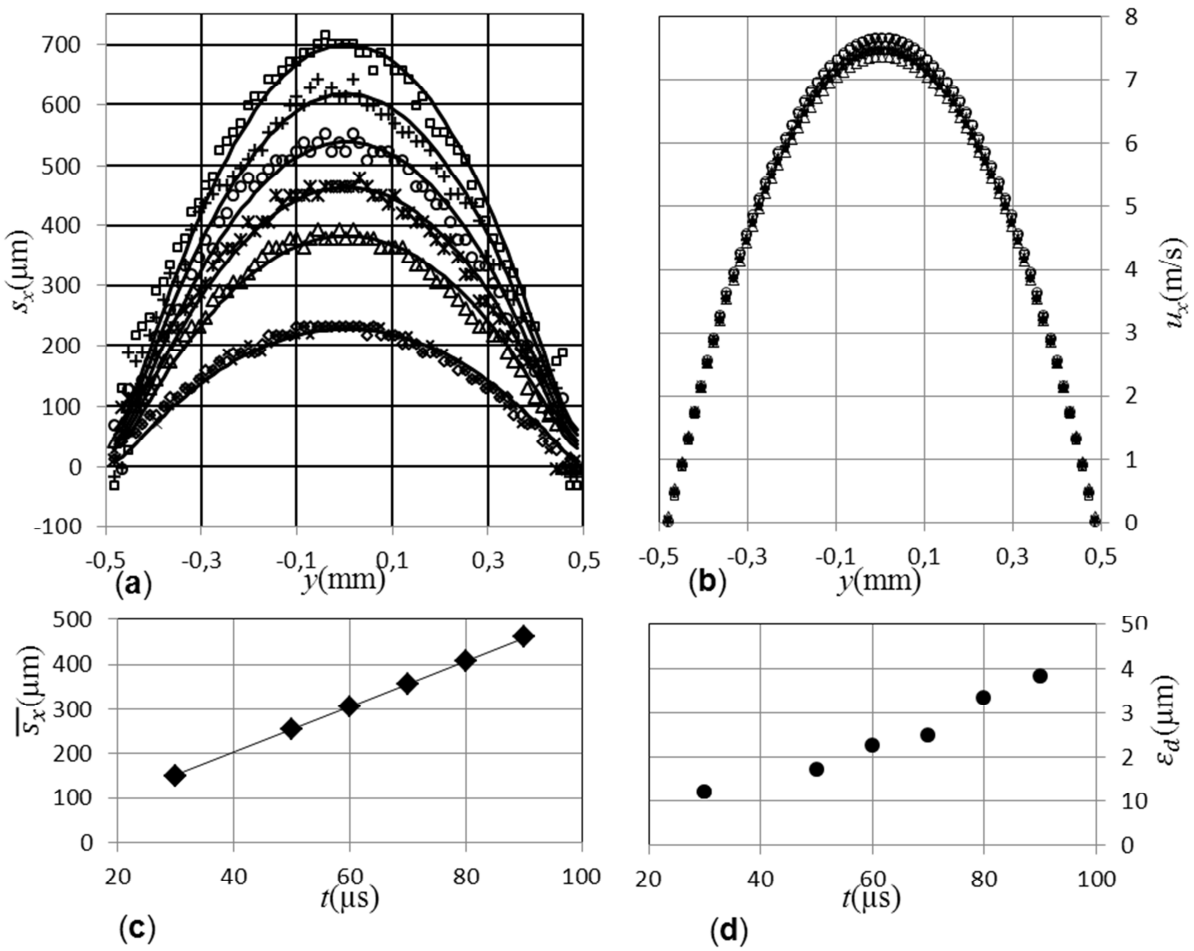

Figure 5.11 Résultats de MTV pour un écoulement d'hélium ensemencé en acétone avec $p_{in} = 103,0$ kPa $p_{out} = 101,7$ kPa et $T = 294$ K

(**a**) Profils expérimentaux de déplacement $s_x(y,t_k)$ à $t = 30$ µs (◊) et (×), $t = 50$ µs (Δ), $t = 60$ µs (Ж), $t = 70$ µs (o), $t = 80$ µs (+) et $t = 90$ µs (□). Lissage par les fonctions de bases (—).

(**b**) Profils de vitesse $u_x^k(y)$ obtenus avec des déplacements à $t = 30$ µs (◊) et (×), $t = 50$ µs (Δ), $t = 60$ µs (Ж), $t = 70$ µs (o), $t = 80$ µs (+) et $t = 90$ µs (□).

(**c**) évolution temporelle du déplacement moyen au centre du canal (♦) ; lissage linéaire de la forme $\overline{s}_x = a\,t$ (—).

(**d**) écart entre les mesures des déplacements et le lissage obtenu avec les fonctions de base (●).

Les différents profils de vitesse reconstruits $u_x^k(y)$ (Figure 5.11-b) sont assez proches et ne présentent pas de glissement « artificiel » significatif à la paroi. Le profil de vitesse moyen $u_x(y)$ (obtenu en moyennant les profils $u_x^k(y)$) est comparé sur la Figure 5.12 au profil de vitesse théorique au centre du canal (en $z = 0$) donné par l'équation (5.4). Cette comparaison montre que la forme du profil de vitesse mesuré est en bon accord avec la solution théorique donnée par les équations de Navier-Stokes. Notons que nous comparons ici les profils de vitesse normalisée par la vitesse au centre du canal, car ne disposant pas de mesures précise des pressions dans les sections amont et aval du canal, il n'est pas possible de calculer d'une manière quantitativement précise le profil de vitesse dans le canal avec l'équation (5.4).

Néanmoins, cette comparaison permet de conclure qu'on extrait de manière précise la forme du profil de vitesse.

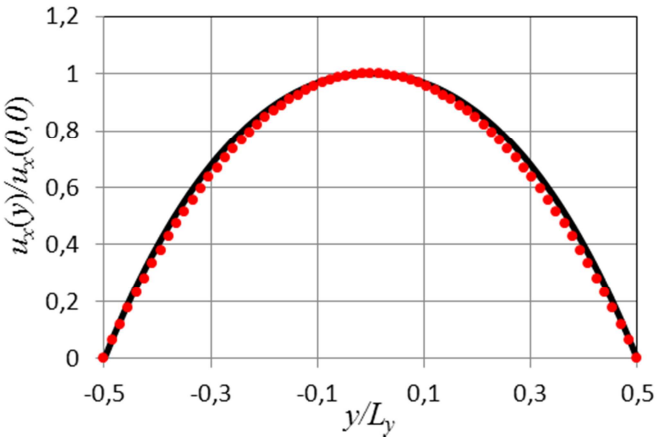

Figure 5.12 Comparaison entre les profils de vitesse $u_x(y)$ théorique (équation (5.4)) et extrait de mesures par MTV.

Le déplacement moyen $\overline{s}_x(t_k) = \frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2} s_x(y,t_k)dy$ mesuré au centre du canal est représenté en fonction du temps sur la Figure 5.11-c. On note que $\overline{s}_x$ augmente linéairement avec le temps, en accord avec les prédictions de l'équation d'advection-diffusion. La vitesse moyenne déduite de l'évolution du déplacement moyen (après lissage linéaire) avec l'équation (4.28) est très proche de la valeur donnée par la méthode de reconstruction selon la relation $\overline{u}_x = \frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2} u_x(y)dy$, l'écart entre les deux vitesses moyennes étant de 3 %.

5.4.2 Comparaison avec des mesures de débit

Nous avons modifié le circuit de gaz de façon à pouvoir mesurer le débit volumique de gaz traversant le canal. Un ballon calibré de volume $V_{ballon} = 2\,\mathrm{L}$ est rempli d'eau et retourné dans un bac lui-même rempli d'eau. Il est connecté à l'aval du canal à l'aide d'un tube reliant le ballon au niveau de la surface de l'eau se trouvant dans le bac (Figure 5.13), ce qui permet de garantir que la pression au niveau de cette connexion est toujours égale à la pression atmosphérique. L'eau se trouvant dans le ballon d'eau est alors progressivement remplacée par le gaz arrivant du circuit de MTV et traversant le canal. Ainsi, nous déclenchons le chronomètre à l'arrivée de la première bulle dans le ballon et nous l'arrêtons lorsque le niveau d'eau atteint la ligne marquant les 2L, pour ainsi déduire le temps Δt durant lequel le ballon s'est vidé, qui correspond à un volume de gaz de 2L évacué à pression atmosphérique et obtenir une mesure précise du débit. La vitesse moyenne au centre du canal ($z = 0$) est alors obtenue par l'équation

$$\bar{u}_{x,débit} = \frac{V_{ballon}}{\Delta t\, L_y\, L_z} a_v, \tag{5.15}$$

où a_v est un coefficient introduit pour permettre de calculer la vitesse moyenne dans la section centrale du canal, à $z=0$. Si $a_v = 1$, $\bar{u}_{x,débit}$ représente la vitesse moyenne dans toute la section du canal. Pour que $\bar{u}_{x,débit}$ représente la vitesse moyenne sur l'axe $z=0$, on calcule a_v par l'équation

$$a_v = \frac{\dfrac{1}{L_y}\displaystyle\int_{-L_y/2}^{L_y/2} u_x(y,0)dy}{\dfrac{1}{L_y L_z}\displaystyle\int_{-Lz/2}^{L_z/2}\int_{-L_y/2}^{L_y/2} u_x(y,z)dydz}, \tag{5.16}$$

où $u_x(y,z)$ est la distribution de vitesse dans le canal donnée par l'équation (5.4). Dans notre cas, pour un canal de rapport de forme 1/5, on trouve que $a_v = 1{,}1428$.

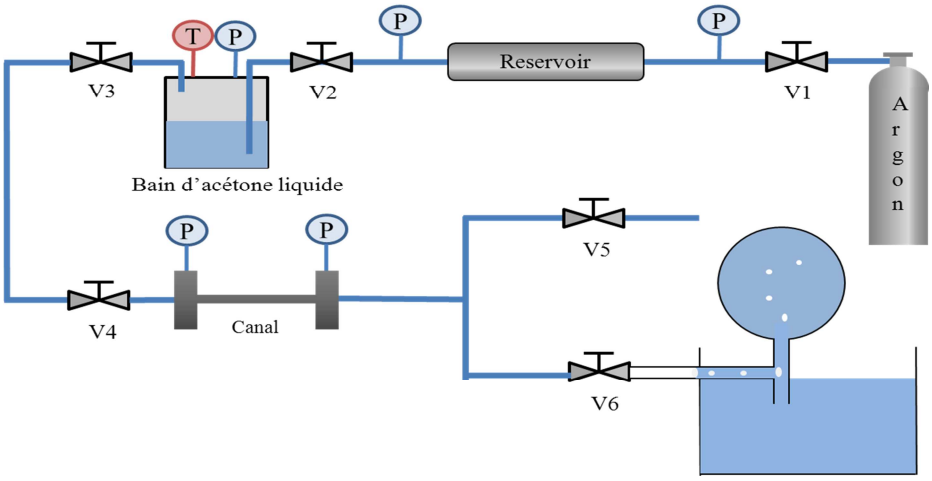

Figure 5.13 Dispositif expérimental de mesure de débit volumique dans le circuit de MTV

Nous réalisons en premier un test de MTV où l'on extrait trois profils de déplacement (Figure 5.14). Ensuite et dans les mêmes conditions, nous réalisons deux mesures de débit. Les résultats obtenus sont regroupés dans le Tableau 5.2. Il serait plus intéressant de réaliser simultanément les mesures MTV et les mesures de débit, mais comme les mesures MTV sont réalisées dans le noir, il n'est pas possible de faire en même temps des mesures de débit.

MTV				
t_k (µs)	50	80	100	Moyenne $\overline{u}_{x,MTV}$ (m/s)
$\overline{u}^k_{x,MTV}$ (m/s)	2,536	2,539	2,624	2,567

Mesure de débit			
Test	1	2	Moyenne $\overline{u}_{x,débit}$ (m/s)
$\overline{u}^k_{x,débit}$ (m/s)	2,489	2,495	2,491
$\dfrac{\lvert\overline{u}_{x,débit}-\overline{u}_{x,MTV}\rvert}{\overline{u}_{x,débit}}$	0,03		

Tableau 5.2 Résultats de mesures de vitesse moyenne.
Comparaison entre la mesure extraite de la MTV et la mesure extraite de la mesure de débit

Les trois déplacements obtenus par MTV donnent une vitesse moyenne $\overline{u}_{x,MTV}$ de 2,567 m/s avec un écart-type de 5×10^{-2} m/s. Les mesures de débit permettent de calculer une vitesse moyenne au centre du canal de 2,491 m/s avec un écart-type de 4×10^{-3} m/s. La comparaison des deux vitesses moyennes présente un écart de 3 %, ce qui est plutôt encourageant pour ce type de mesures, dans lesquelles la diffusion donne un signal a priori peu précis (voir Figure 5.10-a).

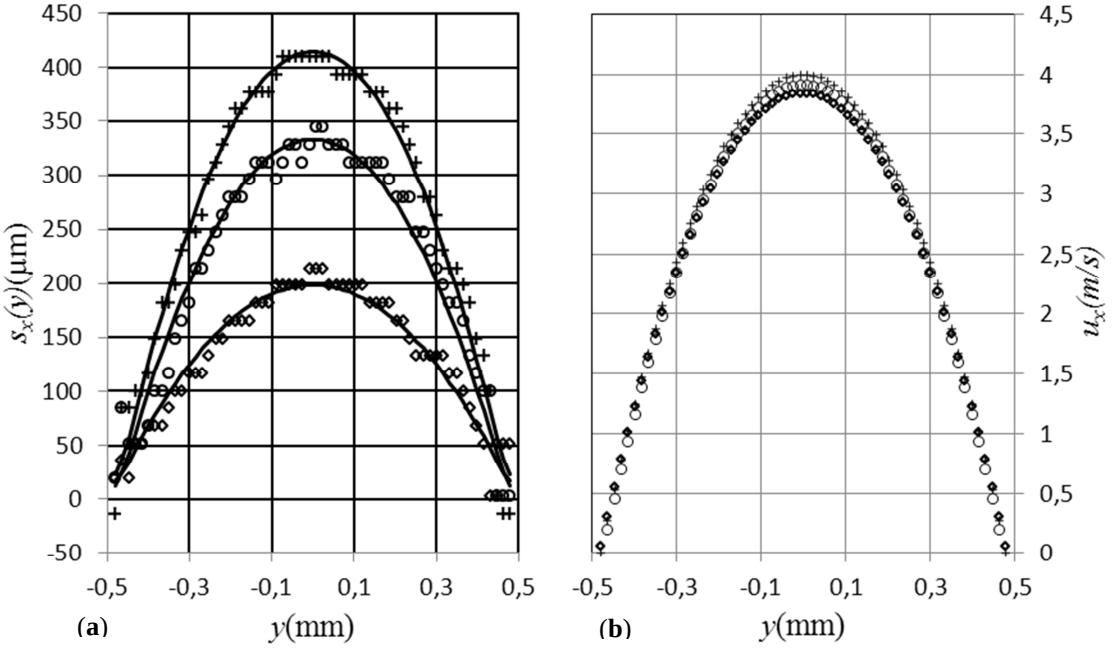

Figure 5.14 Résultats de MTV pour un écoulement d'hélium ensemencé en acétone avec $p_{in} = 102,8$ kPa $p_{out} = 101,8$ kPa et $T = 294$ K : (**a**) Profils de déplacement $s_x(y,t_k)$ à $t = 50$ µs (◊) ; $t = 80$ µs (o) ; $t = 100$ µs (+) ; lissage avec les fonctions de base (—).
(**b**) Profils de vitesse correspondants $u^k_x(y)$ à $t = 50$ µs (◊) ; $t = 80$ µs (o) ; $t = 100$ µs (+) ;

On remarque par ailleurs que la vitesse moyenne calculée à partir de la mesure de débit dépend fortement des dimensions du canal. Sa hauteur L_y a été mesurée avec la méthode optique précédemment décrite, mais pour sa largueur L_z, nous ne disposons que de la

dimension donnée par le fournisseur (KIT) qui est une dimension issue du dessin de définition et non une dimension mesurée. Ce point peut constituer une source supplémentaire d'erreur.

5.5 Vers l'étude d'écoulements en régime glissant

Au cours de la présente thèse, nous n'avons pas pu directement analyser des écoulements en régime glissant. Néanmoins, dans cette partie, nous proposons quelques perspectives et réflexions qui aideront à franchir les différents verrous que nous avons identifiés tout au long de cette thèse. Nous commençons cette partie par un exemple d'application de la MTV à un écoulement à basse pression, mais qui reste en régime continu. Ensuite nous présentons une nouvelle conception de canal améliorant l'étanchéité et qui s'avère beaucoup moins sensible aux efforts de flexion résultant de différences de pression. Enfin, nous détaillons une méthodologie permettant d'acquérir du signal à des pressions plus basses.

5.5.1 Analyse d'écoulements continus à basse pression

Un exemple de résultats obtenus pour un écoulement d'hélium à une pression inférieure à la pression atmosphérique est montré sur la Figure 5.15. Les pressions dans les réservoirs d'entrée et de sortie sont respectivement $p_{in} = 53,0\,\text{kPa}$ et $p_{out} = 52,1\,\text{kPa}$. La fraction molaire d'acétone dans le mélange est $\chi_2 = 0,22$. Les profils de déplacement $s_x(y,t_k)$ extraits aux différents instants t_k sont approximés par des fonctions de base de type $S_0 + S_2$. L'écart moyen ε_d entre les déplacements mesurés et les fonctions de base est montré sur la Figure 5.15-d. On remarque que ε_d présente des valeurs supérieures à celles obtenues dans un écoulement à pression atmosphérique. Cela est dû à l'augmentation de la diffusion moléculaire avec la baisse de la pression, mais aussi à l'augmentation de la dispersion expérimentale, qui rappelons le, dépend du signal de phosphorescence décroissant avec la pression. Néanmoins, ε_d reste petit devant l'amplitude Δs du déplacement $(< 6\%)$.

Comme on peut s'y attendre, l'effet de diffusion moléculaire sur le déplacement de molécules marquées est plus visible ici que lors des mesures à la pression atmosphérique. En effet, un glissement plus marqué, augmentant avec le temps, est constaté sur le profil de déplacement au niveau des parois. On observe également une décroissance de la contribution stationnaire $\tilde{s}_x(y,t)$ (voir partie 4.3.2), qui est présente aux premiers instants et se manifeste par une évolution de la forme du profil de déplacement entre les instants $t = 30\mu s$ et $t = 75\mu s$ (Figure 5.15-a). Par la suite, $\tilde{s}_x(y,t)$ décroit et le profil de déplacement est réduit à sa

composante asymptotique $s_\infty(y)$ dont la forme ne change quasiment plus entre les instants $t = 75\mu s$ et $t = 90\mu s$.

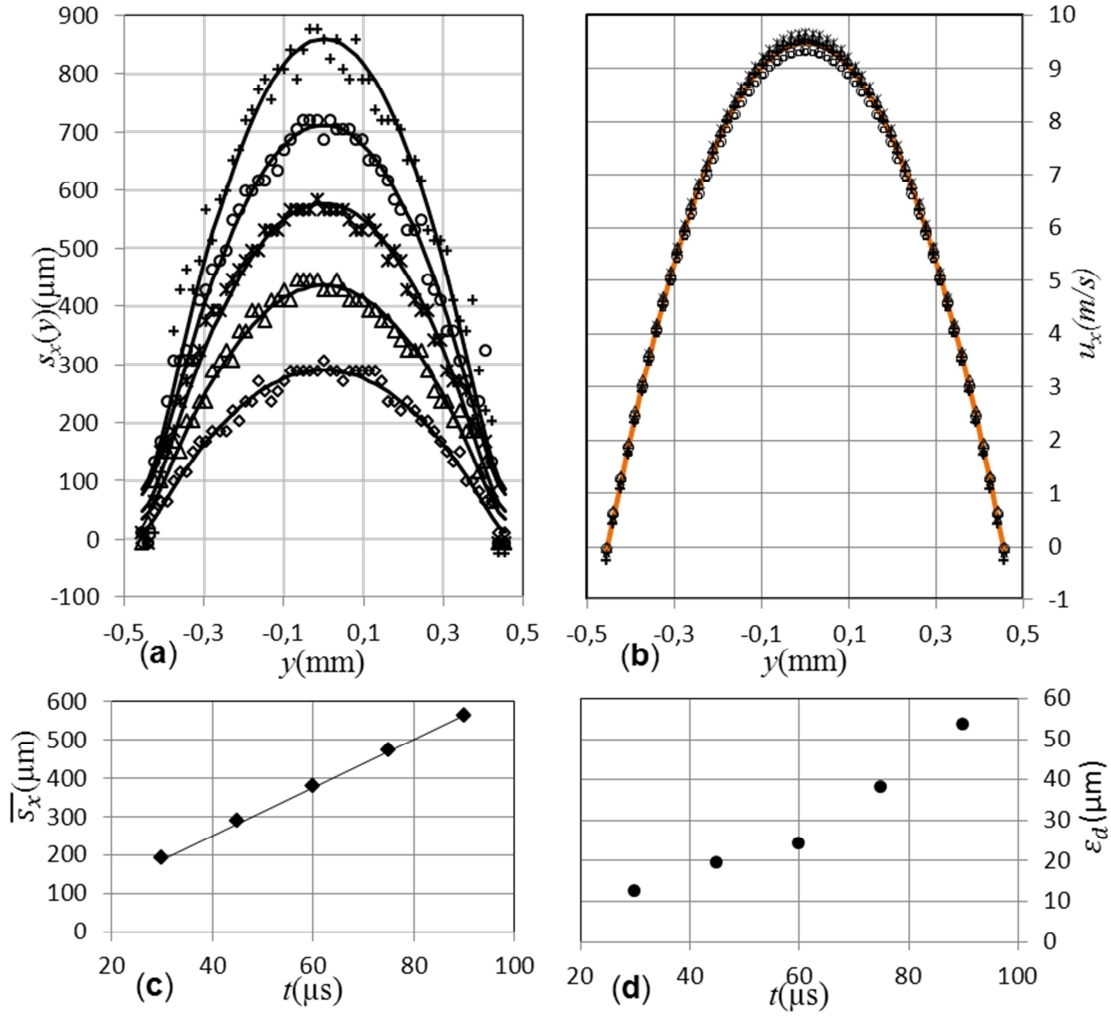

Figure 5.15 Résultats de MTV pour un écoulement d'hélium ensemencé en acétone avec $p_{in} = 53,0$ kPa $p_{out} = 52,1$ kPa et $T = 294$ K :

(**a**) Profils de déplacement $s_x(y,t_k)$ à $t = 30$ µs (◊), $t = 45$ µs (Δ), $t = 60$ µs (Ж), $t = 75$ µs (o) et $t = 90$ µs (+). Lissage par les fonctions de base (—).

(**b**) Profils de vitesse $u_x^k(y)$ obtenus avec les déplacements $s_x(y,t_k)$ à $t = 30$ µs (◊), $t = 45$ µs (Δ), $t = 60$ µs (Ж), $t = 75$ µs (o) et $t = 90$ µs (+). Profil moyen $u_x(y)$ (—).

(**c**) évolution temporelle du déplacement moyen au centre du canal (♦); lissage linéaire de forme $\overline{s_x} = at$ (—)

(**d**) écart moyen entre les mesures de déplacement et le lissage avec les fonctions de base (●).

Les profils de vitesse $u_x^k(y)$ reconstruits à partir des déplacements aux instants t_k, montrés sur la Figure 5.15-b, présentent des valeurs proches. Ces profils $u_x^k(y)$ sont moyennés pour donner le profil de vitesse moyen $u_x(y)$. L'écart entre ce dernier profil et les différents profils de vitesse $u_x^k(y)$ n'excède pas 2 % de la vitesse au centre du canal.

L'évolution du déplacement moyen avec le temps permet d'obtenir la vitesse moyenne au centre de l'écoulement avec la relation (4.28). L'écart entre cette vitesse moyenne et celle obtenue avec la méthode de reconstruction ($\overline{u}_x = \frac{1}{L_y}\int_{-L_y/2}^{L_y/2} u_x(y)\,dy$) est inférieur à 2 %.

L'analyse de ces résultats nous permet d'être optimistes quant à la validité de la méthodologie de MTV que nous utilisons pour étudier les écoulements confinés. Néanmoins, une comparaison systématique à des données de débit qui proviendraient d'un débitmètre industriel installé dans le circuit de gaz à l'aval du canal serait d'une grande utilité. Le point délicat serait lié à la qualité de l'étalonnage d'un tel débitmètre pour des mélanges à concentration variable de différents gaz porteurs et de gaz traceurs.

L'utilisation de la MTV pour l'étude d'un écoulement confiné d'hélium dans un canal d'un millimètre de diamètre à une pression égale à la moitié de la pression atmosphérique donne de bons résultats. Néanmoins, l'analyse d'écoulements glissants requiert de descendre jusqu'à un centième environ de la pression atmosphérique. Cela n'a pas pu être réalisé dans cette thèse à cause de deux principaux verrous. Le premier était lié aux fuites dans le canal précédemment décrit et le deuxième à la baisse du signal de phosphorescence avec la pression. Dans la suite de ce chapitre, nous développons quelques éléments qui aideraient à surmonter ces deux verrous.

5.5.2 Nouvelle conception de canal pour les écoulements gazeux à basse pression

Nous sommes partis de l'ancienne conception du canal (Figure 5.2), destinée aux écoulements isothermes. La nouvelle conception ne contient pas de thermocouples, ce qui permet de réduire les fuites qui se sont avérées importantes au niveau des jonctions de ces thermocouples sur l'ancien système. Afin de réduire la déformation du canal à basses pressions, nous avons opté pour la nouvelle géométrie montrée sur la Figure 5.16. Dans cette nouvelle conception, il n'y a qu'un seul accès optique pour le laser et un seul accès optique pour la caméra, ces simplifications ayant pour objectif de réduire le niveau de fuites en réduisant le nombre d'éléments à assembler.

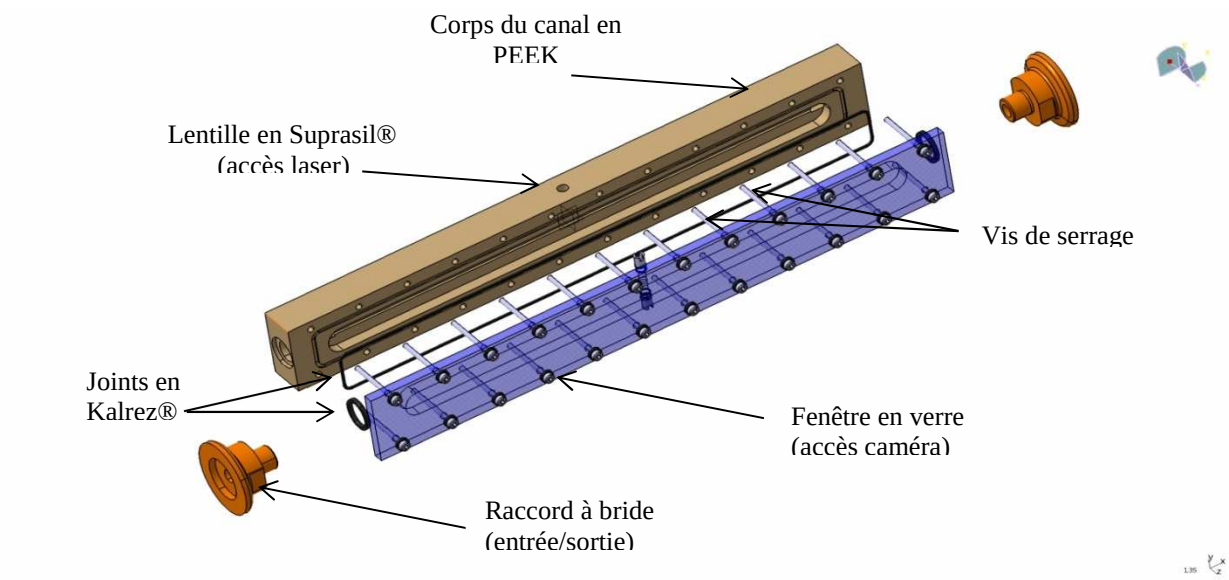

Figure 5.16 Détails de structure du nouveau canal

Les calculs de déformation réalisés par éléments finis avec le logiciel Abaqus® sur le nouveau concept de canal montrent que le déplacement maximal de la paroi suivant l'axe *y*, suite à une différence de pression externe-interne de 1 bar, est réduit à 3,4 µm (Figure 5.17). Cela signifie que la variation de la hauteur du canal est inférieur à 7 µm et reste donc très petite devant la hauteur du canal (0,7 %). Les simulations par CFD avec la nouvelle géométrie montrent que les effets d'entrée et de sortie restent localisés aux extrémités du canal : les longueurs d'établissement à l'entrée et à la sortie du canal sont de quelques millimètres, donc très petites devant la longueur du canal $L_x = 200\,\text{mm}$.

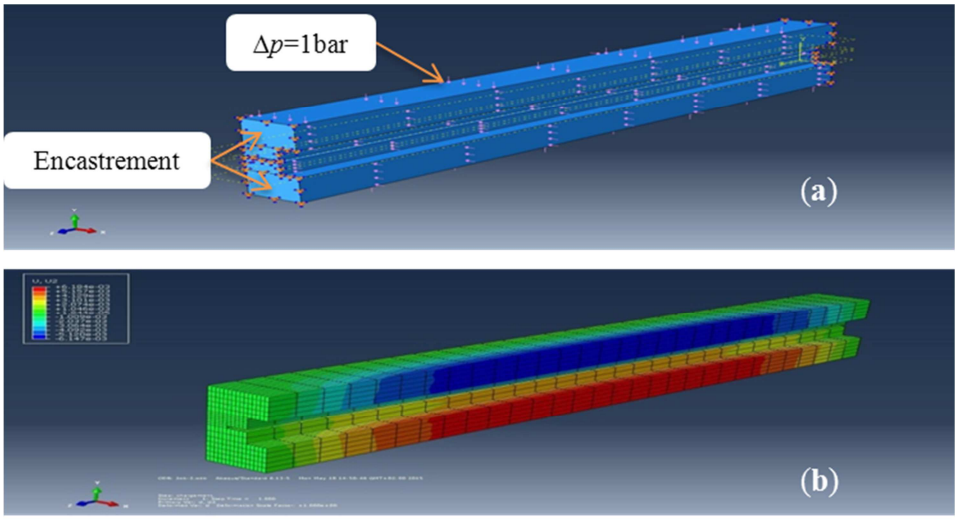

Figure 5.17 Calcul de déformation des parois du canal sous l'effet d'une différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur du canal. (**a**) Chargement et conditions aux limites. (**b**) Déplacement suivant l'axe *y*

5.5.3 Détectabilité des molécules marquées à basse pression

La variante de MTV avec ensemencement que nous avons développée exploite le signal de phosphorescence. Cette variante montre ses limites dans le cas d'écoulements gazeux à basse pression, d'une part à cause de la baisse drastique du signal de phosphorescence avec la pression et d'autre part à cause de la forte extinction de la phosphorescence par les molécules d'oxygène (voir partie 3.3.4) dès lors que des fuites apparaissent.

Le passage à une variante de MTV avec génération du traceur permettrait de résoudre ces deux problèmes. En effet, cette technique exploite le signal de fluorescence (voir partie 2.4.2) qui reste clairement détectable à de très basses pressions (voir partie 3.3.4). Un autre avantage de la MTV avec génération du traceur est que le signal de fluorescence résiste mieux à l'extinction par l'oxygène (Lempert, Boehm et al. 2003) ; de ce fait, le niveau de fuites que l'on peut tolérer dans le canal peut être relativement plus important. Cela rendrait ainsi la fabrication et l'assemblage du canal beaucoup moins délicats.

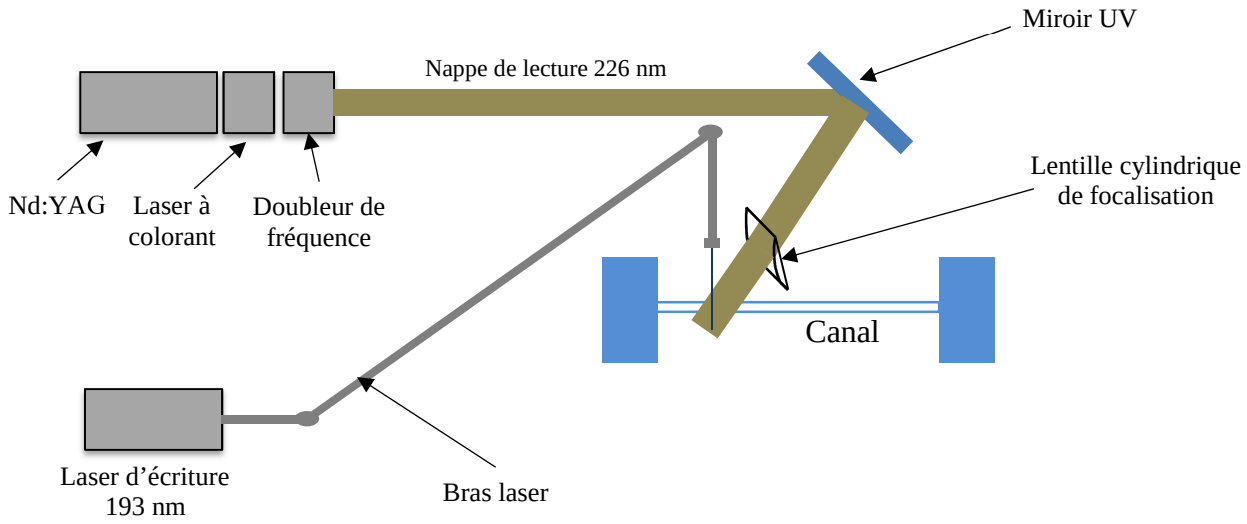

Figure 5.18 Système de marquage : adaptation à la variante MTV avec génération du traceur

Le passage à cette variante de MTV nécessite en revanche des modifications importantes au niveau du système d'excitation. Deux lasers sont alors nécessaires (Figure 5.18) : un laser d'écriture avec un faisceau qui reste de forme cylindrique et un laser de lecture sous forme d'une nappe fine. Par exemple, si l'on opte pour l'utilisation de NO comme traceur, généré à partir du NO_2, la longueur d'onde du laser d'écriture est de 193 nm, ce qui nécessiterait l'utilisation d'un laser à excimère ArF. En revanche, la longueur d'onde de lecture est de 226 nm et cette longueur d'onde peut être obtenue en ajoutant un laser à colorant au laser Nd :YAG actuel. Les longueurs d'onde d'écriture et de lecture peuvent être obtenues

également en utilisant un laser à fréquence variable de type Oscillateur Paramétrique Optique (OPO). Une étude de marché s'avère donc nécessaire pour déterminer le choix adéquat du système d'excitation. L'acquisition d'un laser à fréquence variable OPO ou un module laser à colorant permettrait d'élargir les possibilités de choix de gaz traceur utilisé. Il serait ainsi souhaitable de mener une étude comparative des traceurs gazeux connus (voir tableau 2.3) par rapport à leurs niveaux de fluorescence à basses pressions.

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons utilisé le banc MTV décrit dans le chapitre 3 pour mesurer les déplacements de molécules marquées. Le traitement de ces déplacements avec la méthode de reconstruction décrite dans le chapitre 4 permet de déterminer le profil de vitesse de l'écoulement avec une bonne précision.

L'analyse d'écoulements à pression atmosphérique ainsi que la comparaison avec des mesures de débit ont montré la capacité de la MTV à extraire correctement le profil de vitesse pour un écoulement gazeux confiné. Dans un écoulement à $p = 50$ kPa où l'effet de diffusion moléculaire est plus important, les résultats obtenus par la MTV sont très encourageants. Néanmoins, l'exploration d'écoulements glissants requiert de descendre davantage encore en pression, jusqu'à $p = 1$ kPa. A ce stade, nous avons été confrontés à deux verrous qui sont la décroissance drastique du signal phosphorescence à basse pression et les fuites importantes au niveau du canal. La conception d'un nouveau canal plus résistant et plus étanche –en cours de fabrication dans l'équipe–, ainsi que le passage à la MTV avec ensemencement permettraient de descendre davantage en pression pour atteindre le régime glissant.

Reference

Elsnab, J. R. (2008). Mean velocity profile in a high aspect ratio microchannel PHD, University of Utah.

Ferziger, J. H. and M. Peric (2002). Computational Methods for Fluid Dynamics, Springer.

Lempert, W. R., M. Boehm, N. Jiang, S. Gimelshein and D. Levin (2003). "Comparison of molecular tagging velocimetry data and direct simulation Monte Carlo simulations in supersonic micro jet flows." Experiments in Fluids 34(3): 403-411.

Neufeld, P. D., A. R. Janzen and R. A. Aziz (1972). "Empirical Equations to Calculate 16 of the Transport Collision Integrals Ω(l, s)* for the Lennard-Jones (12–6) Potential." The Journal of Chemical Physics 57(3): 1100-1102.

Poling, B. E., J. M. Prausnitz and J. P. O'Connell (2000). The properties of gases and liquids, McGRAW-HILL.

Samouda, F. (2012). Développement de la technique de Vélocimétrie par Marquage Moléculaire pour l'étude expérimentale des micro-écoulements gazeux. PHD, INSA Toulouse

Samouda, F., S. Colin, C. Barrot, L. Baldas and J. Brandner (2015). "Micro molecular tagging velocimetry for analysis of gas flows in mini and micro systems." Microsystem Technologies 21(3): 527-537.

Spiga, M. and G. L. Morini (1994). "A symmetric solution for velocity profile in laminar flow through rectangular ducts." International Communications in Heat and Mass Transfer 21(4): 469-475.

Résumé

Nous présentons dans cette thèse une adaptation de la technique de vélocimétrie par marquage moléculaire (MTV) aux micro-écoulements gazeux. Les effets de luminescence de l'acétone gazeuse excitée par un rayonnement UV, mis en jeu dans la MTV, ont été analysés en vue d'une application en vélocimétrie à basse pression. La phosphorescence de l'acétone diminue fortement avec la pression, pour devenir non détectable à des pressions de l'ordre du kPa. En revanche, la fluorescence reste détectable à des pressions de l'ordre de la dizaine de Pa. L'analyse des déplacements de molécules luminescentes au sein de l'écoulement porteur a montré que les effets de la diffusion moléculaire sont importants et augmentent avec la raréfaction du gaz. Une méthode de reconstruction, basée sur l'équation d'advection diffusion, a été développée. Elle permet d'extraire le profil de vitesse à partir de l'analyse du déplacement et de la déformation de la zone marquée, en prenant en compte la diffusion des molécules luminescentes. L'analyse d'un écoulement de Poiseuille dans un canal de section rectangulaire et de dimensions millimétriques, sous des pressions de l'ordre de 100 kPa, a montré la capacité de la MTV à extraire avec précision la vitesse locale en écoulements confinés, lorsque la méthode de reconstruction est appliquée. Une feuille de route pour l'analyse future par MTV des écoulements raréfiés, notamment dans le régime glissant, est finalement proposée.

Mots-Clés : Microfluidique, micro-écoulements gazeux, régime glissant, MTV, DSMC.

Abstract

In the present thesis we present an adaptation of Molecular Tagging Velocimetry (MTV) to gas microflows. The photo-luminescence effects of gaseous acetone excited by UV light, implemented in MTV, have been analyzed in various pressure conditions. The acetone phosphorescence shows a drastic decrease with pressure and becomes non measurable for pressures lower than 1 kPa. On the other hand, fluorescence shows a slower decrease and remains clearly detectible at pressures as low as 10 Pa. The motion of tracer molecules within the carrier flow has been studied. The analysis of the displacement of the tagged molecules has shown the strong influence of molecular diffusion, this influence being increased with the gas rarefaction. A reconstruction method based on the advection-diffusion equation has been developed. It allows to extract the velocity profile from the analysis of the displacement and deformation of the tagged region, taking into account the diffusion of tracer molecules. This reconstruction method has been successfully implemented to analyse a Poiseuille flow in a rectangular millimetric channel, under atmospheric pressure conditions, and the capability of MTV to accurately extract the local velocity in confined gas flows has been demonstrated. Finally, some short term perspectives have been proposed with the aim to help achieving rarefied flows analysis by MTV.

Keywords: Microfluidics, gas microflows, slip flow regime, MTV, DSMC.