



Ebullition nucléée sur des surfaces ultra-polies : Influence de la topographie et du revêtement sur le phénomène de nucléation

Mostafa Al Masri

► To cite this version:

Mostafa Al Masri. Ebullition nucléée sur des surfaces ultra-polies : Influence de la topographie et du revêtement sur le phénomène de nucléation. Thermique [physics.class-ph]. Université de Lyon, 2017. Français. NNT : 2017LYSEI057 . tel-02061369

HAL Id: tel-02061369

<https://theses.hal.science/tel-02061369>

Submitted on 8 Mar 2019

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.



N°d'ordre NNT : 2017LYSEI057

THESE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON
opérée au sein de
L'INSA LYON

Ecole Doctorale ED162
MEGA de Lyon
(Mécanique, Energétique, Génie Civil, Acoustique)
Spécialité de doctorat : Thermique Energétique

Soutenue publiquement le 07/07/2017, par :
Mostafa AL MASRI

Ebullition nucléée sur des surfaces ultra-polies : influence de la topographie et du revêtement sur le phénomène de nucléation

Devant le jury composé de :

JOURLIN Yves	Professeur des Universités	Université de Saint-Etienne	Président
CANEY Nadia	Maître de Conférences HDR	Université Grenoble Alpes	Rapporteuse
MISCEVIC Marc	Maître de Conférences HDR	Université Paul Sabatier	Rapporteur
TADRIST Lounès	Professeur des Universités	Université d'Aix-Marseille	Examineur
CIOULACHTJIAN Serge	Maître de Conférences	INSA-Lyon	Examineur
LEFEVRE Frédéric	Professeur des Universités	INSA-Lyon	Directeur de thèse

Département FEDORA – INSA Lyon - Ecoles Doctorales – Quinquennal 2016-2020

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	CHIMIE DE LYON http://www.edchimie-lyon.fr Sec : Renée EL MELHEM Bat Blaise Pascal 3 ^e étage secretariat@edchimie-lyon.fr Insa : R. GOURDON	M. Stéphane DANIELE Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de Lyon IRCÉLYON-UMR 5256 Équipe CDFA 2 avenue Albert Einstein 69626 Villeurbanne cedex directeur@edchimie-lyon.fr
E.E.A.	ELECTRONIQUE, ELECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE http://edeea.ec-lyon.fr Sec : M.C. HAVGOUDOUKIAN Ecole-Doctorale.eea@ec-lyon.fr	M. Gérard SCORLETTI Ecole Centrale de Lyon 36 avenue Guy de Collongue 69134 ECULLY Tél : 04.72.18 60.97 Fax : 04 78 43 37 17 Gerard.scorletti@ec-lyon.fr
E2M2	EVOLUTION, ECOSYSTEME, MICROBIOLOGIE, MODELISATION http://e2m2.universite-lyon.fr Sec : Sylvie ROBERJOT Bât Atrium - UCB Lyon 1 04.72.44.83.62 Insa : H. CHARLES secretariat.e2m2@univ-lyon1.fr	M. Fabrice CORDEY CNRS UMR 5276 Lab. de géologie de Lyon Université Claude Bernard Lyon 1 Bât Géode 2 rue Raphaël Dubois 69622 VILLEURBANNE Cédex Tél : 06.07.53.89.13 cordey@univ-lyon1.fr
EDISS	INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-SANTE http://www.ediss-lyon.fr Sec : Sylvie ROBERJOT Bât Atrium - UCB Lyon 1 04.72.44.83.62 Insa : M. LAGARDE secretariat.ediss@univ-lyon1.fr	Mme Emmanuelle CANET-SOULAS INSERM U1060, CarMeN lab, Univ. Lyon 1 Bâtiment IMBL 11 avenue Jean Capelle INSA de Lyon 696621 Villeurbanne Tél : 04.72.68.49.09 Fax : 04 72 68 49 16 Emmanuelle.canet@univ-lyon1.fr
INFOMATHS	INFORMATIQUE ET MATHEMATIQUES http://infomaths.univ-lyon1.fr Sec : Renée EL MELHEM Bat Blaise Pascal, 3 ^e étage Tél : 04.72. 43. 80. 46 Fax : 04.72.43.16.87 infomaths@univ-lyon1.fr	M. Luca ZAMBONI Bâtiment Braconnier 43 Boulevard du 11 novembre 1918 69622 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04 26 23 45 52 zamboni@maths.univ-lyon1.fr
Matériaux	MATERIAUX DE LYON http://ed34.universite-lyon.fr Sec : Marion COMBE Tél: 04-72-43-71-70 –Fax : 87.12 Bat. Direction ed.materiaux@insa-lyon.fr	M. Jean-Yves BUFFIERE INSA de Lyon MATEIS Bâtiment Saint Exupéry 7 avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72.43 71.70 Fax 04 72 43 85 28 Ed.materiaux@insa-lyon.fr
MEGA	MECANIQUE, ENERGETIQUE, GENIE CIVIL, ACOUSTIQUE http://mega.universite-lyon.fr Sec : Marion COMBE Tél: 04-72-43-71-70 –Fax : 87.12 Bat. Direction mega@insa-lyon.fr	M. Philippe BOISSE INSA de Lyon Laboratoire LAMCOS Bâtiment Jacquard 25 bis avenue Jean Capelle 69621 VILLEURBANNE Cedex Tél : 04.72 .43.71.70 Fax : 04 72 43 72 37 Philippe.boisse@insa-lyon.fr
ScSo	ScSo* http://recherche.univ-lyon2.fr/scso/ Sec : Viviane POLSINELLI Brigitte DUBOIS Insa : J.Y. TOUSSAINT Tél : 04 78 69 72 76 viviane.polsinelli@univ-lyon2.fr	M. Christian MONTES Université Lyon 2 86 rue Pasteur 69365 LYON Cedex 07 Christian.montes@univ-lyon2.fr

*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

A mes parents, A ma femme

A mes filles

A mes frères et sœurs

Remerciements

Je remercie chaleureusement tous les membres du jury pour leur participation à la soutenance ainsi que pour leurs commentaires. Je suis très sensible à l'honneur que m'ont fait N. CANEY et M. MISCEVIC en acceptant de juger mon travail de manière approfondie et constructive. J'exprime toute ma gratitude à T. LOUNES, Y. JOURLIN, S. CIOULACHTJIAN pour leur examen de mes travaux, pour leur intérêt et pour les échanges très intéressants que nous avons eus.

Mes plus vifs remerciements vont à F. LEFEVRE et S. CIOULACHTJIAN : merci pour votre patience, votre disponibilité et votre soutien constant, éléments qui auront été très précieux pour la réalisation de cette thèse. J'ai beaucoup apprécié la grande qualité de votre encadrement tant sur le plan scientifique que sur le plan humain.

Je remercie les membres du projet ANR NUCLEI pour leur disponibilité et pour tous les échanges passionnants, notamment : O. PARRIAUX, J. IBRAHIM, C. VEILLAS, F. CELLE, I. VERRIER, Y. JOURLIN, M. MARTIN, C. PUPIER, F. CRAYSSAC, F. BELLENCONTRE, P. PULLUMBI. Merci à l'équipe LHC (O. PARRIAUX, J. IBRAHIM, C. VEILLAS, F. CELLE, I. VERRIER, Y. JOURLIN) pour la fabrication de l'échantillon et pour leur expérience dans le plasmon. Merci à l'équipe de HEF (M. MARTIN, C. PUPIER) pour le revêtement de surface. Merci à l'équipe AirLiquid (F. CRAYSSAC, F. BELLENCONTRE, P. PULLUMBI) d'assister au projet et pour la discussion scientifique intéressant.

Un grand merci pour l'équipe de l'atelier et du service technique, d'une part pour le super travail effectué, et d'autre part pour la très bonne ambiance. Merci à C. DUCAT, N. POUCHOT et J. GIRARD pour la fabrication de mes dispositifs expérimentaux et merci aussi A. BUTHOD, B. LECAREUX et L. GUILMARD pour votre disponibilité.

Un remerciement plus particulier à J. IBRAHIM pour le super travail effectué dans le plasmon de surface. Et merci à O. PARRIAUX pour la correction du modèle développé en annexe 5.

Je remercie chaleureusement les membres du secrétariat pour leur aide précieuse ainsi que pour les discussions sympathiques : F. CANALE, S. GRENIER, M. GALINDO, C. Di RIENZO. Merci à J. BONJOUR pour son écoute et sa bienveillance en tant que directeur du labo. Et aussi merci aux membres de les équipes TCP et ESTF. Un grand merci aux collègues doctorants, post-doctorants (particulièrement L. MERLIER), ATER et ingénieurs pour tous les bons moments passés ensemble.

Merci également à tous les amis de Lyon, Villeurbanne, Paris, Grenoble, du Liban. A mes parents : je vous remercie du fond du cœur de m'avoir supporté dans tous les sens du terme, votre soutien aura été très précieux. Merci également à mes frères, à mes sœurs et à toute la famille pour vos encouragements. Oula, merci infiniment pour ton soutien indéfectible, ta compréhension, ta bonne humeur et surtout tes plats gourmands, et tout le reste (pas la place de lister toutes tes qualités !).

Finalement, la plus grand merci dans le monde à mes filles Sarah et Lara pour me laisser finir ma thèse !

RESUME :

Une étude expérimentale est menée afin de comprendre le phénomène de nucléation lors de l'ébullition. Cette étude est menée sur des surfaces polies miroir ou ultra-polies en aluminium, l'acétone étant le fluide de travail. L'analyse est réalisée en fonction de la topographie de la surface liée au degré de polissage et en fonction du revêtement de la surface dans le but de modifier sa mouillabilité. L'étude a mis en avant trois catégories de comportement, fonctions de l'état de surface : les surfaces nano lisses, les surfaces nano lisses avec défauts et les surfaces rugueuses. Les bonnes caractéristiques obtenues avec des échantillons nano lisses comportant des défauts aléatoirement répartis ont conduit à la réalisation d'échantillons nano lisses avec des défauts de position et de taille contrôlés. Les résultats obtenus avec ces derniers échantillons présentent les meilleures performances. Une amélioration supérieure à un facteur deux par rapport aux surfaces rugueuses est observée, ce qui représente un gain substantiel.

Bien qu'il soit le fondement de la plupart des modèles théoriques, le nucléus à l'origine de la formation d'une bulle n'a jamais été observé expérimentalement car sa taille dépasse la capacité des moyens de mesure traditionnels. Dans ce mémoire, une méthode optique - basée sur la résonance de plasmons sur des surfaces comportant un réseau de diffraction - est utilisée dans le but d'étudier ce phénomène. Les expériences mettent en évidence la capacité de cette méthode à mesurer la variation de la température pariétale de l'échantillon avant le déclenchement de l'ébullition. Les mesures de résonance plasmon montrent qu'il n'y a pas de modification de la densité du fluide au voisinage de la paroi pour des surchauffes proches du déclenchement de l'ébullition. La nucléation est trop rapide pour être mesurée. Cependant, des premiers nuclei de condensation ont été détectés par cette méthode, ce qui constitue un résultat très prometteur.

MOTS-CLÉS :

Bancs expérimentaux, nucléation homogène et hétérogène, déclenchement de l'ébullition nucléée, surface ultra polie, surface nanostructuré, cavité artificielle, ébullition nucléée en vase, transfert thermique par ébullition, mouillabilité, polissage, microscopie confocale, plasmon de surface, indice de réfraction, coefficient thermo-optique, condensation, évaporation, convection naturelle.

ABSTRACT:

An experimental study was conducted in order to understand the phenomenon of nucleation in boiling. This study was done on smooth surface or ultra-smooth surface made of aluminum, the working fluid is acetone. The analysis was realized as a function of the topography of the sample, roughness level, and as a function of nanocoating of the surface in order to modify the wettability. The study classed the sample in three categories, depending on the surface condition: the ultra-smooth surface, the ultra-smooth surface with defect and the rough surface. The good characteristics were obtained for the ultra-smooth sample with randomly distributed defects led to the fabrication of ultra-smooth sample with controlled artificial cavity. The results obtained with these latter samples present the best performances. A two-fold improvement over rough surfaces is observed, representing a substantial gain.

Although it is the foundation of most theoretical models, the nucleus at the origin of the formation of a bubble has never been observed experimentally because its size exceeds the capacity of the traditional means of measurement. In this memory, an optical method - based on the resonance of plasmons on surfaces with a diffraction grating - is used to study this phenomenon. The experiments demonstrate the ability of this method to measure the temperature variation in the wall of the sample before boiling. Plasmon resonance measurements show that there is no change in the density of the fluid near the wall for overheating close to the boiling point. The nucleation is too fast to be measured. However, first nuclei of condensation were detected by this method, which is a very promising result.

KEYWORDS:

Experimental benches, homogeneous and heterogeneous nucleation, onset of nucleate boiling, ultra-smooth surface, nanostructured surface, artificial cavity, nucleate pool boiling, boiling heat transfer, wettability, polishing, confocal microscopy, surface plasmon, refractive index, Thermo-optic coefficient, condensation, evaporation, natural convection.

TABLES DE FIGURES.....	4
NOMENCLATURE.....	8
INTRODUCTION.....	13
CHAPITRE 1 : GENERALITES ET ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE.....	16
1.1. LES ASPECTS THERMODYNAMIQUES	16
1.1.1. <i>Changement d'état liquide-vapeur.....</i>	16
1.1.2. <i>Condition d'équilibre d'une bulle.....</i>	18
1.1.3. <i>Condition de croissance d'une bulle.....</i>	20
1.2. LA NUCLEATION	20
1.2.1. <i>Nucléation homogène.....</i>	21
1.2.2. <i>Nucléation hétérogène</i>	22
1.2.2.1. Nucléation sur une surface parfaitement plane	22
1.2.2.2. Nucléation par activation d'embryons préexistants	24
1.2.2.2.1. Modèle de Bankhoff	24
1.2.2.2.2. Croissance d'une bulle dans un site	26
1.2.2.2.3. Modèle de Hsu	27
1.3. LES LIMITES DE LA THEORIE CLASSIQUE DE LA NUCLEATION ET LES APPROCHES COMPLEMENTAIRES.....	29
1.4. COURBE D'EBULLITION ET COEFFICIENTS D'ECHANGES	31
1.4.1. <i>Description de la courbe d'ébullition.....</i>	31
1.4.2. <i>Mécanismes des transferts de chaleur</i>	33
1.4.3. <i>Corrélations sur les transferts de chaleur</i>	33
1.5. CARACTERISTIQUE DES BULLES	35
1.6. ROLE DE LA SURFACE DANS LE TRANSFERT DE CHALEUR PAR EBULLITION NUCLEE	36
1.6.1. <i>Influence de la topographie de la surface</i>	36
1.6.1.1. Effet de la rugosité sur l'ébullition	36
1.6.1.2. Sites de nucléation artificiels	38
1.6.1.3. <i>Interaction entre sites voisins.....</i>	39
1.6.2. <i>Influence de la chimie de la surface</i>	41
1.6.2.1. Effet de l'architecture cristalline.....	41
1.6.2.2. Effet de la mouillabilité	41
1.6.3. <i>Anomalie de l'ébullition sur les surfaces ultra-lisses.....</i>	42
1.7. CONCLUSION	44
CHAPITRE 2 : PREPARATION ET CARACTERISATION DES SURFACES D'EBULLITION.....	45
2.1. GEOMETRIE DES ECHANTILLONS D'ESSAI.....	45
2.2. POLISSAGE DES ECHANTILLONS	46
2.3. CHIMIE DE SURFACE DES ECHANTILLONS ET FLUIDE	48
2.4. CARACTERISATION DES SURFACES.....	49
2.4.1. <i>Mesures au microscope confocal.....</i>	49
2.4.2. <i>Détermination de l'état de surface.....</i>	50
2.4.3. <i>Bilans des échantillons d'essais.....</i>	53
2.5. ECHANTILLONS AVEC CAVITE ARTIFICIELLE	56
2.6. ECHANTILLONS AVEC RESEAUX DE DIFFRACTION	59
2.6.1. <i>Aluminium gravé.....</i>	59
2.6.2. <i>Dépôt d'aluminium sur résine</i>	60
2.6.3. <i>Caractérisation des réseaux</i>	62
2.7. CONCLUSION	63
CHAPITRE 3 : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX.....	64
3.1. BANCS EXPERIMENTAUX	64
3.1.1. <i>Dispositif expérimental adapté à la visualisation</i>	64
3.1.2. <i>Dispositif expérimental adapté à la mesure plasmonique (cas ébullition)</i>	66
3.1.3. <i>Eléments communs aux deux dispositifs</i>	68
3.1.3.1. <i>Elément chauffant</i>	68

3.1.3.2.	Thermocouples.....	69
3.1.3.3.	Mesures de la pression	70
3.1.3.4.	Autres éléments.....	70
3.1.3.5.	Fluide utilisé.....	70
3.2.	MESURE DES GRANDEURS ET INSTRUMENTATION UTILISEE POUR L'ANALYSE	70
3.2.1.	Mesure de la puissance thermique.....	70
3.2.2.	Visualisation de l'ébullition	71
3.2.3.	Détection des phénomènes par plasmon de surface	71
3.3.	PROCEDURE EXPERIMENTALE	71
3.3.1.	Spécification banc 1	72
3.3.2.	Spécification banc 2	73
3.4.	CORRECTION NUMERIQUE DE COURBES D'EBULLITION	75
3.4.1.	Mise en évidence de l'influence de l'épaisseur de métal au fond de la rainure	75
3.4.2.	Modèle numérique 2D.....	76
3.4.3.	Estimation des paramètres du modèle par comparaison avec l'expérience	79
3.5.	ANALYSE DES INCERTITUDES EXPERIMENTALES	80
3.6.	CONCLUSION	82
CHAPITRE 4 : ANALYSE EXPERIMENTALE DE L'EBULLITION NUCLEEE SUR DES SURFACES LISSES, RUGUEUSES ET NANO-STRUCTUREES		83
4.1.	COMPARAISON DE L'EBULLITION POUR LES DIFFERENTS TYPES DE SURFACES.....	83
4.1.1.	Ebullition sur une surface nano lisse sans défauts	83
4.1.2.	Ebullition sur une surface rugueuse	86
4.1.3.	Ebullition sur une surface lisse avec défauts	88
4.1.3.1.	Cas particulier de la surface S_{Ld1+}	88
4.1.3.2.	Autres surfaces lisses avec défauts.....	89
4.1.4.	Ebullition sur une surface nano lisse avec des trous aléatoirement répartis	92
4.1.5.	Ebullition sur une surface nano lisse avec un réseau gravé.....	94
4.1.6.	Effet d'un revêtement sur la surface	95
4.1.7.	Comparaison de l'ébullition sur ces différents types de surfaces	97
4.2.	ETUDE DU PHENOMENE DE NUCLEATION	99
4.2.1.	Cas des surfaces nano-lisses sans défauts.....	99
4.2.2.	Cas de la surface rugueuse S_{RI}	101
4.2.3.	Cas des surfaces lisses avec défauts.....	102
4.2.4.	Cas des échantillons gravés par un réseau.....	105
4.3.	CONCLUSION	108
CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE		110
5.1.	INTRODUCTION SUR LES PLASMONS DE SURFACE	110
5.2.	ELEMENTS THEORIQUES SUR LES PLASMONS DE SURFACE.....	111
5.2.1.	Configuration permettant d'exciter les plasmons de surface par un réseau	111
5.2.2.	Modèle de Drude-Lorentz (ou Drude-Sommerfeld)	113
5.2.3.	Relations de dispersion.....	115
5.2.4.	Couplage par réseaux de diffraction.....	118
5.2.5.	Détermination de la longueur d'onde correspondant à une absorption maximale.....	121
5.2.6.	Effet de la période du réseau métallique et de l'indice de réfraction du milieu	123
5.2.7.	Propriétés géométriques des plasmons de surface	125
5.2.8.	Simulation de réponse plasmonique par C-méthode.....	126
5.3.	INDICE DE REFRACTION DE L'ACETONE	128
5.4.	MISE EN PLACE DU DISPOSITIF POUR L'ETUDE DU PLASMON.....	129
5.4.1.	Réglage de l'angle d'incidence	129
5.4.2.	Signal expérimental.....	130
5.4.3.	Effet de la température et influence du hublot en verre de l'enceinte.....	132
5.5.	DETECTION PLASMONIQUE APPLIQUEE A LA CONDENSATION.....	133
5.6.	DETECTION PLASMONIQUE APPLIQUEE A L'EVAPORATION.....	137

5.7.	DETECTION PLASMONIQUE POUR L'EBULLITION NUCLEEE	138
5.8.	ETALONNAGE DE REPOSE PLASMONIQUE	143
5.9.	CONCLUSION	147
CONCLUSION ET PERSPECTIVES		148
REFERENCES.....		151
ANNEXE 1 : ECRITURE DES ONDES EVANESCENTES SOUS FORME COMPLEXE		160
ANNEXE 2 : NECESSITE DES ONDES TRANSVERSES MAGNETIQUES.....		163
A2.1. DETERMINATION DU CHAMP MAGNETIQUE CONNAISSANT LE CHAMP ELECTRIQUE OU INVERSEMENT		163
A2.2. RELATIONS DE CONTINUITE.....		163
ANNEXE 3 : EXPRESSION DU VECTEUR K.....		168
ANNEXE 4 : ROLE DU RESEAU		170
ANNEXE 5 : DETERMINATION DE L'INDICE DE REFRACTION DE L'ACETONE A PARTIR DES DONNEES SUR LE PLASMON.		173
ANNEXE 6 : SENSIBILITE ET RESOLUTION THERMIQUE DE SPR		179
ANNEXE 7 : MESURE DE LA TEMPERATURE PAR PLASMON DE SURFACE		182
ANNEXE 8 : ETUDE NUMERIQUE DE LA REPARTITION DE LA TEMPERATURE.....		184
ANNEXE 9 : CORRECTION DES RESULTATS PAR MODELE NUMERIQUE.....		188
ANNEXE 10 : TOPOGRAPHIE DE SURFACE		192
A10.1. CARACTERISATION DE CAVITES ARTIFICIELLES		192
A10.1.1. <i>Caractérisation des cavités artificielles de l'échantillon S_{C1}</i>		192
A10.1.2. CARACTERISATION DE CAVITES ARTIFICIELLES DE L'ECHANTILLON S_{C2}		196
A10.2. CARACTERISATION DU RESEAU METALLIQUE PAR AFM		198
ANNEXE 11 : L'ASPECT DE L'EBULLITION		199

Tables de figures

Figure 1.1 : Diagramme de phase $P=f(1/\rho)$ de Clapeyron pour un corps pur.....	16
Figure 1.2 : Pression dans la vapeur et dans le liquide pour une bulle de rayon r^*	19
Figure 1.3 : Surchauffe du liquide à la surface d'une paroi chauffée où a lieu l'ébullition	19
Figure 1.4 : Variation de l'énergie de formation d'une bulle en fonction de son rayon r	20
Figure 1.5 : Variation du taux de nucléation hétérogène J' pour l'acétone à $p = 1,15$ bars.....	23
Figure 1.6 : Variation de la température limite T_L de l'acétone en fonction de l'angle de contact pour une pression de 1,15 bar.....	23
Figure 1.7 : Emprisonnement et formation du germe de vapeur initial	25
Figure 1.8 : Courbure de l'interface dans les sites en fonction de l'angle de contact θ , de de l'angle β et de la forme du site.....	25
Figure 1.9 : Embryon de vapeur au sein d'une cavité conique.	26
Figure 1.10 : Evolution de la courbure d'une bulle dans une cavité conique en fonction de son volume.....	26
Figure 1.11 : Croissance d'une bulle dans la couche de liquide surchauffée	28
Figure 1.12 : Evolution de la température dans la couche thermique.	28
Figure 1.13 : Courbe d'ébullition.....	31
Figure 1.14 : Courbe d'ébullition obtenue par la corrélation de Rohsenow pour le couple éthanol /aluminium à 1,15 bar.....	34
Figure 1.15 : Variation de la surchauffe nécessaire pour le déclenchement en fonction de la rugosité	43
Figure 2.1 : a) Vue de la face arrière de l'échantillon ; b) Champ de température de l'échantillon dans les conditions de l'expérience.....	46
Figure 2.2 : Polisseuse et outils de polissage.....	47
Figure 2.3 : Microscopie confocale : (a) Schéma de principe (b) Photo du système	50
Figure 2.4 : Carte de balayage.....	51
Figure 2.5 : Exemple de profil avant et après correction numérique de la planéité	52
Figure 2.6 : Exemple d'un défaut détecté, a) vue globale, b) vue zoomée	53
Figure 2.7 : Histogramme d'altitudes corrigées pour trois types d'échantillons : ultra lisse sans ou avec défauts et rugueux.....	55
Figure 2.8 : Histogramme d'altitudes corrigées pour six surfaces de rugosités différentes	56
Figure 2.9 : Histogramme d'altitudes corrigées pour deux surfaces avec dépôt chimique aCH et aSiCH.....	56
Figure 2.10 : Distribution des cavités ; a) échantillon SC_1 b) échantillon SC_2	57
Figure 2.11 : Exemple de la forme d'une cavité réalisée sur l'échantillon SC_1	58
Figure 2.12 : Exemple d'ouverture d'une cavité.....	58
Figure 2.13 : Les étapes de fabrication du réseau sur l'aluminium.....	59
Figure 2.14 : Caractérisation du réseau fabriqué par voie sèche.....	60
Figure 2.15 : Fabrication de réseau sur la résine par photolithographie.....	60
Figure 2.16 : Fabrication de réseau sur la résine par nano-impression.....	61
Figure 2.17 : Caractérisation du moule utilisé lors de la procédure de nano-impression.....	61
Figure 2.18 : Photo par microscope optique, 50 X à gauche et 100 X à droite	61
Figure 2.19 : Caractérisation de réseau par AFM pour la surface S_{NRI}	62
Figure 2.20 : Exemple de profil de la surface avec nanoréseau mesuré par AFM	62
Figure 3.1 : a) Photographie du dispositif expérimental ; b) Photographie de l'enceinte ; c) Schéma de l'enceinte avec les éléments principaux.....	65
Figure 3.2 : Système de fixation par piston ; a) photographie du piston ; b) schéma montrant le piston insérant la résistance et le fluxmètre contre l'échantillon	66
Figure 3.3 : Photographie du dispositif expérimental ; a) Enceinte avec l'instrumentation ; b) Système optique pour la mesure Plasmon.....	67
Figure 3.4 : Schéma du dispositif pour la mesure plasmon.....	68
Figure 3.5 : Élément chauffant.....	69
Figure 3.6 : Mise en place du thermocouple sur la face inférieure de l'échantillon.....	69
Figure 3.7 : Montée en température de l'acétone dans l'enceinte à l'aide du bain thermostaté	72
Figure 3.8 : Installation et réglage du système optique pour l'étude de plasmon de surface	74
Figure 3.9 : Courbes non corrigées de convection naturelle pour 3 échantillons différents	76
Figure 3.10 : Conditions aux limites et nœuds du modèle thermique.....	77

Figure 3.11 : Surchauffe en convection naturelle pour trois différentes épaisseurs de la couche métallique séparant la zone d'étude de la périphérie de l'échantillon ($H_r = 150 \mu\text{m}$, $H_r = 200 \mu\text{m}$ et $H_r = 250 \mu\text{m}$) ; $q = 15 \text{ W/cm}^2$; $h_{nc} = 500 \text{ W/m}^2\text{K}$	78
Figure 3.12 : Surchauffe en présence d'ébullition pour trois différentes épaisseurs de la couche métallique séparant la zone d'étude de la périphérie de l'échantillon ($H_r = 150 \mu\text{m}$, $H_r = 200 \mu\text{m}$ et $H_r = 250 \mu\text{m}$) ; $q = 15 \text{ W/cm}^2$; $h_{nc} = 500 \text{ W/m}^2\text{K}$; $h_b = 2500 \text{ W/m}^2\text{K}$	78
Figure 3.13 : Photo de la zone d'ébullition.....	79
Figure 3.14 : Courbes de convection naturelle ; a) données brutes de capteurs ; b) données traitées avec correction de perte thermique.....	80
Figure 3.15 : Positions des thermocouples insérés sur la face arrière de l'échantillon.....	80
Figure 3.16 : Courbes brutes de la convection naturelle en régime croissant pour quatre tests.....	81
Figure 3.17 : Courbes brutes de la convection naturelle en régime de flux thermique décroissant.....	81
Figure 4.1 : Courbe typique d'ébullition obtenue sur une surface ultra-lisse (échantillon S_{N2+}).....	84
Figure 4.2 : Courbe typique d'ébullition corrigée obtenue sur une surface ultra-lisse (S_{N2+}).....	84
Figure 4.3 : Aspect de l'ébullition à deux instants différents pour une surface ultra-lisse et une même densité de flux thermique égale à $1,6 \text{ W/cm}^2$	86
Figure 4.4 : Courbes d'ébullitions corrigées pour une surface « rugueuse » (S_{R1}).....	87
Figure 4.5 : Courbes d'ébullition corrigées pour une surface lisse avec défauts (S_{Ld1+}).....	88
Figure 4.6 : Courbes d'ébullition corrigées pour plusieurs surfaces lisses avec défauts.....	90
Figure 4.7 : Histogramme d'altitudes corrigées pour S_{R1} et S_{Ld7}	91
Figure 4.8 : Comparaison de l'aspect de l'ébullition à flux thermique décroissant pour les échantillons S_{Ld4} , S_{Ld5} , S_{Ld6} , S_{R1}	91
Figure 4.9 : Courbes d'ébullition corrigées des surfaces lisses avec défauts aléatoires et de position contrôlée.....	92
Figure 4.10 : Courbes d'ébullition pour l'échantillon S_{C2} jusqu'au flux critique.....	93
Figure 4.11 : Coefficient d'échange pour l'échantillon S_{C2} jusqu'au flux critique.....	94
Figure 4.12 : Courbes d'ébullition pour une surface lisse avec réseau gravé (échantillon S_{NR1}).....	95
Figure 4.13 : Courbes d'ébullition pour une surface avec dépôt aCH et aSiCH.....	96
Figure 4.14 : histogramme pour les surfaces comparées en figure 4.13.....	96
Figure 4.15 : Comparaison de l'aspect de l'ébullition à flux décroissant, entre les 3 types d'échantillon et pour les mêmes densités de flux thermique.....	97
Figure 4.16 : Comparaison des courbes d'ébullition pour les 4 types de surface (nano-lisse S_{N2+} , rugueuse S_{R1} , lisse avec défauts S_{Ld1+} et S_{C2}).....	98
Figure 4.17 : Comparaison des courbes d'ébullition pour les 4 types de surface (nano-lisse S_{N2+} , rugueuse S_{R1} , lisse avec défauts S_{Ld1+} et S_{C2}).....	98
Figure 4.18 : Variation de la chute de température ΔT_c au déclenchement en fonction de la surchauffe d'apparition de l'ébullition ΔT_q	99
Figure 4.19 : Déclenchement de l'ébullition pour l'échantillon S_{N2+}	100
(Test n°1, $T_p - T_{sat} = 73,5 \text{ K}$, $q = 3,5 \text{ W/cm}^2$).....	100
.....	102
Figure 4.20 : Apparition de la nucléation de l'acétone sur une surface « rugueuse » (échantillon S_{R1}).....	102
.....	102
Figure 4.21 : Déclenchement de l'ébullition pour la surface lisse avec défauts S_{Ld1+}	103
(a) Test 2: $T_p - T_{sat} = 70,6 \text{ K}$; $q = 3,3 \text{ W/cm}^2$	103
(b) Test 3: $T_p - T_{sat} = 61,3 \text{ K}$; $q = 3,6 \text{ W/cm}^2$	103
Figure 4.22 : Evolution temporelle de la zone de déclenchement de l'ébullition sur la surface lisse avec défauts S_{Ld2}	104
Figure 4.23 : Evolution temporelle de la zone de déclenchement de l'ébullition sur la surface lisse avec défauts S_{Ld3}	105
Figure 4.24 : Géométrie du réseau.....	105
Figure 4.25 : Nucléation de l'acétone (surface S_{NR1}).....	106
Figure 4.26 : Nucléation de l'acétone (surface S_{NR1}).....	107
Figure 4.27 : Estimation du diamètre du nucléus en fonction du temps en début de croissance (surface S_{NR1}).....	108
Figure 5.1 : Configuration physique de l'excitation d'un plasmon sur un réseau 1D.....	112
Figure 5.2 : Orientation du faisceau. (a) conduisant à la diffraction conique (b) donnant une diffraction linéaire.....	112

Figure 5.3 : Permittivité diélectrique relative de l'aluminium déposé par pulvérisation ionique (Hastanin, 2009)	115
Figure 5.4 : Interface métal-diélectrique	116
Figure 5.5 : Différence de chemin optique entre 2 rayons incidents distants, sur le réseau, de la périodicité spatiale Λ et diffractés selon la direction définie par l'angle β	119
Figure 5.6 : Ordres de diffraction entiers possibles pour un réseau en réflexion avec $\lambda_0 = 600 \text{ nm}$, $\Lambda = 760 \text{ nm}$ et $\theta_i = 30^\circ$	119
Figure 5.7 : Exemple d'un réseau par réflexion éclairé en incidence normale et sans effet « plasmon ». Eclairement (W/m^2) normalisé reçue par un écran en fonction de l'angle d'observation	121
Figure 5.8 : Evolution du pic d'absorption du plasmon en fonction de l'angle d'incidence pour l'interface aluminium/acétone et aluminium/gaz	123
Figure 5.9 : Evolution de la longueur d'onde du pic plasmon en fonction de la période du réseau de diffraction	124
Figure 5.10 : Evolution de la longueur d'onde du pic plasmon en fonction de l'indice de milieu diélectrique	124
Figure 5.11 : Propriétés géométriques de plasmon de surface (interface Al/acétone)	126
Figure 5.12 : Optimisation de la hauteur h de la gravure	127
Figure 5.13 : Evolution de la réponse plasmonique durant la formation d'une couche de vapeur	128
Figure 5.14 : Evolution de l'indice de réfraction de l'acétone en fonction de température	129
Figure 5.15 : Déviation des rayons lumineux à la traversée des différents dioptrés plans et tracé du rayon réfracté correspondant à l'ordre d'interférence nul	130
Figure 5.16 : Réponse plasmonique typique (expérimentale)	131
Figure 5.17 : Identification de la longueur d'onde de résonance du pic de plasmon	131
Figure 5.18 : Longueur d'onde de la résonance plasmon pour l'interface Al/air	132
Figure 5.19 : Longueur d'onde de la résonance plasmon pour l'interface Al/acétone	133
Figure 5.20 : Dispositif expérimental modifié pour l'étude de la condensation	134
Figure 5.21 : Suivi du déplacement de la longueur d'onde de résonance du plasmon en temps réel lors de la condensation	134
Figure 5.22 : Réponse plasmonique lors de l'apparition de condensation sur la surface	135
Figure 5.23 : Réponse plasmonique lors de l'apparition de condensation sur la surface S_{NR3}	136
Figure 5.24 : Réponse plasmonique durant la transition de l'état vapeur à l'état liquide	137
Figure 5.25 : Réponse plasmonique durant la transition de l'état liquide à l'état vapeur	138
Figure 5.26 : formation du pied lors du détachement d'une bulle dans le cas d'un fluide mouillant (Siedel, 2012)	139
Figure 5.27 : mécanisme de détachement de la bulle pour une bulle adhérent à la paroi (fluide mouillant) (Mitrovic, 1983) ; a) Forme de la bulle avant détachement ; b) Constriction du pied et rupture ; c) Condensation de la vapeur résiduelle et mouvement du liquide	140
Figure 5.28 : Réponse plasmonique en convection naturelle pour la surface S_{NR2}	141
Figure 5.29 : Réponse plasmonique en fonction de la température pour la surface S_{NR3}. Comparaison avec la droite de référence obtenue avec la surface S_{NR2}	142
Figure 5.30 : Enregistrement du signal plasmonique au déclenchement de l'ébullition	143
Figure 5.31 : Hublot pour l'étalonnage du plasmon en températures avec l'acétone liquide	144
Figure 5.32 : Evolution de la réponse plasmonique en fonction de la température de l'échantillon pour deux angles d'incidence : $\theta_1 = 35^\circ$ et $\theta_2 = 30^\circ$	145
Figure 5.33 : Comparaison de la réponse plasmonique entre l'étalonnage et le résultat obtenu en convection naturelle juste avant le déclenchement d'ébullition	146
Figure 5.34 : Sensibilité expérimentale de réponse plasmonique en fonction de la température de l'échantillon	146
Figure A1.1 : Configuration étudiée. a) décroissance de l'amplitude en fonction de la distance à l'interface. b) Repère utilisé	160
Figure A2.1 : repère utilisé et orientation de l'interface	164
Figure A2.2 : Représentation des champs électromagnétiques dans les 2 milieux	166
Figure A4.1 : Variation, en fonction de λ_0, de ϵ_r' et ϵ_r'' pour l'aluminium	170
Figure A4.2 : Mise en évidence de l'impossibilité d'exciter des plasmons sur une surface plane (l'indice de l'acétone prise	171
Figure A4.3 : Détermination de la longueur d'onde d'excitation du plasmon, pour $n = 1,34$ et $\theta_i = 35^\circ$	172
Figure A5.1 : Evolution de coefficient thermo optique de l'acétone en fonction de température	177

Figure A5.2 : Evolution de l'indice de réfraction en fonction de la température	178
Figure A5.3 : Comparaison d'indice de réfraction de l'acétone entre le modèle de ce travail et les valeurs expérimentales	178
Figure A6.1 : Limite théorique de résolution en température de SPR	181
Figure A7.1 : Mesure de température par SPR.....	182
Figure A7.2 : Température de l'échantillon, T_{SPR} à l'interface Al/acétone.....	183
Figure A8.1 : Conditions aux limites du modèle	184
Figure A8.2 : Surchauffes obtenues en convection naturelle pour trois épaisseurs de couche métallique au fond de la rainure.....	185
($H_r = 100 \mu m$, $H_r = 200 \mu m$ et $H_r = 300 \mu m$) ; $\varphi_m = 15 W/cm^2$; $h_{nc} = 500 W/m^2K$	185
Figure A8.3 : Les deux largeurs de rainure utilisées pour les échantillons.....	185
Figure A8.4 : Surchauffes obtenues en convection naturelle avec deux largeurs de rainure ($W = 5 mm$ et $10 mm$) ; $\varphi_m = 15 W/cm^2$; $h_{nc} = 500 W/m^2K$.....	186
Figure A8.5 : Coin en plus vers un cas plus réel.....	186
Figure A8.6 : Surchauffe en convection naturelle pour deux configurations, l'un avec coin et l'autre idéale sans coin ($W = 5 mm$) ; $\varphi_m = 15 W/cm^2$; $h_{nc} = 500 W/m^2K$	187
Figure A9.1 : Conditions aux limites et nœuds du modèle thermique	188
Figure A10.1 : Cartographie de la position des trous pour l'échantillon S_{C1}.....	192
Figure A10.2 : Cavité N°1.....	193
Figure A10.3 : Cavité N°3.....	193
Figure A10.4 : Cavité N°4.....	194
Figure A10.5 : Cavité N°7.....	194
Figure A10.6 : Cavité N°8.....	195
Figure A10.7 : Cavité N°10.....	195
Figure A10.8 : Cavité N°12.....	196
Figure A10.9 : Cavité N°1.....	197
Figure A10.10 : Cavité N°2.....	197
Figure A10.11 : Cavité N°3.....	198
Figure A10.12 : Caractérisation de réseau par AFM pour la surface S_{NR2}	199
Figure A10.13 : caractérisation de réseau par AFM pour la surface S_{NR}.....	199

NOMENCLATURE

<i>Lettres latines</i>		Unités S.I.
A	Aire de la bulle	m^2
B	Vecteur champ magnétique	T (tesla)
c_p	Chaleur spécifique	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
$C_{s,f}$	Coefficient (équation de Rohsenow)	
D	Diamètre de la cavité	m
D_d	Diamètre de détachement de la bulle	m
E	Vecteur champ électrique	V m^{-1}
f_d	Fréquence de détachement des bulles	s^{-1}
g	Accélération de la pesanteur	m s^{-2}
G	Energie Libre	J
ΔG	Variation de l'énergie libre	J
$\vec{G}$	Vecteur associé au réseau de diffraction	m^{-1}
h	Profondeur de la gravure du réseau	m
h	Coefficient d'échange thermique	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$
h_{lv}	Enthalpie de vaporisation	J kg^{-1}
h_b	Coefficient d'échange thermique par ébullition	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$
h_{nc}	Coefficient d'échange thermique par convection naturelle	$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$
H	Profondeur de la cavité	m
H_r	Epaisseur de métal au fond de la rainure	m
H_s	Epaisseur de l'échantillon en aluminium	m
J	Taux de formation d'embryon ou de nucléation	$\text{m}^{-3} \text{s}^{-1}$
J'	Taux de formation d'embryon ou de nucléation	$\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$
$\vec{k}$	Vecteur d'onde	m^{-1}
$\vec{K}_{sp}$	Vecteur d'onde associé au plasmon de surface	m^{-1}
L_{SP}	Longueur de propagation de l'onde plasmon	m
m	Masse d'une molécule	kg
$\bar{M}$	Masse molaire	Kg mol^{-1}

m	Nombre d'ordre	
n	Indice de réfraction	
n_e	Indice effectif (plasmon de surface)	
p	Pression	Pa
$\vec{P}$	Vecteur polarisation	C m ⁻²
q	Densité surfacique de flux thermique corrigé	W m ⁻²
r	Rayon de la bulle	m
r^*	Rayon de bulle à l'équilibre	m
r_c	Rayon d'ouverture de la cavité	m
$\vec{r}$	Vecteur position	m
R_i	Rayon initial	m
Ra	Rugosité arithmétique	m
RMS	Root mean square	m
s	Entropie	J K ⁻¹
S	Espacement entre les cavités	m
t	Temps	s
T	Température	K
T_m	Température mesurée sous l'échantillon	K
ΔT	Surchauffe	K
$\vec{u}$	Vecteur position	m
v	Volume	m ³
W	Largeur de rainure en face arrière de l'échantillon	m
x_p	Profondeur de pénétration	m
z	Hauteur des rugosités sur les profils de surface	m

Lettres grecques

α	Coefficient d'atténuation (eq. 5.12)	m ⁻¹
α_l	Diffusivité thermique du liquide	m ² s ⁻¹
α	Coefficient de dilatation volumétrique	K ⁻¹
β	Coefficient d'atténuation lié à l'absorption (eq. 5.12)	m ⁻¹

β	Demi angle d'ouverture de cavité conique	rd
β_m	Angle de diffraction associé à l'ordre m	rd
δ_t	Epaisseur de couche limite thermique	m
ε_0	Permittivité diélectrique du vide = $8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F m}^{-1}$	F m^{-1}
ε	Permittivité diélectrique du milieu	F m^{-1}
ε_r	Permittivité diélectrique relative	
θ_i	Angle d'incidence	rd
θ	Angle de contact	rd
Λ	Période spatiale d'un réseau	m
λ	Conductivité thermique	$\text{W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$
λ	Longueur d'onde dans le milieu	m
λ_0	Longueur d'onde dans le vide	m
μ	Potentiel chimique	J
μ_l	Viscosité dynamique du liquide	$\text{Kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$
ξ	Nombre de molécules pour unité de volume	m^{-3}
ρ	masse volumique	kg m^{-3}
σ	Tension interfaciale liquide-vapeur	N m^{-1}
τ	Temps caractéristique	s
φ	Déphasage	rd
φ_m	Densité surfacique de flux thermique brut mesuré	W m^{-2}
ω_P	Pulsation plasma	s^{-1}
ω	Pulsation	s^{-1}

Indices

0	Ordre 0
0	Vide
b	Bulle
c	Critique
d	Diélectrique

d	Détachement
e	Equilibre
g	Gaz
i	Initial ou incident
l	Liquide
L	Limite
m	Métal
p	Paroi
r	Relatif ou réfléchi
sat	Saturation
SP	Surface de plasmon
v	Vapeur

Coordonnées

x	Position selon l'axe x
y	Position selon l'axe y
z	Position selon l'axe z

Symboles particuliers

'	Partie réelle de la grandeur complexe
"	Partie imaginaire de la grandeur complexe
—	Grandeur complexe

Abréviations

CHF	Flux thermique critique
CNT	Théorie classique de la nucléation
DFT	Densité fonctionnelle
LJ	Potentiel d'interaction Lennard Jones
MC	Monte Carlo
MD	Dynamique moléculaire
TE	Modes transverses électriques
TM	Modes transverses magnétiques

Nombres adimensionnels et constantes physiques

$Ja^* = \frac{c_{p,l} \rho_l T_{sat}}{\rho_v h_{lv}}$	Nombre de Jakob modifié
$Ja = \frac{c_{p,l} \rho_l \Delta T_{sat}}{\rho_v h_{lv}}$	Nombre de Jakob
C	Célérité de la lumière = $3 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$
e	Charge électrique élémentaire = $1,6 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
m_e	Masse de l'électron = $0,9 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$
R	Constante des gaz parfaits = $8,31 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$
K_B	Constante de Boltzmann = $1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$
N_A	Nombre d'Avogadro = $6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$

INTRODUCTION

Ce travail a été mené dans le cadre du projet ANR NUCLEI (ANR-12-SEED-0003). NUCLEI est l'acronyme de « Optimisation des performances thermiques des échangeurs diphasiques par contrôle de la topographie et de la chimie de surface ». Financé par l'Agence Nationale de la Recherche, ce projet associe le Centre d'Energétique et de Thermique de Lyon (CETHIL), le Laboratoire Hubert Curien (LabHC), l'Institut de Recherches En Ingénierie des Surfaces (IREIS groupe HEF) et le Centre de recherche Paris-Saclay du groupe Air Liquide.

La séparation cryogénique de l'air s'effectue à des températures très basses, fonctions de la température d'ébullition de chacun des constituants. Ce procédé est extrêmement consommateur en énergie, particulièrement en énergie électrique. Ainsi, Air liquide est le troisième consommateur d'électricité en France après la SNCF et Arcelor Mittal ; sa consommation globale d'électricité en 2010 était de 24,9 TWh. Ainsi, une amélioration des transferts de chaleur dans les échangeurs cryogéniques, même faible, peut conduire à des économies d'énergie substantielles.

De nombreuses applications industrielles utilisent le phénomène d'ébullition nucléée pour transférer de grandes quantités de chaleur avec des écarts de température acceptables. L'optimisation énergétique de ces systèmes nécessite d'intensifier les échanges thermiques par ébullition. De nombreuses études ont montré que la modification de la topographie des surfaces à l'échelle millimétrique ou micrométrique permet d'intensifier considérablement ces échanges. Cependant, ces études ne permettent pas de comprendre les mécanismes fondamentaux responsables de cette modification, notamment les phénomènes à l'origine de la naissance ou de la croissance d'une bulle, ce qui limite leur portée.

La recherche de surfaces optimales pour l'ébullition, capables d'évacuer de très hautes densités de flux de chaleur, a fait l'objet de nombreux travaux expérimentaux et théoriques au cours des cinquante dernières années (Webb 2004 et Mitrovic 2006). Jusqu'à présent, les études se sont surtout focalisées sur des surfaces très complexes possédant une quantité innombrable de sites de nucléation et présentant une surface développée considérable (surfaces à revêtements poreux, surfaces à revêtements de nanoparticules ou de nanotubes de carbone, surfaces avec micro-gravures, etc.). De telles surfaces sont très efficaces et les phénomènes d'intensification sont qualitativement bien compris. Cependant leur grande complexité ne permet pas de mener une étude théorique approfondie ou de repérer les paramètres d'influence les plus importants nécessaires pour réaliser des surfaces optimales, pas nécessairement aussi complexes. Or, les mécanismes physiques de base sont encore mal maîtrisés ou mal compris, tels que par exemple le processus précédant la formation d'une bulle de vapeur stable. Il est donc nécessaire de revenir à des surfaces de base, c'est-à-dire des surfaces ultra-lisses. Paradoxalement, la littérature présente peu d'études du phénomène d'ébullition sur les surfaces ultra-lisses. Les travaux sur les surfaces métalliques avec des rugosités de l'ordre du nanomètre semblent relativement récents et développés que par un petit groupe d'auteurs. Autre fait remarquable, les surchauffes de déclenchement de l'ébullition reportées par ces auteurs sont relativement faibles, en dépit de l'absence de sites de nucléation. Bon et al. 2011 ont déclenché l'ébullition nucléée sur des surfaces métalliques ultra-lisses (RMS variant de 30 à 365 nm) avec de très faibles surchauffes de la paroi ($\Delta T < 10$ K) ce qui n'est pas en accord la théorie classique (Griffith et Wallis 1958). Ces auteurs ont conclu que la nucléation hétérogène n'est pas due uniquement au piégeage de la vapeur dans les cavités. Selon ces auteurs des considérations

théoriques nouvelles doivent être proposées pour comprendre ce phénomène, des techniques expérimentales innovantes doivent être développées et des mesures à des échelles nanométriques doivent être réalisées. Les résultats de Bon et al. 2011 sont en accord avec ceux de Theofanous et al. 2002. Par contre, Whitharana et al. 2012 ont étudié l'effet des cavités artificielles pour différentes tailles (de 90 nm à 4,5 μ m de diamètre) et ont mesuré les surchauffes requises pour le déclenchement d'ébullition avec de l'eau sur du silicium (RMS $\sim$ 0,5 nm). Leurs résultats sont en accord avec ceux prédits à partir de l'équation Young-Laplace (associée avec la table thermodynamique pour déterminer la surchauffe nécessaire de la paroi). Les résultats de ces auteurs valident la vision de la théorie classique de la nucléation hétérogène de la bulle.

Dans ce mémoire, une étude expérimentale est menée sur des surfaces polies miroir ou ultra-polies en aluminium, l'acétone étant le fluide de travail. Les échantillons testés ont subi des modifications de leur topographie et de leur chimie de surface afin d'améliorer le phénomène d'ébullition. La surface de ces échantillons a été caractérisée par microscopie confocale. L'utilisation d'une caméra rapide, nous a permis d'observer les différents régimes d'ébullition.

Le nucléus à l'origine de la formation d'une bulle n'a jamais été observé expérimentalement car sa taille dépasse la capacité des moyens de mesure traditionnels. Il est pourtant à la base de la plupart des modèles théoriques et sa détection peut apporter une information primordiale à la compréhension des mécanismes de nucléation. Le projet NUCLEI a également pour but de mettre en œuvre une méthode de mesure optique basée sur la physique des plasmons permettant de détecter sa présence et ainsi apporter une information primordiale à la compréhension des mécanismes de nucléation. Une onde de plasmon de surface se propage le long d'une surface métallique éclairée par une lumière blanche et permet la surveillance de tout événement physique ou biochimique qui se déroule dans une région très mince près de la surface métallique. En effet, le champ électromagnétique associé à l'oscillation collective des électrons de surface est maximal à la surface. Plusieurs capteurs basés sur ce phénomène physique sont déjà utilisés pour détecter le développement de micro-organismes dans le domaine de la biologie (Homola 2006). Ils sont également utilisés dans le domaine de la sécurité ou pour contrôler la polarisation (Jourlin et al. 2009).

Dans le projet NUCLEI, le Laboratoire Hubert Curien avait pour rôle de réaliser des surfaces de topographie contrôlée, à l'échelle submicronique, grâce aux techniques de gravure de réseaux d'interférences développés en optique. Dans le cadre de ce projet, LabHC a également développé la méthode optique basée sur la physique des plasmons. Le groupe HEF avait pour rôle de réaliser les revêtements des échantillons à l'aide de différents matériaux permettant de tester l'influence de la nature chimique des surfaces testées sur le processus d'ébullition. HEF a mis au point et contrôlé les épaisseurs des couches réalisées. Des couches fines de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres ont été déposées pour ne pas affecter la rugosité de surface. La société Air liquide et le CETHIL ont développé des bancs d'essais respectivement en conditions cryogéniques et en conditions ambiantes afin de tester les différents échantillons réalisés.

Ce mémoire est structuré en deux grandes parties, la première, traitant la nucléation et l'ébullition sur différents types de surfaces avec un fluide mouillant, la seconde, traitant la détection de premiers germes de nucléation par la méthode résonance de plasmon de surface. Ce mémoire est divisé en cinq chapitres.

Le premier chapitre présente les notions de base sur l'ébullition. Après un bref rappel de la thermodynamique concernant le changement de phase, nous présentons les deux mécanismes de nucléation, homogène et hétérogène. Nous examinons les conditions de croissance d'une bulle sur un site. Nous donnons un bref aperçu des limites de la théorie classique et des approches complémentaires. Nous finissons cette présentation par une description détaillée de la courbe d'ébullition. Dans une deuxième partie, nous faisons une brève étude bibliographique limitée aux surfaces simples conçues pour analyser l'ébullition de façon fondamentale.

Le deuxième chapitre décrit de façon détaillée les échantillons utilisés durant ce travail. Comme l'étude porte sur la nucléation, la préparation des surfaces des échantillons fait l'objet d'un soin particulier. La préparation de ces surfaces doit être maîtrisée et ces surfaces doivent être finement caractérisées. La description des surfaces est réalisée de façon précise et détaillée (à la limite de la résolution de l'instrumentation utilisée). Dans une deuxième partie, nous présentons les réseaux métalliques, préparés par notre partenaire du laboratoire Hubert Curien, pour l'étude de la détection de la nucléation à l'aide de plasmons de surface.

Le troisième chapitre décrit les deux dispositifs expérimentaux ainsi que la métrologie utilisée pour l'étude de la nucléation et l'ébullition. Ce chapitre décrit aussi les procédures expérimentales pour chaque dispositif et présente un modèle numérique développé pour déterminer le flux thermique (correction des pertes thermiques).

Le quatrième chapitre présente les résultats expérimentaux de l'ébullition nucléée en vase, obtenus avec les différents types d'échantillons utilisés. Ce chapitre est divisé en deux parties : la première pour comparer les échanges thermiques en flux thermique croissant et décroissant en fonction de type de surface utilisée, la seconde pour étudier la nucléation et déclenchement de l'ébullition en fonction du type de surface utilisée.

Le cinquième chapitre est consacré à la mesure et à la détection de noyaux de vapeur par plasmons de surface. En début de ce chapitre des éléments théoriques de base sur les plasmons de surface sont présentés. Ensuite la procédure expérimentale est décrite. Dans la dernière partie nous présentons les résultats obtenus avec les plasmons. Nous explorons les possibilités qu'offrent ces méthodes pour la thermique, telles que la détermination de la température locale, la mesure de la variation de l'indice de réfraction d'un fluide avec la température, la détection de film de liquide ou de gouttelettes lors de la condensation.

CHAPITRE 1 : GENERALITES ET ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE

Dans ce premier chapitre nous nous limitons aux notions de base sur l'ébullition qui nous seront utiles pour ce travail de thèse. Nous présentons tout d'abord, de façon simplifiée, les aspects thermodynamiques. Nous décrivons ensuite les deux modes de nucléation, homogène et hétérogène. Nous examinons les conditions pour qu'une bulle puisse être générée ainsi que les mécanismes de formation d'une bulle sur un site. Puis nous décrivons la courbe d'ébullition en vase. Enfin une étude bibliographique est réalisée pour présenter quelques résultats sur l'ébullition obtenue sur des surfaces simples conçues pour analyser de façon fondamentale le phénomène d'ébullition.

1.1. Les aspects thermodynamiques

1.1.1. Changement d'état liquide-vapeur

Pour expliquer la formation de bulles, il est d'abord nécessaire d'examiner le comportement d'une masse donnée d'une substance pure, en fonction de la pression, de la température et du volume massique. Ce comportement est décrit par le diagramme d'équilibre de la substance. Le diagramme d'équilibre liquide-vapeur d'un fluide pur, pression en fonction du volume massique, est représenté sur la figure 1.1.

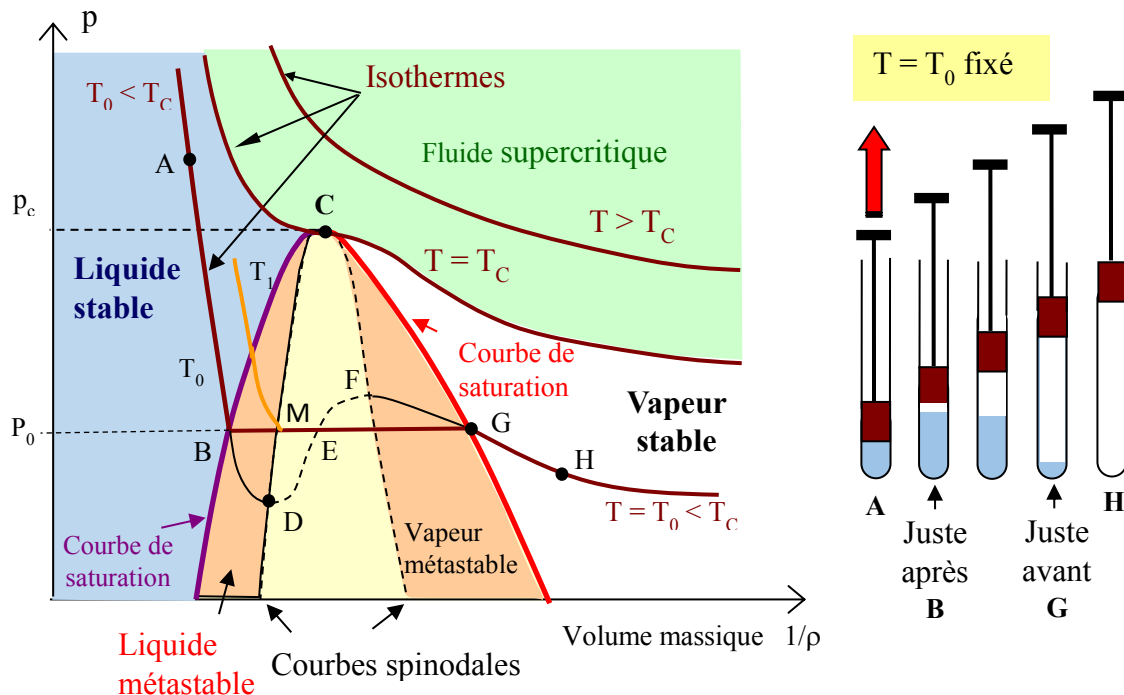


Figure 1.1 : Diagramme de phase $P = f(1/\rho)$ de Clapeyron pour un corps pur

Ce diagramme comporte trois zones : la phase liquide stable pour des volumes massiques faibles (représentée en bleu sur la figure 1.1), la phase vapeur stable obtenue pour des volumes massiques plus élevés (représentée en blanc), la phase supercritique (en vert) obtenue au-delà de l'isotherme critique. La phase solide n'est pas représentée sur la figure 1.1. Les zones stables liquide et vapeur sont séparées par une zone hétérogène à deux phases liquide-vapeur (en beige et jaune) délimitée par la courbe de saturation. La courbe de saturation du côté liquide (en violet) s'appelle la courbe d'ébullition, la courbe de saturation du côté vapeur (en rouge) s'appelle la courbe de rosée. Les deux courbes de saturation se rejoignent au point critique C de la substance pure considérée. Sur ce diagramme sont représentées différentes courbes isothermes (en marron). Au point critique passe l'isotherme critique T_c . Pour des températures T inférieures à la température critique, les courbes isothermes traversent la zone hétérogène liquide vapeur.

La courbe de saturation peut être déterminée en suivant une isotherme de la façon quasi-statique suivante (voir figure 1.1). Une éprouvette étanche renferme une masse donnée de liquide sous pression à la température $T < T_c$ (point A). Sa température est maintenue constante. Le piston est soulevé, ce qui diminue la pression et augmente le volume massique. Juste après le point B, une bulle de vapeur apparaît en partie haute de l'éprouvette. Du point B au point G, la proportion de vapeur s'accroît au détriment de celle du liquide qui diminue. Durant cette phase (segment BG), la pression reste constante : elle correspond à la pression de vapeur saturante de la substance à la température T . L'isotherme présente alors, dans la représentation de Clapeyron, un palier horizontal. Au-delà de G, l'éprouvette est entièrement remplie de vapeur. Ainsi, tant que les phases liquide et vapeur coexistent (zone de saturation) la pression et la température sont liées l'une à l'autre. La température correspondante s'appelle la température de saturation à la pression p considérée.

Dans certaines conditions (fluide extrêmement pur, éprouvette à paroi extrêmement lisses, etc.) un retard au changement de phase peut être observé. On obtient alors des états métastables BD et GF. La courbe isotherme peut se prolonger de B à D, sans apparition de la phase vapeur. A température constante, le point D est la plus faible pression qui peut être obtenue sans faire apparaître la phase vapeur. Les déplacements de type BM (voir figure 1.1) selon une isobare p_0 de la température de saturation T_0 à la température de surchauffe maximale T_l sont donc possibles. A pression constante, le liquide est dit dans un état surchauffé s'il se trouve dans un état métastable, c'est-à-dire son état est compris entre les points B et M. De même, coté vapeur, la vapeur pourra être sur-saturée à pression constante.

Un état métastable est un état thermodynamique intrinsèquement stable pendant un temps fini d'existence. Les fluctuations thermiques et les agitations moléculaires spontanées peuvent à tout instant faire évoluer le système vers son état d'équilibre (Debenedetti 1996). Lorsque le fluide sous forme monophasique quitte l'état métastable, le changement de phase apparaît et l'état du fluide rejoint un point du palier BG. Les courbes reliant les points D et F s'appellent les courbes spinodales. Les deux courbes spinodales se rejoignent au point critique de la substance pure.

Les courbes isothermes peuvent être approchées par des équations d'état adaptées à la substance pure. La plus ancienne - et la plus connue - est l'équation de Van der Waals. Cependant cette équation est généralement mal adaptée pour déterminer avec précision la courbe de saturation et la position des courbes spinodales. Depuis Van der Waals, d'autres

1.1. Les aspects thermodynamiques

équations d'états plus adaptées à certains fluides ont été développées. Une présentation de ces équations d'états est donnée par Wei et Sadus (2000). L'utilisation de ce type d'équation permet de déterminer en particulier, les valeurs des surchauffes maximales, telles que les valeurs des points A et B.

1.1.2. Condition d'équilibre d'une bulle

Contrairement à l'évaporation qui est un phénomène de surface, l'ébullition apparaît à l'intérieur d'un liquide. Elle se caractérise par la formation de bulles de tailles nanométriques qui croissent dans du liquide surchauffé (figure 1.2).

Les conditions d'équilibre mécanique pour une bulle sphérique de rayon r^* conduisent à la relation de Laplace-Young :

$$p_v + p_g - p_l = \frac{2\sigma}{r^*} \quad (1.1)$$

Dans ces expressions, p_v et p_l sont les pressions respectives des phases liquide et vapeur, p_g est la pression partielle des gaz incondensables éventuellement présents dans la bulle et σ est la tension interfaciale liquide/vapeur. A la même température, la pression dans la phase vapeur dans la bulle est donc différente de celle de la phase liquide. La situation d'équilibre décrite sur la figure 1.1 par le palier BG ($p_l = p_v$ lorsque $T_l = T_v$) valable pour une interface plane, n'est donc plus vérifiée pour une interface courbe.

L'équilibre des potentiels chimiques du liquide μ_l et de la vapeur μ_v permet d'exprimer la pression de chaque phase en fonction de la pression de saturation $p_{sat}(T)$ pour une interface plane (Stephan, 1992). En supposant que la vapeur se comporte comme un gaz parfait et en absence de gaz incondensable, on obtient :

$$p_v(T, r^*) = p_{sat}(T) - \frac{\rho_v}{\rho_l - \rho_v} \frac{2\sigma}{r^*} \quad (1.2)$$

A partir des équations (1.1) et (1.2), la pression dans la phase liquide s'écrit :

$$p_l(T, r^*) = p_{sat}(T) - \frac{\rho_l}{\rho_l - \rho_v} \frac{2\sigma}{r^*} \quad (1.3)$$

Ces relations sont représentées sur la figure 1.2. La courbe de saturation $p = f(T_{sat})$ correspondant à une interface plane est représentée en rouge. Dans cette représentation, pour une interface plane, la courbe d'ébullition et la courbe de rosée sont confondues. En présence d'une interface courbe de rayon r^* , les courbes $p_v(T, r^*)$ et $p_l(T, r^*)$ se déplacent vers les hautes valeurs de T . Ainsi, à la pression p_l , le liquide doit être surchauffé, pour maintenir une bulle de rayon r^* à l'équilibre. Lorsque le rayon de la bulle diminue l'équilibre est déplacé vers la droite, ce qui nécessite une température plus élevée.

La relation de Gibbs-Duhem (1.4) permet d'obtenir, à l'équilibre, l'équation de Clapeyron-Clausius (1.5) donnant la pente de la courbe de saturation :

$$d\mu = -sdT + vdp \quad (1.4)$$

$$\frac{dp}{dT} = \frac{h_{lv}}{T(v_v - v_l)} \quad (1.5)$$

Pour de faibles différences de pression ($p_v - p_l$), c'est-à-dire pour des bulles de rayons non extrêmement petits, la surchauffe $\Delta T_{sat} = T_l - T_v$ correspondant à cet équilibre prend la forme simplifiée suivante :

$$\Delta T_{sat} \approx \frac{T_{sat}}{h_{lv} \rho_v} \left(\frac{2\sigma}{r^*} - p_g \right) \quad (1.6)$$

Dans cette expression, h_{lv} est l'enthalpie de vaporisation. Cette surchauffe augmente donc rapidement lorsque le rayon de la bulle diminue. D'autre part, la présence de gaz incondensables dans la vapeur réduit sensiblement cette surchauffe.

En absence de gaz incondensables, le rayon r^* d'équilibre d'une bulle de vapeur dans un liquide à la pression p_l et à la température $T_{sat} + \Delta T_{sat}$ est donné par :

$$r^* \approx \frac{2\sigma}{\Delta h_{lv} \rho_v} \frac{T_{sat}}{\Delta T_{sat}} \quad (1.7)$$

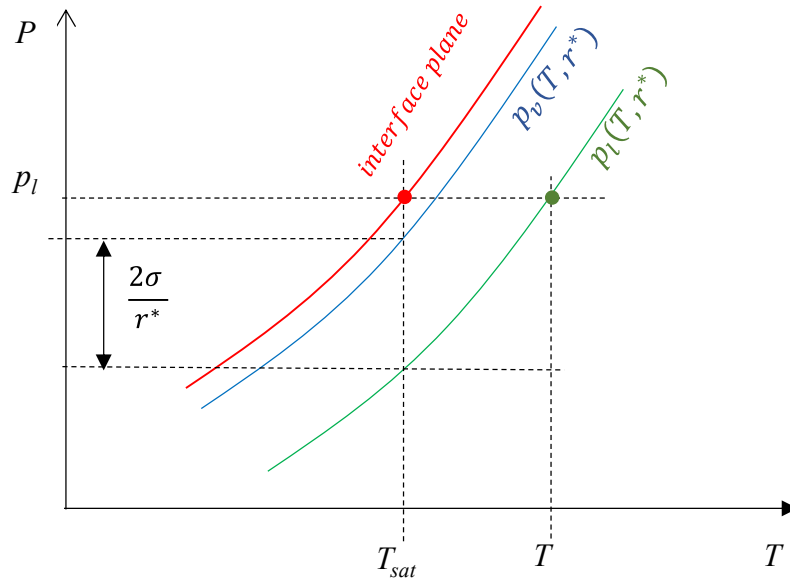


Figure 1.2 : Pression dans la vapeur et dans le liquide pour une bulle de rayon r^*

Cette expression est établie pour une bulle en équilibre dans un liquide surchauffé, loin de toute paroi. Elle permet cependant de comprendre pourquoi dans une enceinte fermée, contenant du liquide pur en équilibre avec sa vapeur pure, à la pression p et à la température de saturation T_{sat} correspondant à cette pression, le liquide doit être nécessairement surchauffé à la paroi chauffée où se développe les bulles (figure 1.3).

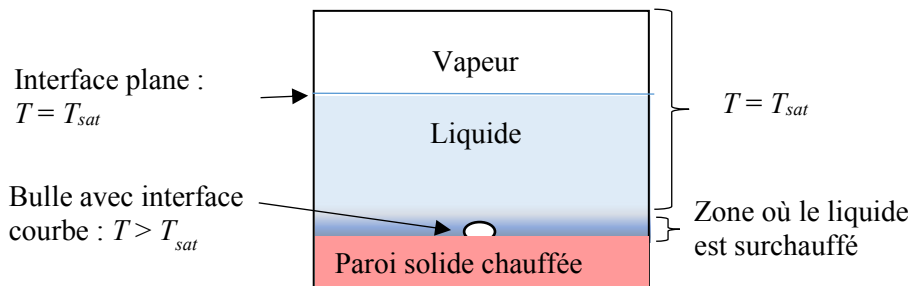


Figure 1.3 : Surchauffe du liquide à la surface d'une paroi chauffée où a lieu l'ébullition

1.2. La nucléation

1.1.3. Condition de croissance d'une bulle

L'énergie libre de formation d'une bulle de vapeur de rayon r est la somme d'un terme de volume et d'un terme de surface représentant l'énergie de formation de l'interface liquide/vapeur :

$$\Delta G = -(p_{sat}(T) - p_l) v + A \sigma \quad (1.7)$$

Soit encore en tenant compte des relations (1.2) et (1.3) :

$$\Delta G = 4 \pi \sigma \left(-\frac{2}{3} \frac{r^3}{r^*} + r^2 \right) \quad (1.8)$$

Cette fonction (figure 1.4) admet un maximum pour $r = r^*$. Cette extremum représente le rayon d'équilibre r^* de la bulle pour une surchauffe donnée ΔT_{sat} . Cet équilibre est instable puisque l'extremum est un maximum. Ainsi, à partir de r^* une diminution de r conduit à une disparition de la bulle qui se condense, une augmentation de r conduit à un accroissement de la bulle.

Selon la relation (1.7) la surchauffe nécessaire pour maintenir une bulle de rayon r en équilibre diminue lorsque le rayon de la bulle augmente. Donc, pour une bulle de rayon $r < r^*$ cette surchauffe ΔT_{sat} (correspond à l'équilibre d'une bulle de rayon r^*) n'est pas suffisante, alors qu'elle est supérieure à la valeur nécessaire pour une bulle de rayon $r > r^*$.

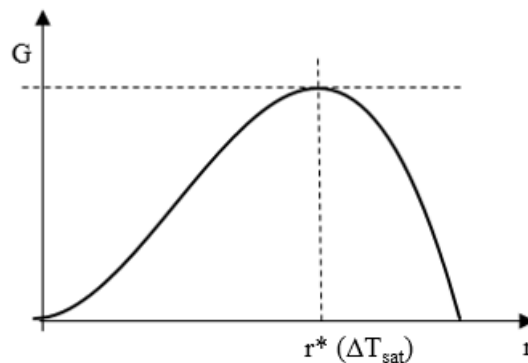


Figure 1.4 : Variation de l'énergie de formation d'une bulle en fonction de son rayon r

1.2. La nucléation

La nucléation apparaît au sein d'un liquide lors du passage d'un état d'équilibre métastable à un état d'équilibre stable. Des germes ou noyaux de vapeur se forment et s'accroissent au sein du liquide. Dans le cas de l'ébullition, la nucléation s'effectue à pression constante par élévation de la température du liquide au-delà de sa température de saturation. Deux types de nucléation sont généralement distingués. La nucléation homogène est la formation de bulles au sein d'un liquide homogène pur, au repos, uniformément surchauffé, sans impuretés et hors de toute paroi. La surchauffe nécessaire à la formation d'un noyau de vapeur est élevée. La nucléation hétérogène est la formation de bulles à l'interface d'une paroi solide et d'un liquide. Cette dernière nucléation apparaît pour des surchauffes de paroi plus faibles. Elle est favorisée par la présence de noyaux de vapeur ou de gaz incondensables initialement piégés dans les microcavités (dus à la rugosité) de la paroi. D'autre part, en présence de paroi, l'énergie nécessaire pour former une bulle de vapeur est réduite.

La théorie de la nucléation a été décrite par de très nombreux auteurs [Hsu (1962), Collier et Thome (1994), Rohsenow et Hartnett (1973), Cole (1974), Thormählen (1986), Carey (2008), Wang et Dhir, (1993)]. En dehors de certaines conditions très particulières (liquides purs fortement mouillants en présence de parois lisses, détentes brutales ou élévation très rapide de la température d'un liquide) l'émission de bulles est due à l'activation de germes préexistants piégés en paroi.

1.2.1. Nucléation homogène

La nucléation homogène est l'apparition de bulles de vapeur au sein d'un liquide métastable pur, suite à l'abaissement de la pression (cavitation) ou à une augmentation de la température au-dessus de la température de saturation (ébullition). Le phénomène de nucléation spontanée dans un liquide exempt de tout germe (particules solides, microbulles de gaz non soluble) est complexe. La probabilité que la nucléation homogène se produise dépend de la cinétique de formation de l'embryon de vapeur. On suppose l'existence, au sein du liquide, de rassemblements de molécules de haute énergie susceptibles de devenir des embryons gazeux.

Dans le cas de l'ébullition, l'apparition de la nucléation homogène nécessite une surchauffe élevée, proche des limites de la surchauffe, c'est-à-dire du point D (figure 1.1). Dans ce cas, la probabilité de formation de l'embryon de vapeur est élevée. A une pression donnée, la détermination de la limite de la surchauffe doit être effectuée loin de toute paroi afin que la formation de bulles ne soit pas favorisée par la proximité de la paroi.

La théorie classique de la nucléation (CNT) a été formulée à l'origine par Becker et Döring (1935), Frenkel (1939) et d'autres auteurs en se basant sur les travaux de Gibbs publiés en 1879. L'approche phénoménologique de cette théorie décrit le processus de nucléation en termes de changement d'énergie libre d'un système lié au transfert de molécules gazeuses vers un embryon de rayon r . La CNT propose un formalisme pour calculer la loi cinétique de la nucléation. Elle est basée sur la loi d'Arrhenius, c'est-à-dire qu'elle prend en compte la température comme seul facteur contrôlant la vitesse de nucléation.

L'analyse de la cinétique du processus de la nucléation homogène sur une interface lisse est présentée par Carey (2008). Le taux de la nucléation J c'est-à-dire le nombre de molécules, par unité de volume et de temps, qui passent de la phase liquide à la phase vapeur est donnée par la relation (1.9).

$$J = \frac{\xi}{2} \left(\frac{3\sigma}{\pi m} \right)^{0,5} \exp \left(\frac{-16\pi\sigma^3}{3k_B T_l [\eta p_{sat}(T_l) - p_l]^2} \right) \quad (1.9)$$

$$\text{avec } \eta = \exp \left(\frac{p_l - p_{sat}(T_l)}{\frac{R}{\rho_l \bar{M}} T_l} \right) \text{ et } \xi = \frac{N_A \rho_l}{\bar{M}}$$

Dans cette expression, N_A est le nombre d'Avogadro ($= 6,02 \cdot 10^{23}$ molécules/mole), R est la constante des gaz parfaits ($= 8,31 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$), $\bar{M}$ est la masse molaire du fluide (kg/mole). ξ est donc le nombre de molécules par unité de volume dans la phase liquide.

Les valeurs des propriétés du fluide, telles que la tension interfaciale liquide-vapeur σ et la masse du liquide ρ_l doivent être prises à la température du liquide surchauffé, et non à la température de saturation.

1.2. La nucléation

Dans leur analyse bibliographique, Blander et Katz (1975) ont rassemblé les températures limites T_L atteintes pour une soixantaine de fluides (principalement des hydrocarbures) avant le déclenchement de l'ébullition à la pression atmosphérique. Ils ont comparé les températures limites T_L à la température T_c du point critique de ce fluide (point C sur la figure 1.1). Dans 75 % des cas, le déclenchement apparaît pour une température comprise entre $0,89 T_c$ et $0,92 T_c$. En ce qui concerne l'acétone - le fluide utilisé dans ce travail de thèse - ils donnent une valeur expérimentale égale à $0,879 T_c$ ce qui correspond à une température limite égale à 173 °C (la température critique de l'acétone étant égale à 235 °C) et donc une surchauffe maximale de 117 °C (la température de saturation de l'acétone à 1 bar est égale à 56 °C). Ces données expérimentales leur permettent de calculer le taux de production de vapeur J à la température du déclenchement. Ils trouvent, en utilisant la relation (1.9) que le taux de nucléation J est compris entre 10^{10} et 10^{12} molécules.m⁻³.s⁻¹.

De même, Avedissian (1985) a rassemblé un très grand nombre de données de la littérature portant sur un très grand nombre de fluides (90). Pour l'acétone sous la pression de 1 bar, il fournit cinq valeurs de température limite correspondant toutes à des surchauffes limites comprises entre 125 °C et 134 °C .

1.2.2. Nucléation hétérogène

La nucléation qui a lieu à la surface de parois chauffantes est dite hétérogène. La formation des bulles dans cette situation nécessite une énergie plus faible que dans le cas de la nucléation homogène.

1.2.2.1. Nucléation sur une surface parfaitement plane

Pour tenir compte de l'effet de la paroi, la relation (1.9) établie pour la nucléation homogène peut être modifiée en introduisant l'angle de contact θ (Carey 2008).

$$J' = \frac{\xi^{\frac{2}{3}} (1 + \cos\theta)}{2F} \left(\frac{3\sigma}{\pi m} \right)^{0,5} \exp \left(\frac{-16 \pi F \sigma^3}{3 k_B T_l [\eta p_{sat}(T_l) - P_l]^2} \right) \quad (1.10)$$

$$F = 0,5 + 0,75 \cos \theta - 0,25 \cos^3 \theta$$

La relation (1.10) présente une différence majeure par rapport à la relation (1.9). Dans la nucléation homogène J représente le taux de nucléation en volume et s'exprime en molécules/(m³ s). Dans la nucléation hétérogène, seules les molécules de liquide qui se trouvent près de la paroi participent à la formation de l'embryon de vapeur. La grandeur J' s'exprime alors en molécules.m⁻².s⁻¹.

La courbe de variation de J' en fonction de la température du liquide surchauffé est représentée sur la figure 1.5, pour l'acétone à la pression de 1,15 bars (pression de travail dans les essais présentés dans le chapitre IV, $T_{sat} = 60\text{ °C}$). Cette courbe montre qu'une erreur importante sur l'estimation de J' conduit à une erreur mineure sur la détermination de la température de surchauffe. De même, selon cette relation, l'angle de contact semble avoir peu d'influence sur la surchauffe.

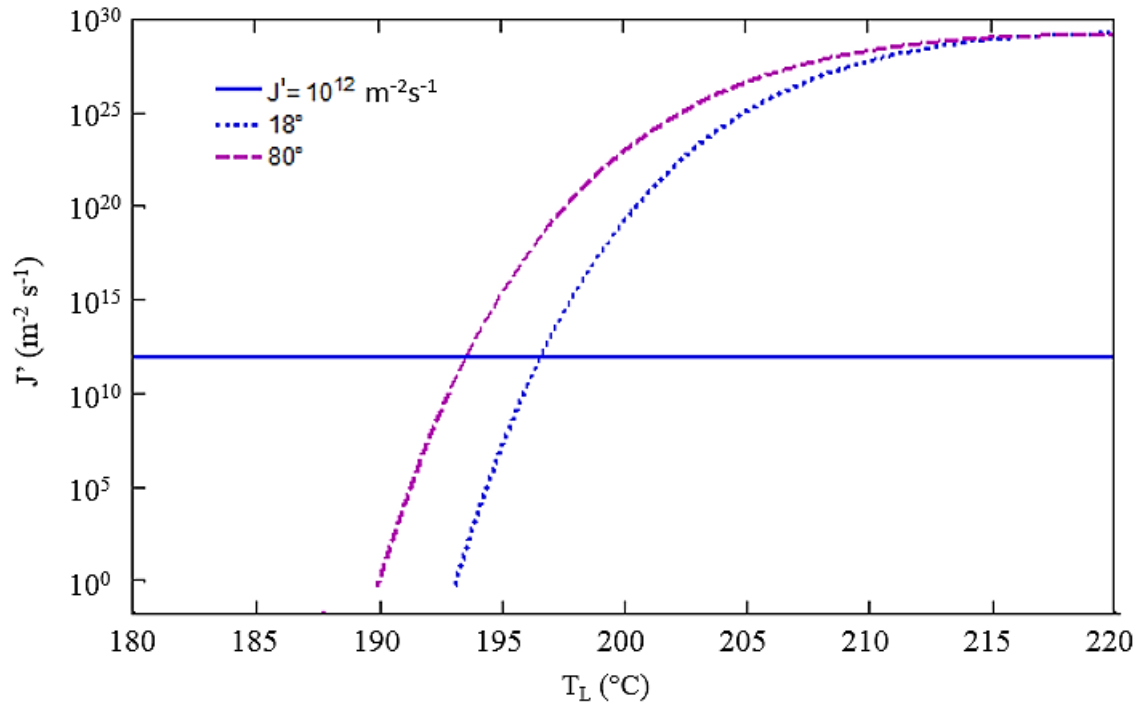


Figure 1.5 : Variation du taux de nucléation hétérogène J' pour l'acétone à $p = 1,15$ bars

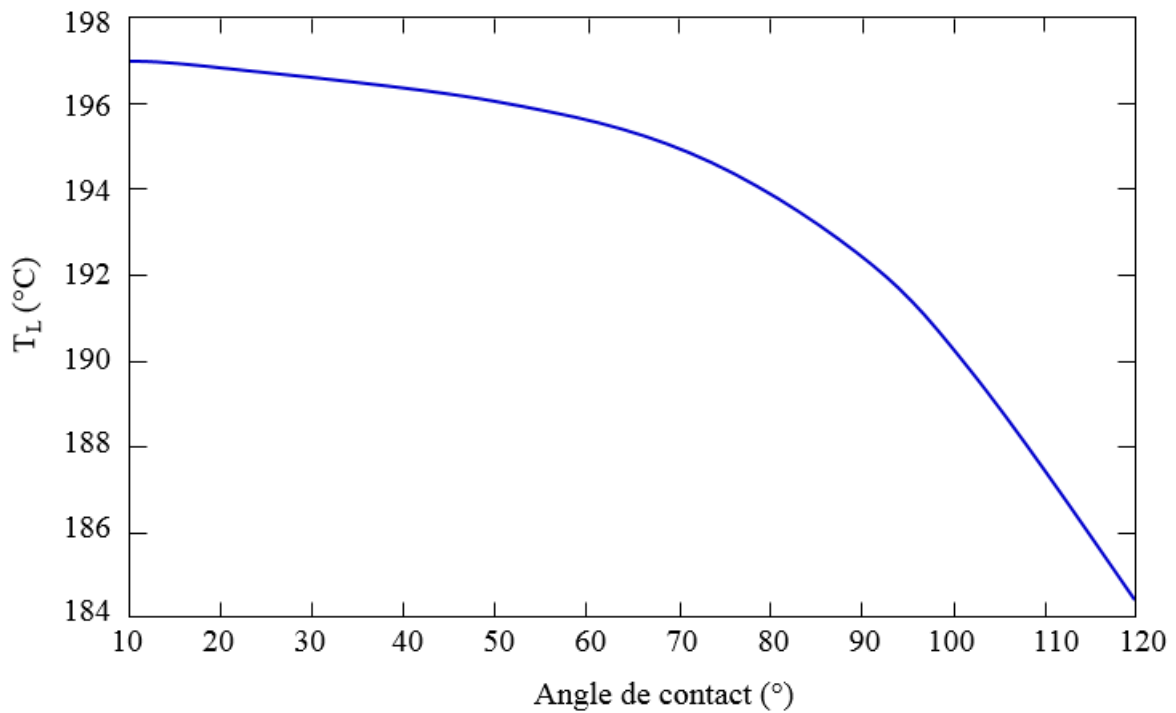


Figure 1.6 : Variation de la température limite T_L de l'acétone en fonction de l'angle de contact pour une pression de 1,15 bar

La figure 1.6 représente, en fonction de l'angle de contact, la température de l'acétone nécessaire pour obtenir un taux de nucléation $J' = 10^{12}$ molécules/(m²s). Cette courbe semble très peu sensible à l'angle de contact pour des angles θ inférieurs à 70° (fluides mouillants).

1.2. La nucléation

Les surchauffes expérimentales atteintes pour déclencher l'ébullition sur une paroi sont généralement bien moins élevées que celles déterminées par la théorie cinétique sur la nucléation. Pour expliquer des écarts entre la théorie et les constations expérimentales, les auteurs supposent l'existence de noyau de vapeur préexistant ou la présence d'incondensables dans les microcavités constituant les rugosités de la paroi.

1.2.2.2. Nucléation par activation d'embryons préexistants

Une paroi naturelle comporte des rugosités et des cavités pouvant activer les bulles. Ces cavités sont appelées sites de nucléation ; les cavités pouvant favoriser la formation de bulles sont dit activables. Un site est susceptible d'être activable, s'il est capable de piéger de la vapeur, de la maintenir en équilibre pendant la phase précédent l'application du flux de chaleur et si sa surchauffe d'activation est inférieure à une certaine valeur seuil.

Plusieurs modèles de déclenchement de l'ébullition nucléée ont été proposés dans la littérature. Ces modèles prennent en compte l'influence de différents paramètres comme les caractéristiques du site de nucléation, la mouillabilité du fluide, la non-uniformité du champ de température autour du noyau de vapeur.

1.2.2.2.1. Modèle de Bankhoff

Le critère établi par Bankhoff (1957) permet de tenir compte de la mouillabilité des fluides pour prédire le déclenchement de l'ébullition. A partir de l'énergie de formation d'une bulle à l'équilibre, Bankhoff a montré que, dans les conditions données de saturation du fluide, la surchauffe de liquide déterminée théoriquement reste très supérieure aux surchauffes expérimentales. Pour expliquer les faibles surchauffes observées expérimentalement, Bankhoff (1958) émet l'hypothèse que les cavités présentes à l'échelle microscopique sur une surface réelle sont capables de piéger de la vapeur et/ou de l'air. Pour une cavité conique idéalisée (figure 1.7), de demi angle d'ouverture β , le critère de capture de Bankhoff s'écrit $\theta_a > 2\beta$ où θ_a est l'angle de contact d'avancée du liquide arrivant sur la paroi, cet angle est généralement supérieur à l'angle de contact θ du liquide au repos sur la paroi.

Ainsi selon ce critère, si l'angle d'ouverture 2β de la cavité conique est supérieur à l'angle de contact θ du liquide sur la paroi, la cavité piège de la vapeur lors du remplissage de l'enceinte, en formant un germe de vapeur. Ce germe de vapeur a la forme d'une portion de sphère de rayon initial r_i . La surchauffe nécessaire à la croissance de la bulle est alors fixée par le rayon initial r_i du germe de vapeur si celui-ci est inférieur à r_e . Elle est donnée par :

$$\Delta T_{sat} = \frac{T_{sat}}{h_{lv} \rho_v} \left(\frac{2\sigma}{r_i} \right) \quad (1.11)$$

Lorentz et al. (1974) ont proposé un modèle géométrique simple faisant intervenir les caractéristiques géométriques de la cavité et l'angle d'équilibre statique de contact pour déterminer r_i . Ils supposent qu'il n'y a pas de diffusion de gaz ni de condensation de vapeur et ils prennent comme condition d'activation d'un site le critère de Bankhoff. En assimilant la surface du liquide dans la cavité à une interface plane, ils obtiennent une relation entre le rayon r_i , le rayon d'ouverture de la cavité r_o et les angles θ et β .

Par rapport à une surface parfaitement plane (figure 1.8 a), dans une cavité conique la courbure de l'interface liquide-vapeur peut être faible ($1/r_i$ petit) même avec un noyau de vapeur de très faible volume (figure 1.8 b). Une surchauffe peu élevée est alors nécessaire pour

maintenir le noyau à l'équilibre. Dans le cas de fluides peu mouillants tels que $\theta = \pi/2 + \beta$, l'interface est plane (figure 1.8 c) : aucune surchauffe n'est nécessaire. L'interface est même concave si $\theta > \pi/2 + \beta$ (figure 1.8 d). Dans ce dernier cas, le noyau de vapeur reste stable même si le liquide est sous refroidi. Un noyau de vapeur peut alors exister en permanence dans le site. Cette dernière situation peut aussi être obtenue avec des fluides mouillants et des cavités réentrantes (figure 1.8e)

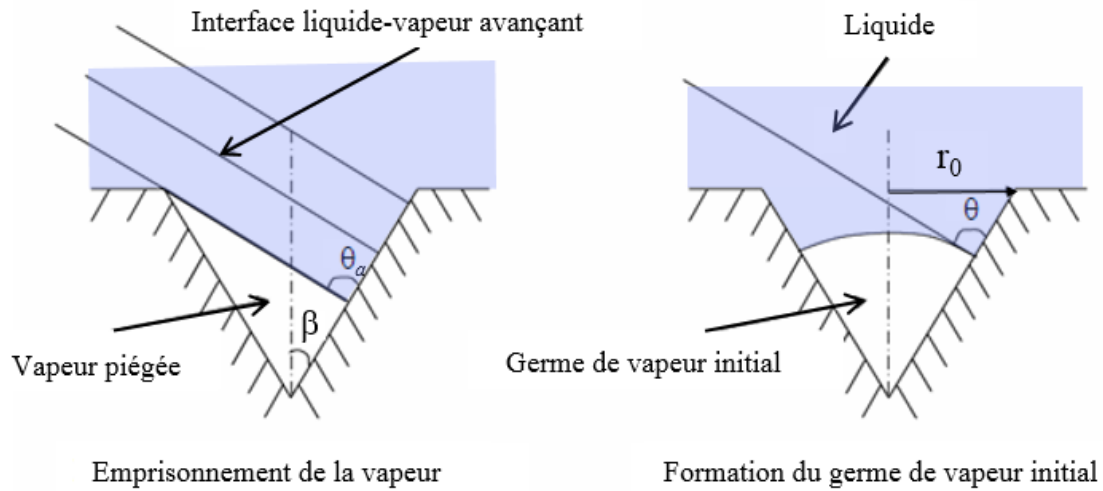


Figure 1.7 : Emprisonnement et formation du germe de vapeur initial

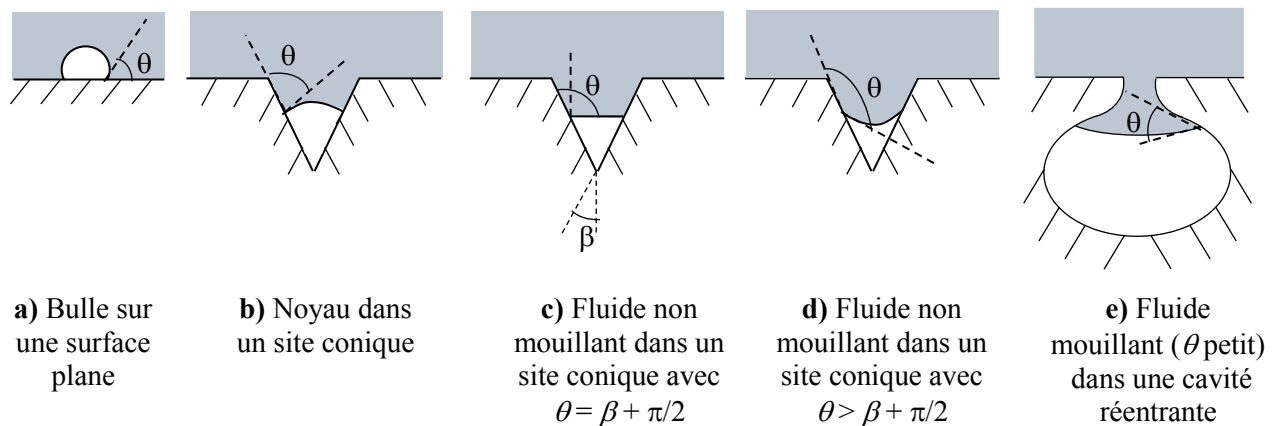


Figure 1.8 : Courbure de l'interface dans les sites en fonction de l'angle de contact θ , de l'angle β et de la forme du site

Dans le paragraphe suivant nous examinons, au cours de la croissance de la bulle, l'évolution de la courbure de l'interface d'un noyau de vapeur piégé dans un site de forme conique.

1.2. La nucléation

1.2.2.2. Croissance d'une bulle dans un site

D'après la relation (1.11) la surchauffe nécessaire pour maintenir en équilibre une bulle de vapeur est d'autant plus élevée que $1/r^*$ est grand. En l'absence de gaz incondensable ($p_g = 0$) cette surchauffe est nulle pour une interface plane ($1/r = 0$).

Or, lors de sa croissance dans le site, le rayon de courbure de la bulle évolue. L'évolution de la courbure de l'interface ($1/r$) au cours de la croissance du germe dans une cavité conique dépend de l'angle d'ouverture 2β de la cavité ainsi que de l'angle de contact θ du liquide sur la paroi.

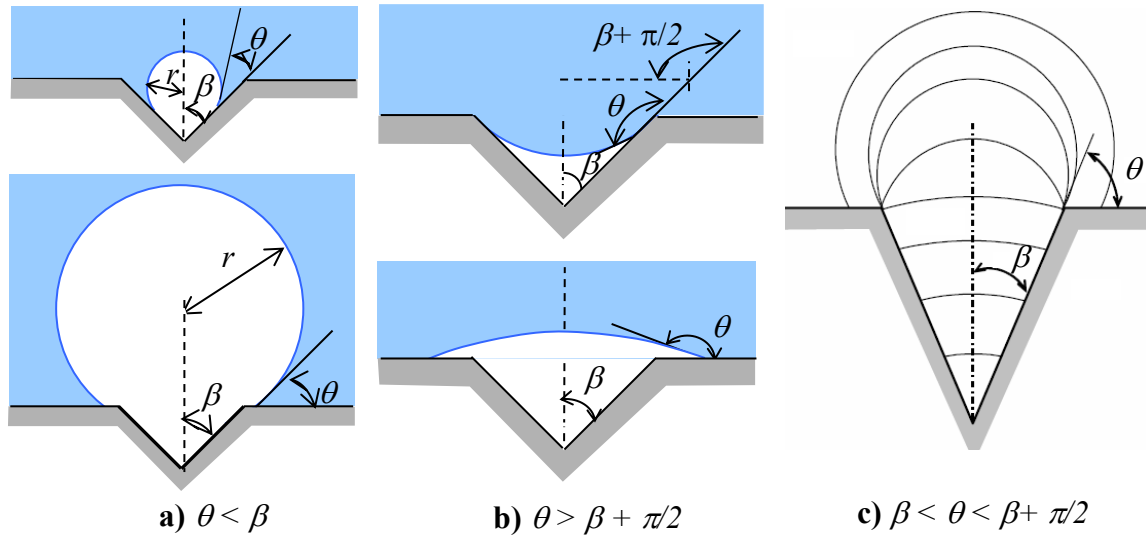


Figure 1.9 : Embryon de vapeur au sein d'une cavité conique.

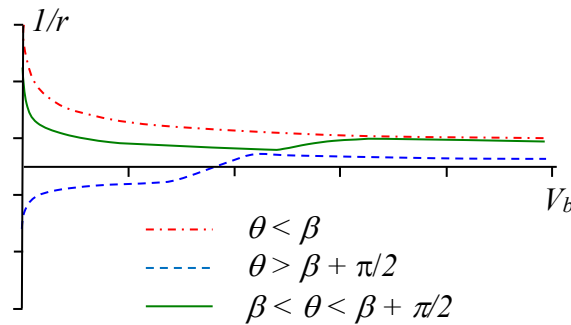


Figure 1.10 : Evolution de la courbure d'une bulle dans une cavité conique en fonction de son volume

Les figures 1.9 représentent l'évolution, au cours de sa croissance, d'une bulle dans un site de forme conique. La figure 1.10 donne l'évolution du rayon de courbure en fonction des angles θ et β . Si $\theta < \beta$ (Figure 1.9 a et 1.10) la courbure décroît régulièrement avec l'augmentation du volume V_b de l'embryon de vapeur. Pour $\theta > \pi/2 + \beta$ (figure 1.9b et 1.10), l'interface liquide/vapeur est concave tant que la ligne triple (solide-liquide-vapeur) est située à l'intérieur de la cavité, puis elle devient progressivement convexe lorsque cette dernière atteint le bord de la cavité et que la bulle se développe à l'extérieur de la cavité. Pour des angles de contact intermédiaires (figure 1.9c et 1.10), la courbure décroît tant que la ligne triple est située

à l'intérieur de la cavité. Lorsque la ligne triple atteint l'arête de la cavité, le développement de la bulle s'accompagne tout d'abord d'une augmentation, puis d'une diminution de la courbure.

Pour que la cavité devienne active, il faut que la surchauffe au voisinage de l'embryon de vapeur le rende instable et qu'une petite fluctuation de température le fasse croître de manière irréversible.

Dans le cas de fluides très mouillants, l'angle de contact θ du liquide sur la paroi est le plus souvent inférieur à l'angle β (figure 1.9 a). La courbure $1/r$ du noyau de vapeur dans la cavité est élevée (figure 1.10), une surchauffe de paroi élevée est donc requise pour activer le site. Cependant, lorsque la bulle croît, sa courbure diminue, la surchauffe nécessaire est donc plus faible. Cette situation est donc instable. La croissance de la bulle, s'accompagne bien d'une diminution de la température du liquide à son voisinage à cause des transferts de chaleur. Mais, dès les tous premiers instants appelés « phase de croissance isotherme », ce sont surtout les forces d'inertie qui contrôlent la croissance car elles régissent l'expansion de la bulle due à une surpression $\Delta p = p_v - \left(p_l + \frac{2\sigma}{r^*}\right)$.

Dans le cas de fluides peu mouillants, la situation est généralement celle illustrée sur la figure 1.9 b, c'est-à-dire que le site contient toujours un noyau de vapeur avec une interface concave de faible courbure $1/r$. Aucune surchauffe n'est nécessaire pour faire croître la vapeur à l'intérieur de site. Lorsque la vapeur émerge du site, l'interface devient convexe. Cependant, la courbure de la bulle reste faible. La surchauffe requise pour faire croître la bulle n'est alors pas trop élevée.

Le cas intermédiaire est illustré sur la figure 1.9 c. Une légère surchauffe est nécessaire pour faire croître la bulle dans le site, car, à l'intérieur du site, l'interface est convexe.

En présence de fluides mouillants, l'embryon devient instable lorsque la ligne triple est localisée au niveau de l'arête d'ouverture de la cavité et que l'angle entre l'interface et la paroi plane devient inférieur à 90° . Le diamètre d'instabilité de la bulle correspond alors au diamètre d'ouverture de la cavité.

En conclusion, la surchauffe nécessaire pour faire croître une bulle dans un site est liée à sa courbure. La courbure de l'interface dépend de l'angle de contact du liquide de la paroi et de la géométrie du site. Dans le cas de cavités de forme conique, le paramètre géométrique important est le demi-angle d'ouverture β de la cavité.

1.2.2.2.3. Modèle de Hsu

Le modèle semi-théorique proposé par Hsu (1962) permet de prendre en compte l'influence du profil de température dans la couche limite thermique, sur la croissance de la bulle. Selon le modèle de Hsu, une bulle se détache initialement de la paroi. Elle laisse, sur le site de nucléation, un embryon de vapeur provenant du pied de la bulle. Le départ de la bulle provoque un apport vers la paroi d'un liquide plus froid à la température T_0 ($T_0 = T_{sat}$ si le liquide est à la température de saturation). A l'instant $t = 0$, la paroi est donc recouverte de liquide à la température T_0 autour de l'embryon de vapeur. Du fait de l'apport de chaleur, la température du liquide s'élève au-dessus de la paroi. Une couche limite thermique se forme alors par un mécanisme de conduction instationnaire. Après une durée t , la couche a une épaisseur δ_t et le profil de température dans cette couche devient quasi linéaire (figure 1.11). Hsu suppose donc que le délai d'attente entre deux bulles successives est suffisamment long pour que la couche limite thermique puisse totalement se reconstituer localement (en réalité ce délai peut être quasi-nul, puisque deux bulles successives provenant d'un même site peuvent

1.2. La nucléation

coalescer sur la paroi). Pour effectuer ses calculs, Hsu se place dans le cas particulier où la hauteur de la bulle est égale à 2 fois le rayon d'ouverture de la cavité, et où le rayon de la bulle est égal à 1,25 fois le rayon de cette cavité. Ces conditions correspondent à un angle de contact égal à 53° pour une bulle considérée comme une portion de sphère parfaite.

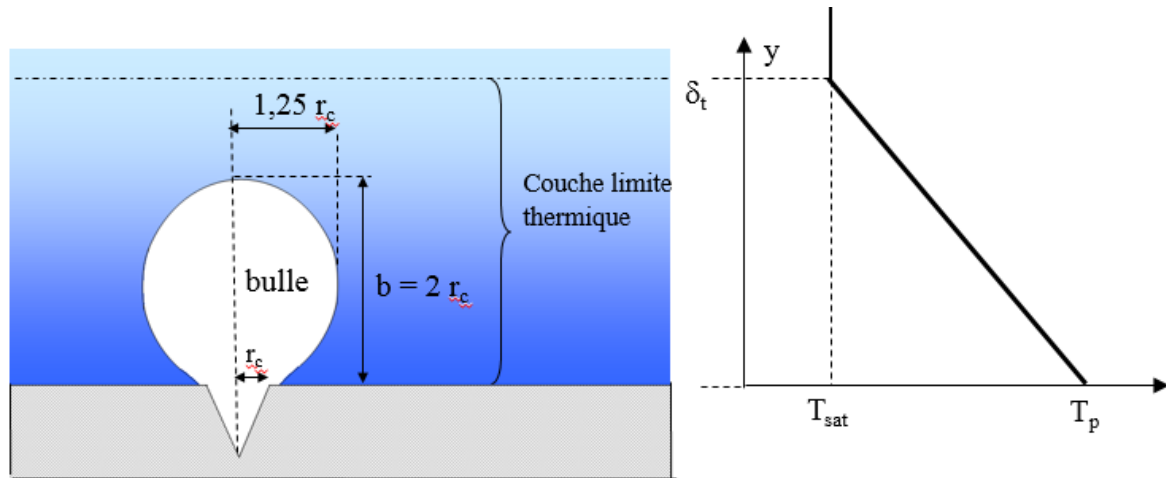


Figure 1.11 : Croissance d'une bulle dans la couche de liquide surchauffée

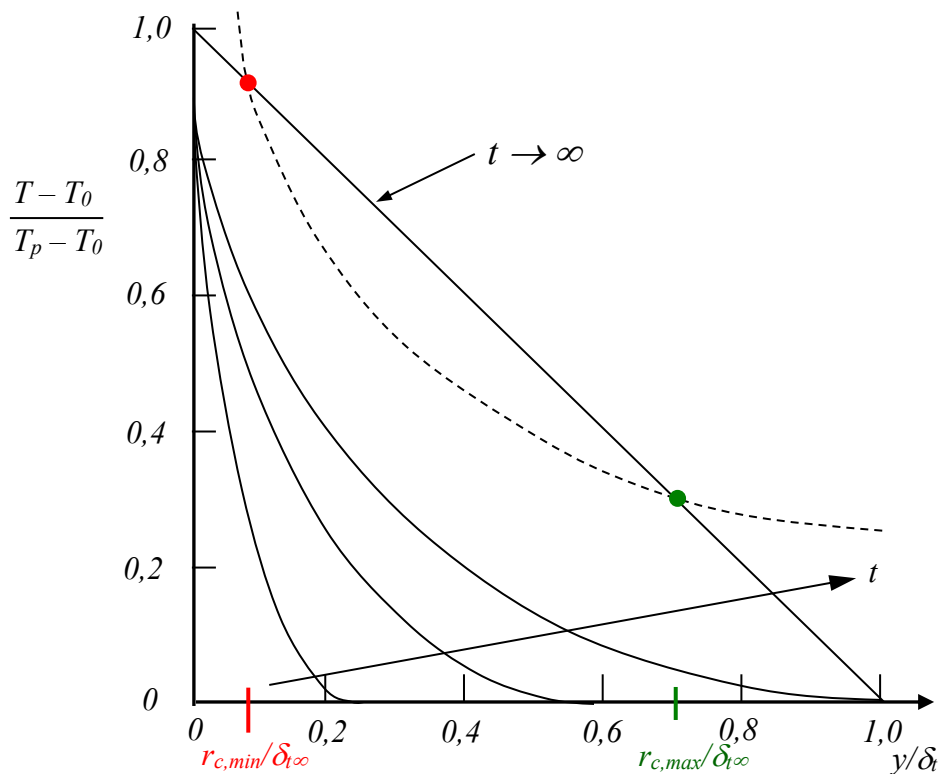


Figure 1.12 : Evolution de la température dans la couche thermique.

L'évolution au cours du temps de la température du liquide dans la couche limite lors de sa reconstruction et déterminée par Hsu est représentée en coordonnées normalisées sur la figure 1.12. L'intersection de cette courbe avec la paroi ($y = 0$) représente la surchauffe de la paroi à différents instants entre la formation de deux bulles successives. Le profil de température considéré par Hsu pour son raisonnement est le profil linéaire obtenu

théoriquement pour $t \rightarrow \infty$. Au-delà de la couche limite thermique δ , le liquide est à la température de saturation si $T_0 = T_{sat}$.

Sur la figure 1.12, la courbe d'équilibre de l'embryon de vapeur (ΔT_{sat} proportionnel à $1/r$ où r est le rayon de la bulle) est représentée par la courbe pointillée. Pour qu'une bulle puisse croître, il faut que la surchauffe du liquide qui l'environne soit supérieure à la surchauffe d'équilibre correspondant à son rayon r à l'instant considéré. Les cavités qui peuvent être actives sont celles dont le rayon d'ouverture r_c est compris entre $r_{c,min}$ et $r_{c,max}$. Les cavités dont le rayon est inférieur à $r_{c,min}$ génèrent des bulles trop petites, nécessitant une surchauffe plus élevée que celle existant à la paroi. Les cavités dont le rayon est supérieur à $r_{c,max}$ génèrent des bulles trop grosses. La partie supérieure de la bulle, se trouve alors plongée dans une zone trop froide par rapport à la surchauffe requise pour assurer sa croissance.

Hsu détermine l'expression analytique de ces rayons limites $r_{c,min}$ et $r_{c,max}$. En ébullition saturée, ces rayons sont donnés par la relation :

$$r_{c,max,min} = \frac{\delta_t}{2c_1} \left[1 \pm \sqrt{1 - \frac{8c_3\sigma T_{sat}}{\rho_v h_{lv} \delta_t (T_p - T_{sat})}} \right] \quad (1.12)$$

$$\text{Avec } c_1 = \frac{b}{r_c} \text{ et } c_3 = \frac{b}{r_b}$$

r_b est le rayon de la bulle et b est la hauteur de la bulle accrochée à la paroi.

Le modèle de Hsu examine donc les conditions pour qu'une bulle puisse se développer au-dessus du site, compte tenu de la décroissance de la température au-dessus de la paroi. Ce modèle complète donc les modèles de croissance de la bulle dans le site. Ce modèle est limité au cas où le diamètre du pied de la bulle correspond exactement au diamètre de la cavité. D'autre part, ce modèle considère que la couche limite thermique se reconstitue entièrement entre 2 émissions. Cette hypothèse est totalement valable avant le déclenchement de l'ébullition, elle est plus discutable lorsque l'ébullition est amorcée du fait généralement de la grande fréquence d'émission des bulles et de l'agitation générée par ces bulles pouvant générer de fortes distorsions de la couche de liquide surchauffée et une fluctuation locale des températures. Cependant, le modèle fournit, dans les conditions « idéales » un intervalle de rayons de sites actifs pour des valeurs données de surchauffe de la paroi.

1.3. Les limites de la théorie classique de la nucléation et les approches complémentaires

Bien qu'ils analysent les conditions de croissance d'une bulle, les modèles exposés précédemment sont des modèles d'équilibre, c'est-à-dire que les relations utilisées (relation de Laplace-Young, équation de Clapeyron, etc.) pour développer les expressions précédentes sont des relations établies à l'équilibre. L'analyse s'appuie d'ailleurs en premier lieu sur le diagramme d'équilibre liquide-vapeur (figure 1.1). Les phénomènes peuvent donc être notablement différents dans des conditions extrêmes. Par exemple, lorsqu'une très forte puissance thermique est imposée, l'augmentation de la température de la paroi est très rapide (Hasan et al. (2011) : variation de 100 K/s), et l'ébullition qui s'en suit est alors explosive.

Les mêmes limites se retrouvent avec la théorie cinétique de la nucléation lorsque l'on examine les phénomènes à l'échelle microscopique. La simplicité et l'avantage de la théorie classique de la nucléation (CNT : Classical Nucleation Theory) réside dans l'utilisation des

1.3. Les limites de la théorie classique de la nucléation et les approches complémentaires

grandeurs et des propriétés macroscopiques (pression, température, tension de surface, etc.). Selon Hung et al. (1989), la CNT estime alors mal les taux de nucléation. En plus, selon Schmelzer (2006), l'épaisseur de l'interface doit être prise en compte car la taille des germes est nanométrique, proche de l'épaisseur de l'interface liquide-vapeur.

Dans le but d'améliorer l'estimation du taux de la nucléation, des théories cinétiques alternatives ont été développées. Ces théories proposent de calculer le taux de la nucléation à partir des constantes de formation et de décomposition des embryons sans faire appel aux énergies de formation et aux tensions de surface. Par exemple, les travaux de Ruckenstein (1991-2015) utilisent une approche qui évite le concept macroscopique de la tension de surface. Les calculs sont basés sur les taux de formation ou de décomposition de noyaux par la résolution de l'équation de Smoluchowski, qui décrit le mouvement d'une molécule de gaz dans un potentiel à proximité de l'embryon. En 2008, cette approche a été améliorée par l'utilisation de la DFT (Density Functional Theory).

La DFT (Shen et Debendetti (2002), Talanquer et Oxtoby (1996), Maris (2006)) assimile les précurseurs gazeux à un fluide inhomogène. Une épaisseur non nulle représente l'interface du nucleus et le passage du liquide à la vapeur est caractérisé par un profil de densité. La densité au centre de l'embryon n'est pas contrainte à être égale à celle de la phase macroscopique contrairement à la CNT. La DFT se contente d'analyser les interactions entre une molécule donnée et le potentiel électrique moyen créé par le reste des molécules, au contraire de la dynamique moléculaire MD qui étudie les interactions de toutes les molécules du système. Ainsi, la DFT se place à une échelle macroscopique dans le sens où elle utilise une distribution de densité moyenne plutôt que les coordonnées atomiques des précurseurs, mais elle considère des effets qui sont caractéristiques de l'échelle moléculaire. Talanquer et Oxtoby (1996) ont utilisé la DFT pour modéliser le travail nécessaire pour former un nucleus sur une surface lisse.

Les autres approches pour étudier la nucléation sont la méthode de Monte Carlo MC et la dynamique moléculaire MD à l'échelle atomique. La méthode de simulation MC suit l'approche de la mécanique statistique qui simule l'évolution d'un ensemble de molécules en étudiant une molécule à la fois, acceptant ou rejetant les configurations adoptées par celle-ci suivant des critères prédéfinis. La méthode de Monte Carlo, permet de calculer la barrière d'énergie nécessaire pour la nucléation. En revanche dans l'approche de la dynamique moléculaire « à l'équilibre », la molécule a, dans le système, une trajectoire déterministe définie selon une équation de mouvement dépendant de l'ensemble. La dynamique moléculaire « hors équilibre » peut être utilisée pour simuler la dynamique des systèmes hors équilibre. Ces deux méthodes nécessitent la connaissance d'un potentiel intermoléculaire réaliste. Le potentiel de Lennard-Jones est le plus communément utilisé mais il ne convient pas aux molécules impliquées dans la nucléation. D'autres potentiels plus évolués ont donc été développés, comme les TIP (Transferable Intermolecular Potentials, ex : Jorgensen et al., (1983)). Toutefois, si ces potentiels permettent bien de retrouver la dépendance en température du taux de nucléation observé expérimentalement, ils ne parviennent pas à restituer les valeurs attendues des taux de nucléation (Merikanto et al., 2004).

Xu et al. (2015) ont étudié l'effet de taille de particules de haute énergie (hétérogénéité) sur le mécanisme de croissance du nucleus en paroi en utilisant l'approche de la dynamique moléculaire MD. La MD modélise les « molécules » de solide (paroi) et de fluide, comme des

grains sphériques. Le potentiel d'interaction entre les surfaces d'atomes est de type Lennard–Jones pour le cuivre et de type électrostatique pour l'eau. Pour explorer l'influence des hétérogénéités de la surface solide, les tailles des particules solides sont ajustées. Le taux de croissance de l'embryon augmente avec la présence de particules de hautes énergies.

1.4. Courbe d'ébullition et coefficients d'échanges

Dans cette partie nous décrivons comment évolue la surchauffe ΔT_{sat} de la paroi en fonction de la densité surfacique de flux thermique q (exprimée en W m^{-2}) généralement appelée de façon simplifiée « flux thermique ». Nous présentons tout d'abord une description complète de la courbe de l'ébullition. C'est une courbe majeure car elle est utilisée comme courbe de référence pour toutes les analyses portant sur les transferts thermiques lors de l'ébullition.

1.4.1. Description de la courbe d'ébullition

Les échanges thermiques entre une paroi chauffée et un fluide en ébullition sont représentés habituellement par une courbe reliant à l'équilibre la densité de flux thermique transférée au fluide à la surchauffe de la paroi (écart entre la température de la paroi et la température de saturation T_{sat} correspondant à la pression du liquide). Nukiyama (1934) a tracé la première courbe d'ébullition libre à partir d'un fil de platine chauffé électriquement et plongé dans l'eau distillée. Cette courbe est représentée sur la figure 1.13.

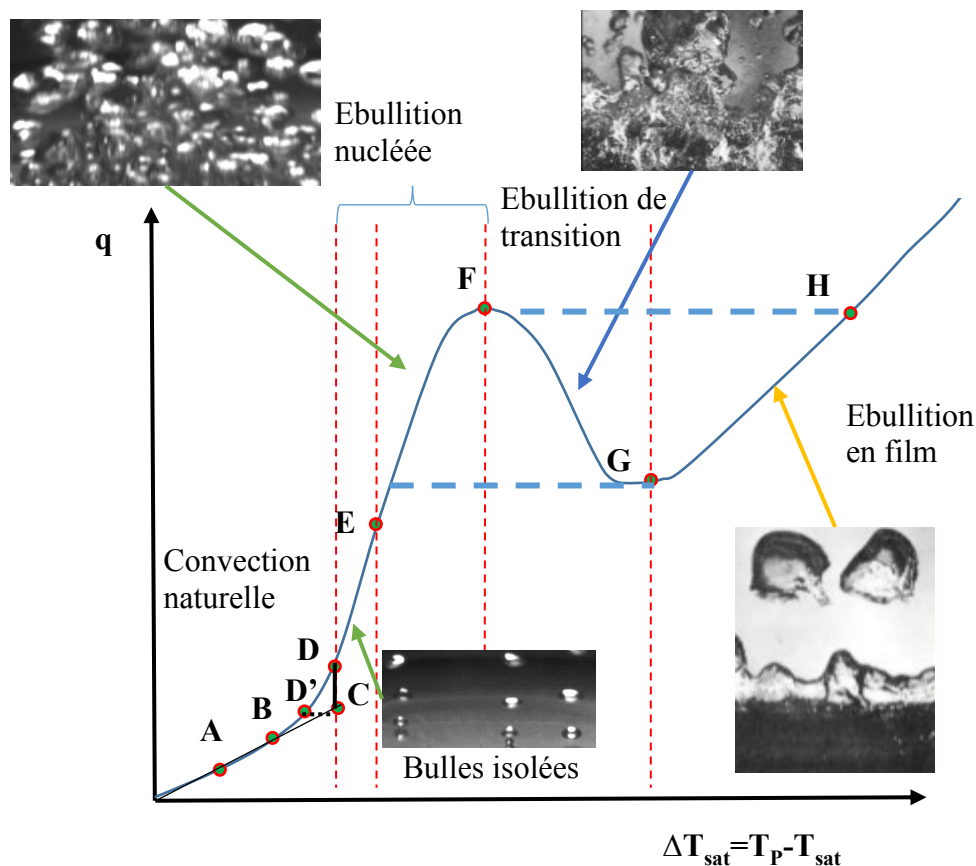


Figure 1.13 : Courbe d'ébullition

1.4. Courbe d'ébullition et coefficients d'échanges

Aux faibles densités de flux thermique, la surchauffe de la paroi n'est pas suffisante pour activer les sites de nucléation et déclencher l'ébullition. Les échanges thermiques s'effectuent par convection naturelle (partie AC sur la figure 1.13). Lorsque la surchauffe est suffisante, l'ébullition est amorcée. Le point C représente l'apparition de l'ébullition. Selon la théorie classique de la nucléation hétérogène, les premières bulles se forment à partir de résidus de vapeur ou de gaz piégés dans les défauts de surface tels que des rugosités, des craquelures ou des cavités microscopiques : ce sont des sites de nucléation.

Les essais sur l'ébullition peuvent être réalisés soit à puissance thermique imposée, soit à température de paroi imposée. A température de paroi imposée, la puissance thermique fournie à la paroi est ajustée afin de maintenir sa température constante. A flux thermique imposé, l'apparition de l'ébullition se traduit parfois par un refroidissement de la paroi (déplacement horizontal de C à D', figure 1.13) car les échanges thermiques en ébullition sont plus efficaces qu'en convection naturelle. A température de paroi imposée, le flux échangé est plus élevé dès l'apparition de la première bulle (déplacement vertical de C à D). L'intensification des transferts thermiques est due au changement de phase liquide/vapeur sur la partie supérieure de la bulle et à sa base (microcouche) et aux courants convectifs créés par l'émission et l'ascension des bulles. Les vitesses des bulles peuvent être importantes, jusqu'à quelques dizaines de cm/s. Le mouvement du liquide qui en résulte détruit cycliquement la couche limite thermique à proximité de la paroi : une partie de cette couche limite thermique, entraînée dans le sillage des bulles lors de leur émission, est remplacée par du liquide froid. Ces deux mécanismes de destruction et reformation de la couche limite thermique engendrent une augmentation des échanges thermiques.

La zone d'ébullition nucléée s'étend du point D au point F. Jusqu'au point F, la courbe est la même que l'on opère à température de paroi imposée ou à flux thermique imposé. Aux densités de flux thermique modérées D-E, les bulles sont émises à partir de sites répartis aléatoirement sur la surface (régime de bulles isolées), la densité des bulles reste relativement faible, et la fréquence des bulles n'est pas trop élevée. C'est le régime d'ébullition à bulles isolées. Lorsque le flux de chaleur augmente E-F, la densité de sites actifs croît et les bulles coalescent (régime de coalescence) formant ainsi des masses ou des colonnes quasi-continues de vapeur. Le passage du régime d'ébullition à bulles isolées au régime d'ébullition avec coalescence, se traduit parfois par un léger point d'inflexion sur la courbe. Toutefois, jusqu'à une densité de flux très proche du point F, le coefficient d'échange est bien supérieur à celui de la convection naturelle.

La limite supérieure de la zone d'ébullition nucléée est nettement marquée par le point F. En ce point, la génération de vapeur est telle que le liquide ne peut remouiller totalement la paroi. Une faible augmentation de la densité de flux de chaleur imposée conduit à une augmentation brutale de la température de la paroi jusqu'au point H, car la vapeur recouvre alors la paroi. Comme la vapeur est un excellent isolant (conductivité thermique très faible) et que la puissance thermique apportée par la source est alors très élevée, une grande quantité de chaleur est alors stockée par la paroi. Le régime de transition F-H est très instable. Le flux correspondant, qui est le flux maximum pour l'ébullition nucléée, est appelé flux de chaleur critique. Le point H est un point d'équilibre : les températures sont telles que le rayonnement thermique à travers la couche de vapeur participe aux échanges et permet de nouveau d'évacuer la grande quantité de chaleur fournie.

Une fois le film de vapeur établi, si le flux imposé est diminué, le film reste stable pour des densités de flux inférieures à la densité de flux critique (zone H-G). Lorsque la température de paroi devient inférieure à la température de Leidenfrost (point G), le film de vapeur se rompt et l'ébullition transite vers un régime d'ébullition nucléée.

Le régime de transition FGH ou régime de transition en film partiel, peut être uniquement atteint à température de paroi imposée. Le film de vapeur est instable laissant une surface de paroi plus ou moins grande susceptible d'être remouillée par du liquide. Quand on augmente la température de la paroi, la surface moyenne occupée par le liquide sur la paroi diminue, ce qui implique une diminution de la densité de flux de chaleur.

1.4.2. Mécanismes des transferts de chaleur

Kim (2009) a réalisé un état de l'art des mécanismes des transferts thermiques lors de l'ébullition nucléée. Les transferts de chaleur par ébullition sont dus à l'agitation causée par la croissance et le détachement de la bulle, la micro-convection autour de la bulle et l'évaporation de la microcouche située sous la bulle. Selon cette étude, la conduction transitoire et la micro-convection apparaissent comme les modes dominant des transferts thermiques tandis que la microcouche avec la ligne triple à l'interface liquide-gaz-solide ne représente au plus que 25 % du transfert thermique global. Moghaddam et Kiger (2009) ont aussi conclu que le transfert par évaporation de la microcouche est faible devant les transferts par conduction instationnaire et par micro-convection. Une présentation très complète des modèles utilisés pour analyser tous ces mécanismes de transferts ainsi que les résultats expérimentaux obtenus par différents auteurs est rassemblée dans la thèse de Barthès (2005). Cependant, ces modèles s'intéressent le plus souvent à la croissance de la bulle et ne permettent pas, pour l'instant, de prédire les courbes d'ébullition. Des corrélations semi-empiriques très globales, basées sur les propriétés du fluide, sont encore utilisées de nos jours bien que depuis une cinquantaine d'année d'innombrables études expérimentales ont prouvé l'influence majeure de la géométrie de la paroi sur l'ébullition et ont rendu totalement obsolètes ces corrélations sur des surfaces complexes. Dans ces corrélations, l'effet de la paroi est souvent pris en compte par un seul paramètre ajustable obtenu expérimentalement avec un fluide particulier.

1.4.3. Corrélations sur les transferts de chaleur

Des corrélations semi-empiriques ont été établies dès l'origine des études sur l'ébullition dans le but de prédire la surchauffe de la paroi en fonction du flux de chaleur q à évacuer. Ces corrélations sont surtout valables sur des surfaces très simples (par exemple des surfaces en cuivre polies avec une toile émeri dont la taille de grain est précisée) et sont développées uniquement pour l'ébullition nucléée (c'est-à-dire avant le flux critique, point F sur la figure 1.13). Elles sont établies pour des situations d'équilibre. La plus célèbre est celle de Rohsenow (1951) :

$$\Delta T_{sat} = C_{s,f} \left(\frac{h_{lv}}{c_{pl}} \right) \left[\frac{q}{\mu_l h_{lv} \sqrt{g(\rho_l - \rho_v)}} \right]^{1/3} \left(\frac{\mu_l c_{pl}}{\lambda_l} \right)^n \quad (1.13)$$

Dans cette expression $C_{s,f}$ est un coefficient expérimental qui dépend de l'état de polissage de la surface (en général réalisé avec une toile émeri plus ou moins fine) et du couple liquide/solide utilisé. De nombreuses valeurs de $C_{s,f}$ ont été proposées par Rohsenow et d'autres auteurs (Pioro 1999, Vachon et al. 1968). L'exposant n dépend du fluide utilisé. Rohsenow

1.4. Courbe d'ébullition et coefficients d'échanges

recommande de prendre $m = 0$ pour l'eau et $m = 1,7$ pour les autres fluides. Selon Pioro m varie en général entre 0,45 et 3,47.

Cette corrélation traduit le fait que la densité surfacique du flux thermique q varie selon la puissance au cube de la surchauffe à la paroi ΔT_{sat} ce qui traduit un accroissement de plus en plus fort des échanges au fur et à mesure que la puissance thermique à évacuer s'accroît. Cette corrélation ne permet donc pas de prédire l'existence d'un point d'inflexion (point E sur la figure 1.13) trahissant progressivement une dégradation des échanges lorsque la densité de flux se rapproche du point critique d'ébullition. La corrélation de Rohsenow doit donc être réservée pour les faibles densités de flux thermiques.

D'autres auteurs (cités par Collier et Thome, 1994) ont proposés des corrélations comme, par exemple, Stephan-Abdelsalam (1980), Forster et Zuber (1955), Borishanski (1969) et Mostinski (1963) qui prennent en compte l'influence de la pression du fluide, Cooper (1984) qui prend en compte l'état de la paroi en introduisant le paramètre de rugosité R_p . La plupart de ces corrélations sont des lois puissance de la forme $q = A \Delta T_{sat}^n$.

La figure 1.14 présente la corrélation de Rohsenow pour le couple éthanol/aluminium avec les valeurs des paramètres proposées par Pioro (1999) : $C_{s,f} = 0,008$ et $n = 1,18$. Nous verrons, dans le chapitre 4, que les courbes obtenues pour les surfaces lisses, s'écartent totalement des prédictions de cette corrélation du fait de l'influence majeure de l'état de la surface.

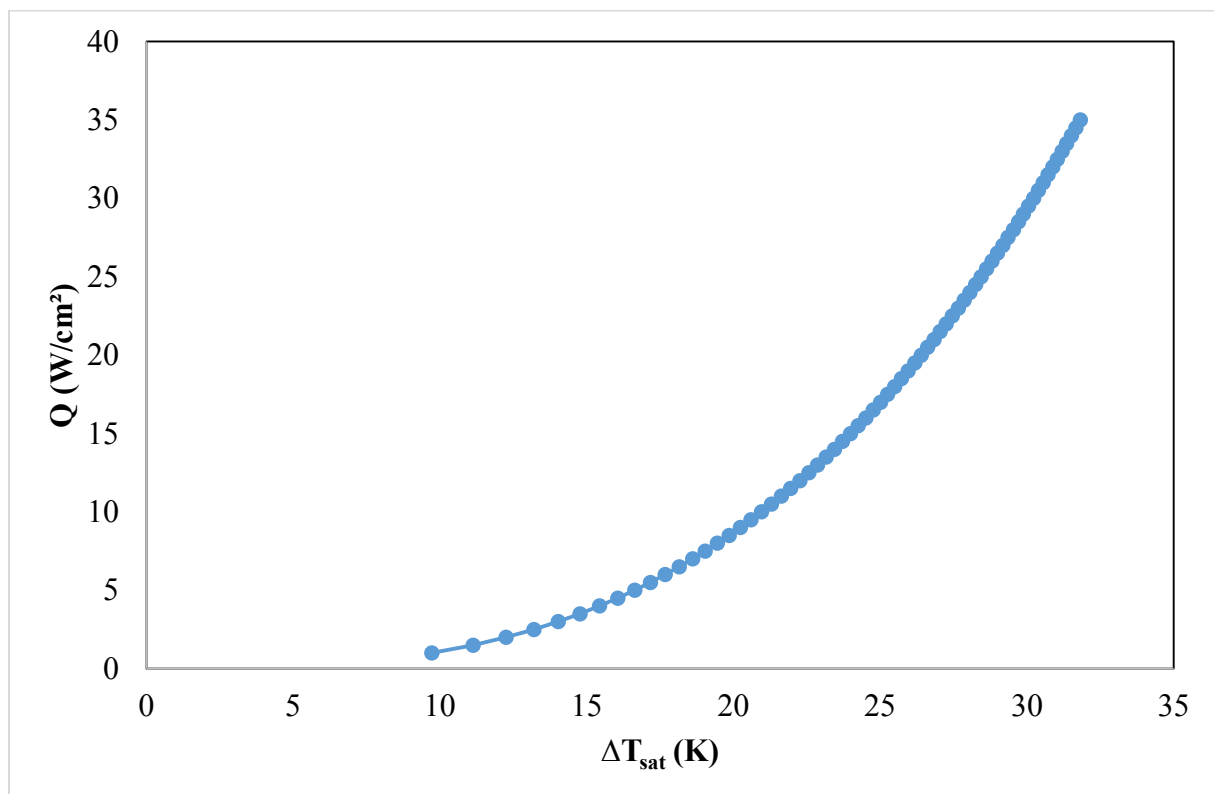


Figure 1.14 : Courbe d'ébullition obtenue par la corrélation de Rohsenow pour le couple éthanol /aluminium à 1,15 bar

1.5. Caractéristique des bulles

La forme de la bulle évolue selon les forces qui lui sont appliquées. La bulle quitte la paroi lorsque les forces tendant à la détacher deviennent plus grandes que celles qui la retiennent. Les forces agissant sur la bulle sont les forces statiques (flottabilité, pression de contact, tension superficielle, frottement) et dynamiques (inertie, trainée, force ascensionnelle due au sillage). Une présentation détaillée de ces forces est donnée par Ginet (1999).

Dans la littérature plusieurs corrélations sont proposées, la plupart anciennes, afin de prédire le diamètre de détachement D_d des bulles supposées sphériques.

La première corrélation connue est celle de Fritz (1935) établie en comparant la force de flottabilité à la force de tension superficielle. Sa corrélation prend en compte l'angle de contact θ de la bulle sur la paroi lors de sa croissance. Le coefficient 0,0208 est un coefficient obtenu sur la base d'observations, pour un angle θ exprimé en degré :

$$D_d = 0,0208 \theta \sqrt{\frac{\sigma}{g(\rho_l - \rho_v)}} \quad (1.14)$$

Ruckenstein (1961) a négligé la tension superficielle au moment du détachement qui résulte alors de la compétition entre les forces de flottabilité, d'inertie et de trainée. Il a utilisé le nombre de Jakob Ja :

$$D_d = \left(\frac{\sigma}{g(\rho_l - \rho_v)}\right)^{1/3} \left(\frac{3\pi^2 \rho_l \alpha_l^2}{\sigma}\right)^{1/3} Ja^{4/3} \text{ avec } Ja = \frac{c_{p,l} \rho_l \Delta T_{sat}}{\rho_v h_{lv}} \quad (1.15)$$

Mikic et Rohsenow (1969) ont utilisé le nombre de Jakob modifié Ja^*

$$D_d = 0,04 Ja * \sqrt{\frac{\sigma}{g(\rho_l - \rho_v)}} \text{ avec } Ja^* = \frac{c_{p,l} \rho_l T_{sat}}{\rho_v h_{lv}} \quad (1.16)$$

D'autres auteurs proposent sur la base d'observations expérimentales, des relations liant la fréquence f_d d'émission des bulles sur un site et le diamètre de détachement D_d de ces bulles.

Selon Jakob et Fritz (1931) le produit $f_d D_d$ reste constant (0,078 pour l'eau). De même, d'autres auteurs ont cherché à corréler la fréquence et le diamètre de détachement de la bulle sous la forme $f_d^p D_d = Cste$

$$\text{Zuber (1959) : } f_d D_d = 0,59 \left(\frac{g(\rho_l - \rho_v)}{\rho_l^2}\right)^{0,25} \quad (1.17)$$

$$\text{Cole (1960) : } f_d^2 D_d = \frac{4}{3} \left(\frac{g(\rho_l - \rho_v)}{\rho_l}\right) \quad (1.18)$$

$$\text{Ivey (1967) : } f_d^2 D_d = 0,81 g \quad (1.19)$$

1.6. Rôle de la surface dans le transfert de chaleur par ébullition nucléée

De nombreux travaux expérimentaux ont montré l'influence majeure de l'état de la surface sur l'intensification des transferts thermiques par ébullition. La topographie de la surface (rugosité, structuration, multiplication de sites, effets de capillarité, etc.) et le traitement chimique de la surface (amélioration de la mouillabilité) sont les paramètres clés car ils intègrent les dynamiques d'interaction entre le liquide de travail, la vapeur et la surface chauffée (Pioro et al. 2004). La littérature fait état d'une multitude de surfaces extrêmement complexes et très efficaces telles que, par exemple, les surfaces poreuses ou fibreuses présentant plusieurs couches de micro-pores interconnectés, piégeant une quantité importante de vapeur, réalisant des pompes capillaires liquide-vapeur puissants et développant des surfaces d'échanges considérables. Ces surfaces couplent un très grand nombre de phénomènes physiques. Elles sont donc difficiles à appréhender quantitativement, bien que qualitativement, les phénomènes principaux d'intensification sont assez bien compris. Dans la suite nous n'aborderons pas ce type de surfaces, nous nous limiterons à des surfaces plus simples.

1.6.1. Influence de la topographie de la surface

1.6.1.1. Effet de la rugosité sur l'ébullition

L'augmentation de la rugosité de la surface est la méthode la plus évidente pour accroître le nombre de sites de nucléations et intensifier ainsi les échanges thermiques. Le plus souvent, cela est obtenu par réalisation de rayures ou rainures (Jakob et Fritz, 1931), par application de toiles émeris de différentes finesses ou par sablage (Corty et Foust, 1955 ; Berenson, 1960). Les premières études sur l'influence de la rugosité sur l'ébullition ont été réalisées par Jakob et Fritz, 1931. Les paramètres statistiques les plus utilisés dans la littérature pour caractériser la rugosité de la surface sont la rugosité arithmétique de profil R_a et la moyenne quadratique RMS (Root Mean Square). Il existe toutefois beaucoup d'autres paramètres. Ces paramètres sont définis par la norme ISO 4287, c'est la norme principale. En fonction des applications ou de la méthode d'analyse de la surface, d'autres normes ont été définies (norme ISO 12085, norme ISO 13565, norme ASME B46.1, etc.).

Les résultats de Jakob et Fritz montrent que la rugosité est un paramètre majeur puisqu'elle améliore considérablement les échanges. Par rapport à une surface lisse, ils obtiennent une amélioration des échanges thermiques de plus de 60 % avec une surface rendue rugueuse. Depuis Jakob, de nombreux travaux ont été réalisés sur les effets de la rugosité. Nous nous limiterons donc à quelques résultats parmi les plus récents.

Roy Chowdhury et Winterton (1985) ont étudié l'effet de la rugosité de la surface (R_a variant de $0,25 \mu\text{m}$ à $4,75 \mu\text{m}$) sur l'ébullition en vase de l'eau et de l'éthanol sur des surfaces en aluminium et en cuivre. Ils constatent que les surfaces rugueuses présentent de meilleurs coefficients de transfert de chaleur à faibles densités de flux de chaleur.

El-Genk et Suszko (2014) ont étudié, dans les conditions de saturation, l'ébullition en vase du PF-5060 (produit par 3M) sur treize échantillons en cuivre (R_a variant de $0,039 \mu\text{m}$ à $1,79 \mu\text{m}$). Les échanges thermiques s'améliorent lorsque le R_a s'accroît. Par rapport à la surface la plus lisse ($R_a = 0,039 \mu\text{m}$), l'amélioration est de 100 % avec la surface la plus rugueuse ($R_a = 1,79 \mu\text{m}$).

Jabardo et al. (2009) ont réalisé, sous différentes pressions réduites p_r ($0,063 < p_r < 0,26$) l'ébullition des réfrigérants R-134a et R-123 sur des tubes en cuivre, bronze et acier. Les surfaces des tubes sont traitées par diverses méthodes afin d'obtenir des paramètres de rugosité R_a variant de $0,03 \mu\text{m}$ à $10,5 \mu\text{m}$. A faible densité de flux de chaleur, les échanges thermiques sont plus efficaces avec des valeurs de R_a élevées. Cette tendance peut s'inverser à forte densité de flux, c'est-à-dire que les surfaces à faible valeur de R_a peuvent être plus efficaces. Les valeurs de R_a intermédiaires ($2,5 \mu\text{m} < R_a < 3,5 \mu\text{m}$) semblent optimales, quelle que soit la densité de flux imposée.

Jones et al. (2009) ont réalisé des essais sur l'ébullition de l'eau et du FC77 sur une surface plane horizontale carrée ($25,4 \times 25,4 \text{ mm}^2$) en aluminium, avec des surfaces polies (R_a variant de $0,027 \mu\text{m}$ à $0,038 \mu\text{m}$) et rugueuses (R_a variant de $1,08 \mu\text{m}$ à $10 \mu\text{m}$). Les surfaces les plus rugueuses apparaissent les plus performantes pour toutes les densités de flux. Le comportement est cependant un peu différent pour les deux fluides : avec le FC72, l'intensification atteint presque sa valeur maximale avec une valeur de R_a égale à $1,08 \mu\text{m}$, avec l'eau l'augmentation est progressive lorsque R_a varie de $1,08 \mu\text{m}$ à $10 \mu\text{m}$.

McHale et Garimella (2008, 2010) ont mesuré le diamètre de détachement des bulles lors de l'ébullition du FC-77 dans les conditions de saturation sur des surfaces en aluminium lisses et rugueuses avec des rugosités R_a variant de $0,03$ à $5,89 \mu\text{m}$. Le diamètre des premières bulles est plus petit pour les surfaces rugueuses que pour les surfaces lisses. Cependant, pour les surfaces rugueuses les premières bulles apparaissent pour des densités de flux et des surchauffes de paroi deux à trois fois plus faibles que pour les surfaces lisses. Avec les surfaces lisses le diamètre de détachement de la bulle augmente de façon significative avec l'élévation de la densité du flux thermique. L'accroissement du diamètre de la bulle est moins significatif avec les surfaces rugueuses, mais là encore les densités de flux et les surchauffes de paroi ne sont pas comparables. McHale et Garimella (2013, part 1) indiquent que le paramètre de rugosité R_a seul est insuffisant pour caractériser l'amélioration des transferts de chaleur par rapport à une surface lisse. En effet, le R_a ne donne pas d'indication sur la distribution des rugosités à l'échelle locale, ni si des irrégularités existent sur une échelle plus grande.

Benjamin et Balakrishnan (1997) rassemblent des données de la littérature et réalisent leurs propres mesures sur la détermination de la densité surfacique n de sites actifs en fonction de la surchauffe de la paroi. Ils proposent une relation empirique pour prédire le nombre de sites actifs en fonction de la rugosité de la surface, des propriétés du fluide, de la surchauffe de la paroi. Ils constatent que la courbe de variation $n/\Delta T_{\text{sat}}$ en fonction de R_a présente un minimum.

Jung et Kwak (2006) ont étudié les effets de la rugosité à l'échelle submicronique ($\text{RMS} = 307 \text{ nm}$ et 163 nm) pour l'ébullition nucléée sous-refroidie du FC72 sur des surfaces de silicium. Par rapport à un substrat en silicium non traité (surface lisse) ils obtiennent une intensification modeste (+ 3 %) avec la rugosité la plus fine ($\text{RMS} = 163 \text{ nm}$) et significative (+53%) avec la plus forte rugosité ($R_a = 307 \text{ nm}$). Kang (2000) a étudié l'effet de la rugosité ($\text{RMS} = 16 \text{ nm}$ et 61 nm) sur l'ébullition en vase sur des tubes. Pour un tube horizontal, il n'observe pas de différences significatives sur les courbes d'ébullition.

1.6. Rôle de la surface dans le transfert de chaleur par ébullition nucléée

1.6.1.2. *Sites de nucléation artificiels*

Le paragraphe 1.2 a expliqué l'importance des sites de nucléations. Afin de comprendre le rôle précis des sites sur la nucléation ou d'analyser les phénomènes d'ébullition, des sites artificiels ont été gravés sur des surfaces lisses. Parallèlement à ces travaux expérimentaux, des modèles théoriques ou numériques ont été développés sur des géométries simples (cavités de formes conique ou cylindrique).

Dès 1958, Griffith et Wallis confirment expérimentalement le rôle de ces cavités sur la surchauffe d'apparition de l'ébullition. Depuis Griffith et Wallis de nombreux travaux ont été réalisés sur des sites de géométries de plus en plus contrôlées et de plus en plus petits, notamment grâce à l'amélioration des techniques de gravures à la micro-échelle voir à la nano-échelle sur du silicium.

Shoji et Takagi (2001) ont gravé sur la surface plane de disques en cuivre (rugosité $\approx 1 \mu\text{m}$), des microcavités de différentes géométries (coniques, cylindriques et réentrantes), de différents diamètres d'ouverture ($50 \mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$) et de profondeurs variables de 30 à $50 \mu\text{m}$. Sur chaque échantillon, un seul site a été gravé, situé sur l'axe du disque. Le fluide utilisé pour l'ébullition est l'eau, la pression de travail est de 1 bar. Les cavités cylindriques et réentrantes ont produit une nucléation stable et régulière même à faible surchauffe. Les cavités de forme conique ont donné lieu à une nucléation irrégulière, intermittente et nécessitant une surchauffe plus élevée pour maintenir la nucléation. Sanna et al. (2009) ont montré par la simulation que le temps d'attente peut être fortement influencé par l'épaisseur et les propriétés thermiques de la paroi chauffée.

Siedel et al. (2008) ont étudié, sous la pression de 1 bar et dans les conditions de saturation, la croissance de bulles de n-pentane sur un site de nucléation unique de forme conique (diamètre d'ouverture $180 \mu\text{m}$, profondeur $500 \mu\text{m}$) gravé sur une surface polie en cuivre. En dehors du site, aucune bulle n'est générée. Ils constatent que le volume de détachement des bulles est indépendant de la surchauffe de la paroi. La fréquence des bulles augmente linéairement avec la surchauffe de la paroi.

Hutter et al. (2010) ont étudié la croissance de bulles sur des substrats en silicium munis d'un site de nucléation cylindrique unique (diamètre d'ouverture $10 \mu\text{m}$, profondeur 40, 80 ou $100 \mu\text{m}$) Le fluide utilisé est le FC72 sous les pressions de 1, 1,25 ou 1,5 bars. Le substrat en silicium comporte un microcircuit de chauffage et des micro-capteurs intégrés. Ils obtiennent des lois de croissance de bulle en fonction de la surchauffe de la paroi. Pour une surchauffe de paroi donnée, la fréquence d'émission des bulles décroît légèrement lorsque la pression augmente. Le diamètre de détachement des bulles s'accroît avec la surchauffe de la paroi, mais ne dépend pas de la profondeur du site et de la pression. Dans un autre article (2013), Hutter et al.) ont étudié le phénomène de coalescence au-dessus d'un site cylindrique unique (diamètre d'ouverture $10 \pm 0,5 \mu\text{m}$, profondeur $80 \pm 0,5 \mu\text{m}$) gravé sur un substrat en silicium (épaisseur $380 \mu\text{m}$, rugosité $0,5 \text{ nm}$). Le fluide est le FC72 sous les pressions de 0,5-0,75 et 1 bar. A bas flux thermique, la fréquence d'émission est faible et les bulles ne coalescent pas. A flux thermique plus élevé, la surchauffe de la paroi augmente ainsi que la fréquence d'émission des bulles, le phénomène de coalescence verticale apparaît entre deux bulles successives générées sur le même site. A basse pression, la fréquence d'émission des bulles est plus élevée et le phénomène de coalescence intervient à des surchauffes de paroi plus faibles.

Whitarana et al. (2012) ont étudié le déclenchement de l'ébullition (eau) sur des cavités artificielles isolées (diamètres d'ouverture variant entre 90 nm et 4,5 μm) gravées sur des surfaces de silicium ultra propres et lisses. Leurs résultats expérimentaux sont en accord avec les prédictions données par l'équation Young-Laplace combinée aux tables thermodynamiques de saturation. Ils concluent la validité de la théorie classique de l'ébullition.

Dong et al. (2014) ont comparé les surfaces lisses, micro structurées et nano structurées. Sur les surfaces nano-structurées de petites bulles se développent, la fréquence d'émission de ces bulles est grande. Cela permet de repousser à plus haut flux, la formation d'un film de vapeur et donc de rehausser le niveau du flux critique. Les bulles de petites tailles fusionnent en effet, plus difficilement que les grosses bulles. Récemment, afin d'étudier les conditions de piégeage de la vapeur, des cavités artificielles cylindriques avec différents rapports d'aspects différents « hauteur sur diamètre d'ouverture » ont été réalisées par Bon et al. (2013).

Leal et al. (2013) ont étudié le déclenchement de l'ébullition sur une surface AU4G (de rugosité proche de 100 nm) avec du n-pentane. Ils ont trouvé que la surchauffe nécessaire pour déclencher l'ébullition est indépendante du confinement ; ils ont pour cela comparé les résultats pour un système confiné de 250 et 500 μm et un système non confiné. Par ailleurs, ils ont utilisé une technique active tout à fait originale pour diminuer la surchauffe nécessaire pour déclencher l'ébullition. Un actionneur (système piézoélectrique) est capable de vibrer pour créer une onde dont l'amplitude et la fréquence sont contrôlées. L'augmentation de la fréquence de l'actionneur diminue la surchauffe nécessaire au déclenchement de l'ébullition. A titre d'exemple, pour un confinement de 250 μm et une amplitude de 210 μm , la surchauffe nécessaire pour déclencher l'ébullition pour 20 Hz est 18 K et pour 100 Hz est 3.2 K.

1.6.1.3. *Interaction entre sites voisins*

Dans cette partie sont présentés quelques résultats de la littérature sur l'interaction, lors de l'ébullition en vase, entre des sites artificiels de géométrie contrôlée, gravés le plus souvent sur des supports en silicium. L'interaction entre les sites a été quantifiée par le nombre adimensionnel S/D_d avec S la distance entre 2 cavités et D_d le diamètre de détachement des bulles (tableau 1.1).

Yu et al. (2006) ont analysé expérimentalement l'ébullition en vase avec le FC-72 sur des surfaces en silicium munies de micro-cavités cylindriques (diamètres d'ouvertures : $D = 200, 100$ et $50 \mu\text{m}$; profondeur : $H = 200$ et $110 \mu\text{m}$) gravés selon des matrices constituées de 256 à 1089 sites (16×16 , 25×25 , 33×33) et avec divers espacements $S = 100, 200$ et $400 \mu\text{m}$. Une densité plus élevée de cavités repousse le flux critique à valeurs plus élevées.

Das et al. (2007) ont également réalisé une distribution de sites artificiels (52 sites et 100 sites de profondeurs 600 μm) sur une plaque de cuivre. Pour des flux thermiques supérieurs à 8 W/cm^2 , la diminution de diamètre et de profondeur améliorent le coefficient transfert thermique.

Shoji et al. (2002), Zhang et al. (2003), Chatpun et al. (juillet 2004, décembre 2004), Mosdorf et al. (2006, 2008) ont étudié l'ébullition de l'eau sur le silicium avec des cavités gravées de forme cylindrique (diamètre 10 μm , hauteur 80 μm). Dans leur article de décembre 2004, Chatpun et al. examinent l'influence de l'arrangement des cavités (disposées en ligne ou selon un triangle équilatéral) à partir de 4 cavités identiques espacées de 1 à 4 mm. Avec la disposition en ligne, ils obtiennent une fréquence de détachement des bulles plus élevée. Avec

1.6. Rôle de la surface dans le transfert de chaleur par ébullition nucléée

la disposition en triangle, ils observent un diamètre de détachement plus grand. A bas densité de flux, ils constatent que l'arrangement en ligne avec la taille optimale de la cavité est plus performante.

Auteurs	Paramètres	Résultats
Chekanov 1997	$S/D_d < 3$	La formation d'une bulle dans un site empêche la nucléation sur le site voisin le plus proche
	$S/D_d > 3$	La formation d'une bulle sur un site favorise la formation d'un bulle sur le site voisin
	$S/D_d \gg 3$	Pas d'interaction entre bulles
Judd et Lavdas (1980), Calka et Judd (1985), Judd (1988), Judd et Chopra (1993).	$S/D_d < 1$	Activation par contamination : une bulle créée sur un site s'étale lors de sa croissance sur la paroi et recouvre un autre site ce qui permet de l'activer
	$S/D_d > 3$	Pas d'interaction
	$1 < S/D_d < 3$	La formation d'une bulle dans un site empêche la nucléation sur le site voisin le plus proche
Zhang et Shoji (2003), Chatpun, Watanabe et Shoji (Juillet 2004)	$S/D_d < 1,5$	Trois interactions : hydrodynamiques, thermiques et coalescences. La fréquence des bulles est plus élevée avec la coalescence
	$1,5 < S/D_d < 2$	Interactions hydrodynamiques et thermiques.
	$2 < S/D_d < 3$	Interactions hydrodynamiques qui augmentent la fréquence d'émission des bulles.
	$S/D_d > 3$	Pas d'interaction

Tableau 1.1 : Caractérisation de l'interaction entre les sites de nucléation

Sato et al. (2008) ont étudié l'effet de l'espacement des cavités sur le transfert de chaleur par ébullition en vase. Ils ont utilisé des cavités cylindriques de diamètre 10 μm et de profondeur 40 μm , arrangées le long d'une ligne droite. L'espacement entre les cavités, de centre à centre, varie de $S = 1$ à 4 mm. L'interaction entre sites est plus grande pour les cavités plus rapprochées. Très récemment, Bi et al. (2014) ont conclu que l'espacement entre les sites de nucléation a un grand effet sur la coalescence, la fréquence des bulles, le diamètre de détachement et la distribution de flux de chaleur sur la surface chauffée.

Hutter et al. (2012) ont étudié expérimentalement l'interaction entre des sites de nucléation cylindriques (diamètre 10 μm , profondeur 80 μm) gravés sur une plaque de silicium et espacés de 0,84, 1,2 et 1,5 mm. Le fluide utilisé est le FC-72. Le diamètre de détachement s'accroît avec l'augmentation de la distance entre les sites. Un phénomène de coalescence horizontale apparaît uniquement avec l'espacement de 0,84 mm. La fréquence d'émission des bulles augmente lorsque la distance S entre les bulles augmente. Lorsque le rapport $S/D_d = 0,5$ la fréquence est 3 fois plus élevée que pour $S/D_d = 1,5$ et 1,75 que pour $S/D_d = 2,5$.

Jiang et al. (2010) ont calculé, par simulation numérique, les fluctuations de températures sous des sites de nucléation. Leur simulation montre que les variations de températures sont bien faibles avec du cuivre qu'avec de l'aluminium. Dans le même article, ils suggèrent que la modélisation des interactions de bulles doit prendre en compte non seulement le rapport des distances sur le diamètre, mais aussi les propriétés du fluide et de la paroi.

Bonjour et al. (2000) ont analysé expérimentalement le phénomène de coalescence avec des sites de nucléation artificiels gravés sur une surface en aluminium (AU4G) orientée verticalement. Les fluides utilisés sont le pentane et le R113. Ils constatent que la coalescence améliore le transfert de chaleur. Ils attribuent cela à l'évaporation de la « microcouche » supplémentaire localisé sous les deux bulles fusionnées.

Le tableau 1.1 donne une présentation des quelques travaux sur l'interaction entre sites.

1.6.2. Influence de la chimie de la surface

La mouillabilité de la surface ou l'orientation de la structure cristalline de certains matériaux peut modifier la surchauffe nécessaire au déclenchement. C'est pourquoi afin d'analyser cet effet et d'optimiser la surface pour l'ébullition, différentes études ont été présentées dans la littérature. Nous nous limiterons à quelques exemples.

1.6.2.1. Effet de l'architecture cristalline

Harrison et Levine (1958) ont étudié, pour le couple cuivre/acide stérique, l'effet de l'orientation du plan cristallin à la surface du métal sur les transferts de chaleur lors de l'ébullition. Ces auteurs, n'ont constaté aucune influence de l'orientation sur l'angle de contact, mais ont observé des différences significatives sur les transferts de chaleur. Ils ont conclu que l'angle de contact n'est pas suffisant pour caractériser le transfert de chaleur par ébullition de fluides très mouillants sur des surfaces lisses.

Bon et al. (2013) ont étudié la nucléation et les transferts de chaleur par ébullition sur des surfaces lisses avec différentes orientations de plans cristallins. Ils observent que les surfaces de silicium présentent une élévation du coefficient de transfert de chaleur par ébullition avec l'augmentation de la densité atomique des plans cristallographiques. Constatant également que les surfaces métalliques montrent une tendance opposée, ils émettent l'hypothèse qu'une densité atomique plus faible sur le plan cristallin favorise, sur les surfaces métalliques, des interactions électro-hydrodynamiques microscopiques. Dans les deux types de comportement, ces expériences montrent que même de faibles variations de l'orientation peuvent entraîner des différences notables sur le coefficient de transfert de chaleur lors de l'ébullition. Selon ces auteurs, la densité atomique des plans cristallographiques est donc un facteur important qui influe le coefficient de transfert thermique par ébullition.

Parallèlement à ces travaux expérimentaux, des simulations numériques ont été réalisées. A l'aide des méthodes de la dynamique moléculaires MD, Torii et al. (2009) ont analysé les effets des paramètres d'interactions moléculaires et de la structure planaire sur le transfert d'énergie à l'interface solide-liquide. Les résultats montrent que sur l'échelle moléculaire la corrugation de surface et la densité surfacique d'atomes ont un effet notable sur le transfert d'énergie à l'interface solide-liquide.

1.6.2.2. Effet de la mouillabilité

La mesure de l'angle de contact d'une goutte de liquide sur la surface est une mesure de la mouillabilité de la surface. L'angle de contact du liquide sur une paroi dépend des paramètres physiques de la surface (rugosité) et surtout de la chimie de la surface.

1.6. Rôle de la surface dans le transfert de chaleur par ébullition nucléée

Jo et al. (2011) ont étudié l'ébullition de l'eau sur des supports en silicium avec un dépôt, soit d'une revêtement hydrophile (SiO_2 , angle de contact 54°), soit hydrophobe (téflon, angle de contact 123°). Pour la surface hydrophobe, le déclenchement apparaît sous des surchauffes moins élevées que pour la surface hydrophile. Avec la surface hydrophobe, les échanges thermiques sont meilleurs à faibles flux thermiques. En contrepartie, ils se dégradent rapidement lorsque la densité de flux augmente atteignant prématurément le flux critique.

L'effet de l'angle de contact (18° , 35° et 90°) sur l'ébullition (pression, 1 atm) a été analysé par Wang et Dhir (1993) pour l'ébullition de l'eau sur du cuivre avec différents degrés d'oxydation. L'augmentation de la mouillabilité de la surface provoque une diminution de la densité de sites de nucléation actifs.

Phan et al. (2009) ont étudié l'effet de la mouillabilité sur le transfert de chaleur par ébullition sous-refroidie (15°C) de l'eau à 1 bar. Le contrôle de l'angle de contact, variant de 22° à 112° est réalisé à l'aide de différents types de revêtements (SiO_x , TiO_2 , Pt, Fe_2O_3 , SiOC et Teflon). Ils constatent que les performances sont minimales pour des angles de contact compris entre 40° et 50° .

Bourdon et al. (2012) ont observé l'ébullition de l'eau sur un support en bronze poli miroir, de forme circulaire possédant sur une moitié un revêtement hydrophile et sur l'autre moitié un revêtement hydrophobe. L'ébullition se développe sur la moitié hydrophobe et elle n'apparaît pas sur la moitié hydrophile.

Dans le but d'obtenir des performances optimales, Betz et al. (2013) ont réalisé des surfaces super-hydrophiles (angle de contact proche de 0°), hydrophiles (angle de contact de 7° à 30°), hydrophobes (angle de contact de 110 - 120°), super-hydrophobes (angle de contact de l'ordre de 160°) et biphiliques c'est-à-dire hydrophiles avec des îlots hydrophobes. Le support est constitué de silicium avec différents types de revêtements pour obtenir ces mouillabilités. Les surfaces super-biphiliques présentent de loin les meilleures performances.

Nam et al. (2011) ont étudié la croissance d'une bulle sur un site de nucléation cylindrique (diamètre $15\text{ }\mu\text{m}$, profondeur $70\text{ }\mu\text{m}$) gravé sur une surface super-hydrophile. Le site est réalisé sur un support en silicium. Une fine couche de cuivre (épaisseur $1\text{ }\mu\text{m}$) est ensuite déposée sur le support. Un traitement à l'aide d'une solution chimique permet de rendre cette couche super-hydrophile et nano-poreuse. Par rapport à une surface de silicium oxydée munie d'un site de même géométrie, ils constatent que le diamètre de détachement des bulles est 2,5 fois plus faible et la durée de croissance de la bulle est réduite d'un facteur 4. Ils attribuent ce résultat à la diminution de l'angle de contact. Leurs résultats numériques sont en bon accord avec leurs résultats expérimentaux.

1.6.3. Anomalie de l'ébullition sur les surfaces ultra-lisses

Le paragraphe précédent montre que la présence de rugosités (R_a variant de quelques centaines de nanomètres à quelques micromètres) améliore de façon significative les échanges thermiques et permet donc de réduire la surchauffe de la paroi. Or, des résultats récents ont fait apparaître des échanges thermiques très efficaces sur des surfaces ultra-lisses métalliques, en dépit de l'absence de sites de nucléation potentiels. Ce sont principalement ces résultats nouveaux associés également à la nécessité de disposer de surfaces de références qui ont motivé les travaux réalisés dans cette thèse.

La littérature présente peu d'études du phénomène d'ébullition sur les surfaces ultra-lisses. Les travaux sur les surfaces métalliques avec des rugosités de l'ordre du nanomètre semblent relativement récents et développés que par un petit groupe d'auteurs.

Bon et al. 2011 ont déclenché l'ébullition nucléée sur des surfaces métalliques ultra-lisses (RMS variant de 30 à 365 nm) avec de très faibles surchauffes de la paroi ($\Delta T \approx 10$ K) ce qui n'est pas en accord la théorie classique. Ces auteurs ont conclu que la nucléation hétérogène n'est pas due uniquement au piégeage de la vapeur dans les cavités. Selon ces auteurs, des considérations théoriques nouvelles doivent être proposées pour comprendre ce phénomène ; des techniques expérimentales innovantes doivent être développées et des mesures à des échelles nanométriques doivent être réalisées. De même, Qi et Klausner (2005), Jones et al. (2009) ont obtenu, avec des surfaces métalliques, des surchauffes de déclenchement étonnamment faibles avec ce niveau de rugosité. Par contre, sur des surfaces non métalliques (silicium Rugosité = 0,5 nm), Witharana et al. (2012) ont obtenu une surchauffe de 120 K pour déclencher l'ébullition. La figure 1.15 présentent un comparatif de la surchauffe de la paroi nécessaire pour déclencher l'ébullition en fonction de la rugosité de la surface (RMS). Elle montre qu'avec les surfaces métalliques, les surchauffes à l'apparition de l'ébullition sont bien plus faibles qu'avec le silicium avec la même rugosité de surface.

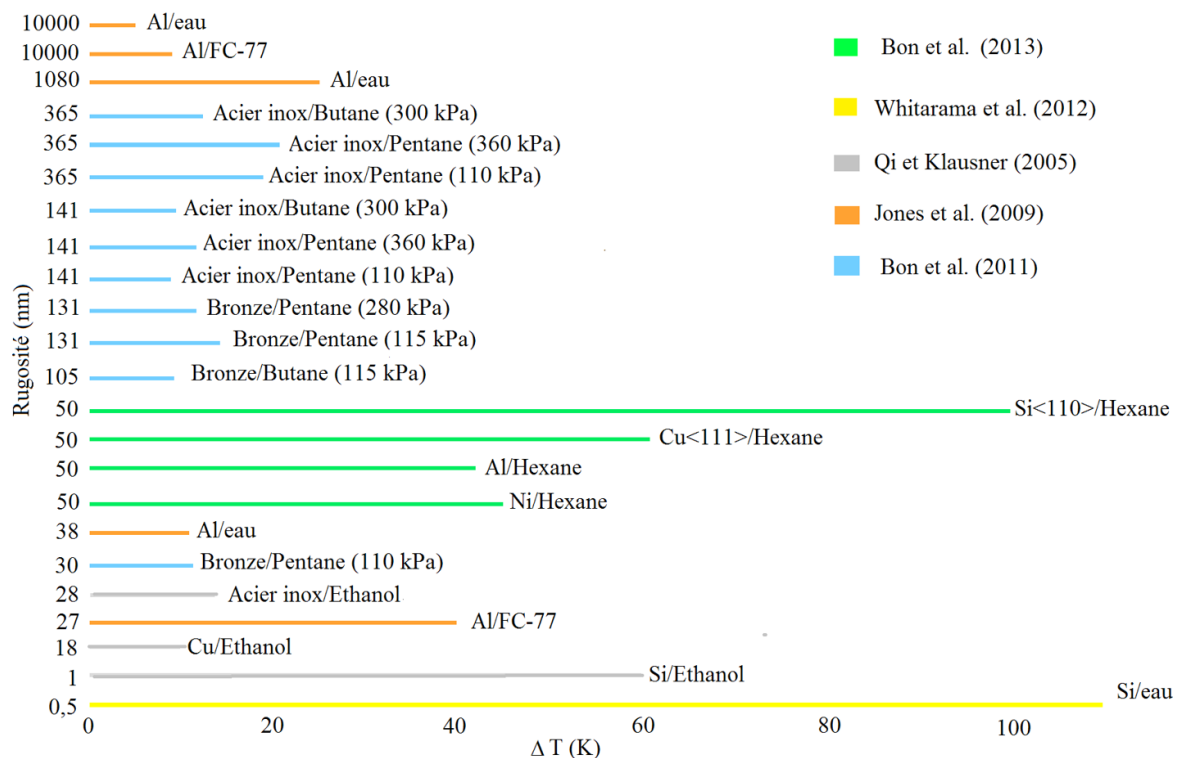


Figure 1.15 : Variation de la surchauffe nécessaire pour le déclenchement en fonction de la rugosité

Au vu de ces résultats, il ne semble pas qu'il y a de lien entre la rugosité (RMS ou Ra) et la surchauffe. Ceci peut, sans doute, s'expliquer de la façon suivante : les paramètres de rugosité sont une propriété globale de la surface alors que la nucléation est un phénomène très local lié à un site. Ainsi, une surface possédant un RMS ou un Ra extrêmement faible (de l'ordre du nanomètre) peut comporter un (ou plusieurs) site(s) de taille favorable non nanométrique,

1.7. Conclusion

cela peut suffire pour déclencher la nucléation. Le polissage mécanique n'assure pas une homogénéité totale de la surface. D'autres raisons peuvent être invoquées. La première raison est peut-être liée à la taille extrêmement petite des sites pouvant théoriquement jouer un rôle sur la surchauffe. On atteint ainsi les limites de détection des appareils de mesure. Cependant, cela est peu probable car ce type de site est présent sur tous les types de surfaces et ce ne sont sans doute pas ce type de site qui explique ces résultats. La seconde raison est liée au nombre de paramètres qu'il est nécessaire de maîtriser pour expliquer la nucléation (forme de sites, rapport d'aspect hauteur/diamètre en correspondance avec la mouillabilité de la surface). Dans ce cas, le RMS seul ne suffit pas. Par ailleurs, le microscope ne donne qu'une image imparfaite de la géométrie de surface, car il interpole entre 2 points discrets de mesures. La troisième est liée à l'extrême complexité d'une surface à l'échelle nano ou micrométrique, qui rend difficile l'analyse complète d'une surface de grande taille et la comparaison entre deux surfaces différentes. La quatrième raison est due à l'impossibilité de réaliser systématiquement un balayage très complet d'une surface de taille bien supérieure celle d'un site (temps de mesures extrêmement long). Ainsi, le balayage n'a peut-être pas réalisé une couverture complète de la surface. Il n'a alors pas détecté des sites et des défauts isolés, sans doute peu nombreux, mais clés pour le déclenchement.

1.7. Conclusion

Dans ce premier chapitre, nous avons présenté quelques éléments sur l'ébullition et fait une étude bibliographique très synthétique pour situer notre travail. Nous nous sommes limités, pour cela, à des surfaces simples. L'étude bibliographique montre qu'il existe très peu d'études sur des surfaces métalliques simples de référence telles que les surfaces ultra-lisses, malgré d'innombrables études sur l'ébullition. A l'heure actuelle, la grande majorité des travaux porte sur des surfaces extrêmement compliquées (surfaces poreuses, fibreuses, revêtement non homogènes) très efficaces du point de vu des échanges thermiques mais impossible à analyser de façon quantitative du fait de leur complexité. Ces surfaces, couplant de nombreux phénomènes physiques, sont surtout développées pour des besoins industriels mais ne se prêtent pas à des études fondamentales de base. De telles surfaces n'ont pas été présentées dans l'étude bibliographique car elles s'écartent trop de notre sujet. Contre toute attente, malgré l'absence de sites, quelques résultats récents de la littérature ont fait état de performances intéressantes obtenues avec des surfaces ultra-lisses. C'est pour cette raison que nous avons choisi d'analyser ce type de surface.

CHAPITRE 2 : PREPARATION ET CARACTERISATION DES SURFACES D'EBULLITION

Ce chapitre présente les échantillons qui servent de support aux surfaces étudiées dans le cadre de cette thèse. Dans un premier temps, la géométrie de cet échantillon est décrite et justifiée. Ensuite, la méthode de préparation et de caractérisation des surfaces est détaillée. Enfin, les échantillons adaptés à l'étude des phénomènes par plasmon de surface sont présentés.

2.1. Géométrie des échantillons d'essai

Le phénomène d'ébullition nucléée est étudié sur des échantillons ayant une base géométrique similaire mais des états de surface différents. Il s'agit de disques de diamètre 80 mm et d'épaisseur 5 mm (Figure 2.1 a). Une géométrie circulaire a été choisie pour des raisons de symétrie et les dimensions sont contraintes par les techniques de réalisation des surfaces. La zone d'étude, comportant les différents états de surface étudiés, est un disque de 25,4 mm situé au centre de l'échantillon sur sa face avant. L'échantillon est chauffé sur sa face arrière par une résistance électrique de même diamètre.

Dans les échantillons utilisés habituellement pour l'étude de l'ébullition, les premières bulles apparaissent généralement à la périphérie des échantillons. La présence d'interstices à la jonction de la surface métallique avec le matériau isolant environnant et la faible mouillabilité des fluides avec les isolants utilisés (Téflon, Nylon, colles pour combler les interstices, etc.) constituent des facteurs très favorables à l'apparition des bulles à la périphérie de la zone d'étude. C'est pourquoi, afin d'éviter la formation de ces bulles parasites, une rainure annulaire a été réalisée en face arrière de l'échantillon dont le diamètre interne correspond au diamètre de la zone d'étude (25,4 mm). La profondeur de cette rainure est de l'ordre de 4,8 mm et sa largeur de 5 mm ou 10 mm en fonction des échantillons. Cette rainure permet de limiter les transferts de chaleur vers la périphérie de l'échantillon et donc l'activation de bulles parasites. Les deux épaisseurs différentes des rainures sont dues aux spécificités des deux bancs d'essais du projet NUCLEI, l'un en conditions cryogéniques et l'autre en conditions ambiantes.

L'épaisseur de métal d'environ 0,2 mm séparant la zone d'étude de la périphérie de l'échantillon a été choisie de manière à conserver la résistance mécanique de l'échantillon tout en limitant au maximum les pertes thermiques vers la périphérie et maintenir celle-ci à une température proche de la température de saturation, donc à une surchauffe insuffisante pour générer des bulles.

Enfin, chaque échantillon comporte une micro-rainure linéaire (longueur : 25,4 mm, largeur 300 μm et profondeur 500 μm) traversant la zone centrale en face arrière afin d'insérer un thermocouple de type K pour la mesure de température de l'échantillon sous la zone d'études (Figure 2.1 a).

2.2. Polissage des échantillons

Afin d'évaluer la répartition de la température à la surface de l'échantillon, un modèle numérique axisymétrique a été développé sous COMSOL Mutiphysics 5. Les conditions aux limites introduites sont conformes aux conditions expérimentales. Sur la face inférieure, un flux thermique est imposé dans la zone centrale (10 W/cm^2), la périphérie de la face inférieure étant isolée. Sur la face supérieure, un coefficient d'échange par convection naturelle de $500 \text{ W/m}^2\text{K}$ est imposé sur la périphérie du système et un coefficient d'échange par ébullition de $1500 \text{ W/m}^2\text{K}$ au centre de l'échantillon avec une température de saturation du fluide de 60°C . Ces valeurs sont estimées à partir de valeurs expérimentales pour des conditions d'ébullition peu développée. La figure 2.1(b) présente le résultat obtenu pour un flux thermique de 10 W/cm^2 . La température de la partie centrale est homogène, elle décroît très rapidement vers la température de saturation du fluide après la rainure en direction de la périphérie de l'échantillon, ce qui permet d'éviter la formation de bulles parasites. La différence de température entre la partie centrale et celle de la partie latérale est d'environ 30 K , ce qui permet d'éviter le phénomène d'ébullition en dehors de la zone centrale de l'échantillon.

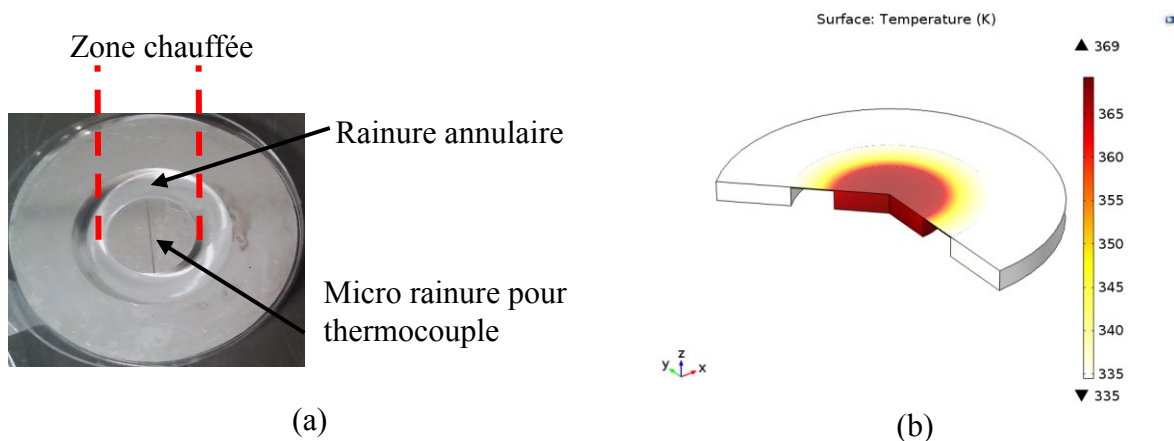


Figure 2.1 : a) Vue de la face arrière de l'échantillon ; b) Champ de température de l'échantillon dans les conditions de l'expérience

2.2. Polissage des échantillons

Tous les échantillons sont polis mécaniquement à l'aide d'une polisseuse de type Lamplan MM 8400 présentée sur la figure 2.2. Le plateau de rodage NEW LAM® est utilisé avec différents abrasifs à base de diamant ou de silice. Dès la mise en rotation du plateau, sous l'effet combiné du poids de la pièce et de la charge des vérins, les grains se déplacent en produisant une action abrasive.



Figure 2.2 : Polisseuse et outils de polissage

Les surfaces les plus lisses sont obtenues à l'aide de la polisseuse, en respectant une procédure bien précise. Tout d'abord, la surface doit être dégrossie. Cela est réalisé à l'aide d'un fluide abrasif chargé de particules de diamant de $15\ \mu\text{m}$ (Bio DIAMANT de NEOLAP®). La durée de cette première étape dépend de l'état initial de la surface (minimum 5 min, maximum 1 heure). La deuxième étape, consiste à supprimer les rayures. Pour cela un support de polissage constitué d'un tissu de fibres naturelles tissées en satin extra fin est collé sur le plateau rotatif de la polisseuse. Des liquides abrasifs de type Bio DIAMANT de NEOLAP®, chargés respectivement de grains de diamant de $6\ \mu\text{m}$, puis de $3\ \mu\text{m}$ sont utilisés. Pour chaque taille de grain un nouveau tissu vierge est utilisé. La durée de cette étape varie entre 5 min et 10 min selon l'état de la surface. Au cours de cette étape des contrôles visuels permettent de vérifier l'état de la surface. Lorsque l'état de la surface apparaît satisfaisant (aspect miroir, sans rayures visibles) la dernière étape est abordée. A cette fin, une solution aqueuse contenant une suspension de grains de silice nanométriques, non agglomérés par stabilisation en milieu alcalin est réalisée. Ce liquide est utilisé avec un support de polissage adapté (Fibres en viscose longues flockées tendres) afin d'obtenir les polissages de meilleure finition obtenus au cours de cette thèse (rugosités de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres).

Pour obtenir des surfaces de qualité intermédiaire, la dernière étape est supprimée et remplacée par un polissage à base de grains de diamants de différents diamètres ($2\ \mu\text{m}$, $1\ \mu\text{m}$ ou $0,75\ \mu\text{m}$) suivant le niveau de rugosité désiré.

Après le polissage, les surfaces sont nettoyées avec de l'acétone dans un bain à ultrasons pendant 15 min. Un contrôle final de l'état de surface est réalisé à l'aide d'un examen méticuleux au microscope confocal, ce qui permet aussi de caractériser la surface. Si l'état de surface n'est pas satisfaisant, la procédure de polissage est renouvelée à partir de la dernière étape.

2.3. Chimie de surface des échantillons et fluide

Les échantillons de base sont réalisés en aluminium de type Au4G, qui est le matériau utilisé pour réaliser les échangeurs d'Air liquide. La nature de l'échantillon est donc également une contrainte liée au projet NUCLEI puisque les mêmes échantillons doivent être testés également dans les conditions de l'application. Cette contrainte limite également le choix du fluide de travail, puisque peu de fluides sont compatibles chimiquement avec l'aluminium. Le fluide le plus adapté pour cette étude en conditions ambiantes est l'acétone qui au-delà de sa compatibilité chimique avec l'aluminium présente une température de saturation basse à la pression de 1 bar ($\sim 56^\circ\text{C}$) ce qui facilite grandement l'étude expérimentale. Par ailleurs, il possède l'avantage, par rapport à l'eau, de ne pas dissoudre de grandes quantités d'air, ce qui est un avantage majeur pour l'étude du déclenchement de l'ébullition. En effet, il ne faut pas que les germes d'air dissout amorcent la nucléation. D'autre part, l'acétone est stable chimiquement et disponible dans le commerce en très grande pureté ($> 99,98\%$).

Certaines surfaces ont été recouvertes par une couche mince, soit d'aluminium ultra pur (entre 300 nm et 500 nm d'épaisseur), soit d'oxyde de cérium CeO_2 (300 nm), soit d'hydrocarbure amorphe aCH (680 nm), soit de carbure de silicium amorphe aSiCH (540 nm). Ces revêtements ont été réalisés par le partenaire IREIS (groupe HEF) du projet NUCLEI dans le but d'étudier l'influence de la mouillabilité de la surface sur le phénomène d'ébullition. Deux techniques ont été utilisées pour obtenir les revêtements : la procédure de dépôt en phase vapeur (appelée méthode PVD) et la procédure de dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (appelée méthode PECVD ou PACVD).

La méthode PVD a été utilisée pour réaliser les couches d'aluminium pur et les couches de CeO_2 . Les couches minces d'aluminium ont été déposées par pulvérisation d'une cible d'aluminium 1050 sous argon et polarisation sous une tension continue de 50 Volts. L'échantillon relié à la masse constituant l'anode et la cible d'aluminium portée à un potentiel de - 50 volts, constituant la cathode. Les couches minces d'oxyde de cérium ont été obtenues par pulvérisation cathodique magnétron Haute Fréquence (RF ou Radio-Frequency) sous oxygène d'une cible de Cérium. Il n'y a pas eu de polarisation des échantillons pour ces dépôts.

La méthode PVD a été utilisée pour réaliser les couches d'hydrocarbure amorphe aCH et de carbure de silicium amorphe aSiCH (a = amorphe). La couche aSiCH a été élaborée à partir d'un précurseur TMS (Tetra Methyl Silane, $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$) et la couche aCH a été élaborée à partir d'un précurseur acétylène (C_2H_2). Dans les deux cas, les substrats (les échantillons Au4G) étaient polarisés par une tension DC pulsée à 250 kHz de 35 Volt.

Pour déterminer le caractère mouillant ou non du fluide, l'angle de contact d'une goutte posée sur la surface est mesuré (méthode de la goutte sessile). Pour cela une goutte de fluide (eau déminéralisée ou acétone pur) est déposée sur la surface à l'aide d'une seringue. L'angle de contact solide/liquide est mesuré à l'aide des images prise par une caméra rapide. Le milieu environnant est l'air ambiant. Dans le cas de l'acétone, l'évaporation est rapide : la mesure doit donc être réalisée durant les premières millisecondes, après que la goutte versée par la seringue se soit stabilisée sur la surface. Le tableau 2.1 présente l'angle de contact pour les différents revêtements avec l'acétone et l'eau.

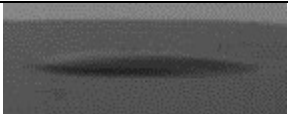
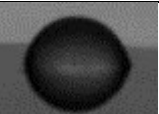
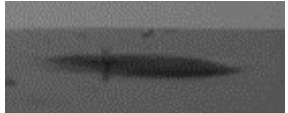
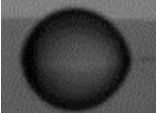
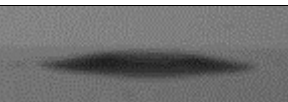
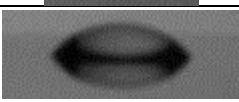
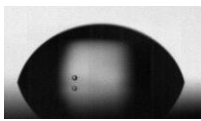
Dépôt	Acétone	Angle de contact avec l'acétone	Eau	Angle de contact avec l'eau
aCH		13°		82°
aSiCH		12°		79°
Au4G/ Nano réseau		15°		51°
CeO ₂		21°		70

Tableau 2.1 : Angle de contact pour différents dépôts avec l'acétone et l'eau

Que ce soit pour l'eau ou l'acétone, aucun angle de contact supérieur à 90° n'a été mesuré. Cependant, pour l'eau, les angles de contacts sont compris entre 50° et 80° ; les gouttes ont exactement la forme d'une portion de sphère et l'angle de contact est facilement mesurable. Dans le cas de l'acétone, les surfaces sont beaucoup plus mouillantes car la goutte s'étale sur la surface, son contour est irrégulier, pas toujours circulaire, l'angle de contact n'est pas facilement mesurable et il peut varier légèrement le long du contour. Les valeurs d'angles données dans le tableau, comprises entre 12° et 20°, sont donc des valeurs moyennes assez approximatives. Cependant, elles permettent de constater que l'acétone est toujours très mouillant pour tous ces revêtements. L'étude de l'influence de la nature chimique de la surface (mouillante ou non mouillante) initialement prévue dans cette thèse, n'a donc pas pu être réalisée. Seule l'étude de l'influence de la topographie de la surface est menée.

2.4. Caractérisation des surfaces

2.4.1. Mesures au microscope confocal

La microscopie confocale permet une mesure non intrusive du profil de la surface. Un faisceau lumineux cylindrique émis pour une source ponctuelle de lumière blanche traverse une lentille à aberrations chromatiques axiales. Après la traversée de la lentille, la lumière blanche converge le long d'une ligne constituée d'un continuum de points monochromatiques répartis le long de l'axe optique. Ces différents points constituent des images monochromatiques de la source.

Si une interface est présente dans l'espace de mesure, elle réfléchit la lumière reçue. Une analyse spectrométrique de la lumière réfléchie permet de reconstituer la forme du profil de la surface (figure 2.3 a). Le pic de l'énergie lumineuse reçue sur le spectromètre correspond à l'image monochromatique ponctuelle de la source en coïncidence avec l'interface. Ce principe de mesure non intrusif permet de déterminer avec une très grande précision le profil d'une surface.

Le microscope confocal utilisé a été développé par la société STIL SA. Il s'agit de la station de mesure MICROMESURE2 associée au contrôleur CHR 150. La lentille à aberrations chromatiques contrôlées est montée dans un crayon optique fixé sur une table motorisée suivant

2.4. Caractérisation des surfaces

la direction verticale z . Le champ de mesure est de $350\text{ }\mu\text{m}$ et la distance de travail du crayon est de $12,7\text{ mm}$. La précision de la mesure en altitude est de 60 nm . Le diamètre du faisceau lumineux est égal à $3\text{ }\mu\text{m}$. L'acquisition des profils est effectuée grâce au logiciel SurfaceMap, développé par la société STIL SA. La détermination des paramètres de rugosité de chaque surface peut être réalisée à l'aide du logiciel commercial SPIP.

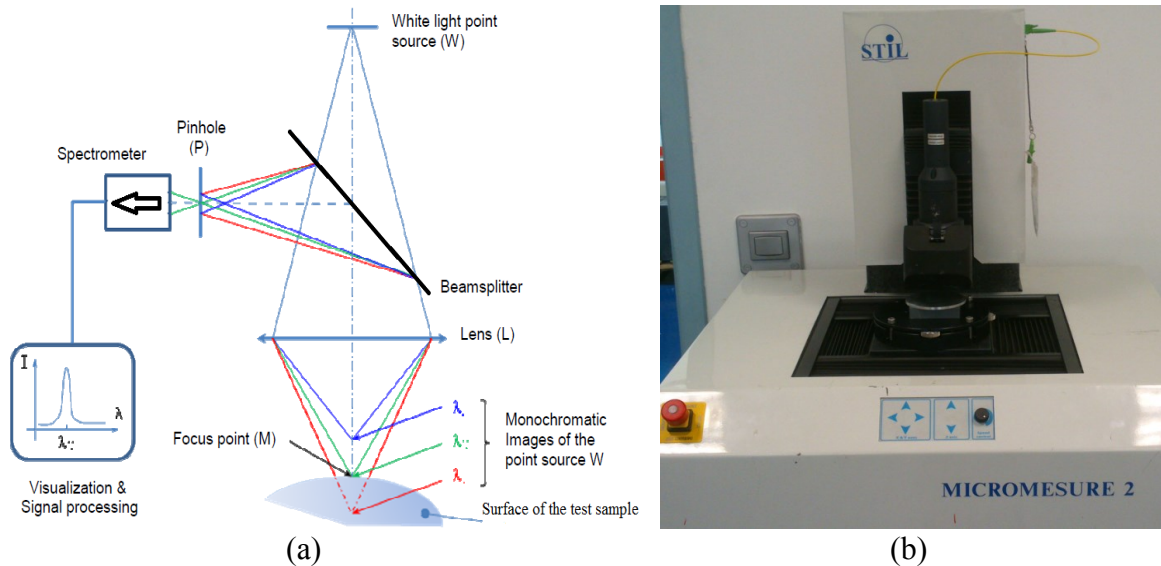


Figure 2.3 : Microscopie confocale : (a) Schéma de principe (b) Photo du système

2.4.2. Détermination de l'état de surface

Un balayage de la surface est effectué sur un grand nombre de lignes (750 lignes distantes de $20\text{ }\mu\text{m}$) afin d'obtenir une vision globale de l'état de la surface. Le pas de déplacement du capteur est de $5\text{ }\mu\text{m}$ selon x (direction de la ligne de balayage), $20\text{ }\mu\text{m}$ selon y (distance entre 2 lignes) comme montre la figure 2.4. Ainsi, il y a toujours la probabilité qu'un défaut soit présent entre 2 lignes, c'est une vraie limite de cette série de mesure. Quelques échantillons ont été balayés avec un pas selon x de $5\text{ }\mu\text{m}$ et y de $5\text{ }\mu\text{m}$, mais leur temps de balayage est autour de 15 h . Pour optimiser le temps nécessaire pour la préparation et la caractérisation des échantillons (polissage, nettoyage et analyse par microscope confocal), pour un grand nombre d'échantillons (proche 100), le pas selon y a été augmenté jusqu'à $20\text{ }\mu\text{m}$; le temps nécessaire pour balayer la zone d'étude est alors autour de $1\text{ h }30$.

Le logiciel SPIP donne les paramètres de profils à partir de ces mesures (R_a , RMS , etc.) sur chacune des lignes et sur la surface totale balayée. Cependant, le logiciel détermine ces paramètres par rapport à une altitude moyenne ce qui suppose que la surface soit parfaitement plane. Dans le cas où la surface n'est pas parfaitement plane (cas réel), une correction doit être réalisée pour obtenir les vrais paramètres caractéristiques de la rugosité de la surface.

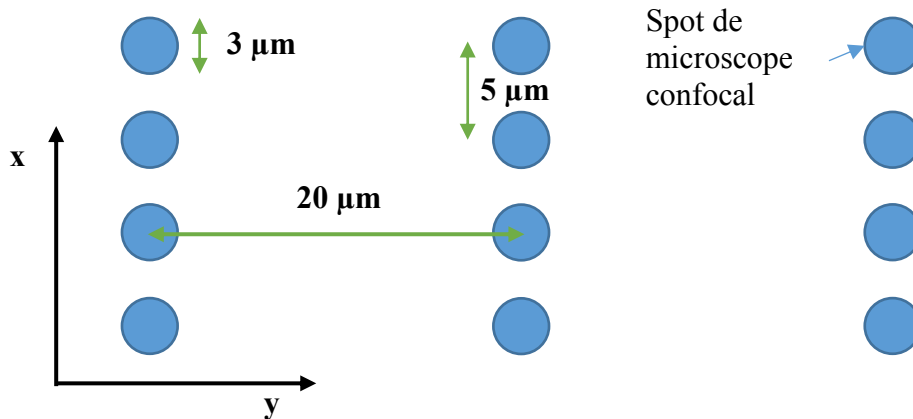


Figure 2.4 : Carte de balayage

Pour cela une analyse a été faite à l'aide du logiciel MATLAB en suivant la procédure suivante :

1. Les données numériques des profils obtenus avec le microscope confocal sont importées dans l'espace de travail de Matlab.
2. Pour chaque profil, les coordonnées de la position moyenne du profil sont déterminées à l'aide de polynômes d'ordre 6. Ce profil moyen est défini comme niveau de référence (altitude $z = 0$). Ceci permet de rendre la surface « plane » numériquement.
3. Pour chaque point de mesure, les écarts d'altitude avec le niveau de référence sont déterminés. Le profil de la surface est reconstitué sur une surface fictive plane idéale.
4. A partir de ces écarts, les vrais paramètres caractéristiques de surface (RMS, etc.) sont alors calculés, d'abord pour chacune des lignes, ensuite pour toute la surface balayée.
5. Enfin, l'histogramme de la répartition des « creux » et des « pics » par rapport à ce niveau moyen est tracé, ce qui permet d'avoir une vision synthétique et plus complète de l'état de la surface.

Cette procédure a permis de caractériser l'état de surface de chacun des échantillons. Par exemple, la figure 2.5 (a) représente le profil (échantillon noté S_{Ld7}) obtenu sur une ligne d'un échantillon poli. Ce relevé nous montre que la surface n'est pas parfaitement plane, la ligne moyenne des rugosités obtenue par lissage à l'aide d'un polynôme d'ordre 6 (en rouge sur la figure) n'est pas horizontale. Sur une ligne de longueur 16 mm, le défaut de planéité (écart entre les cotes maximale et minimale de la ligne rouge) n'est que de $1\ \mu\text{m}$. Globalement, la planéité de la surface est donc satisfaisante car elle atteint les limites des performances du matériel de polissage. Cependant cet écart est du même ordre de grandeur que la taille des rugosités, une correction doit donc être effectuée. La figure 2.5 (b) représente le profil fictif obtenu en rendant la surface plane. Le niveau zéro est donné par la position du polynôme d'interpolation (représenté en rouge sur la figure). Sur cet échantillon, qui correspond à une surface rugueuse, la taille des rugosités (écart avec la ligne rouge) varie entre $-2\ \mu\text{m}$ (creux) et $+2\ \mu\text{m}$ (crêtes). Le RMS calculé à partir d'un profil non corrigé donne une valeur incorrecte car les écarts sont calculés à partir du niveau moyen de la surface non plane.

2.4. Caractérisation des surfaces

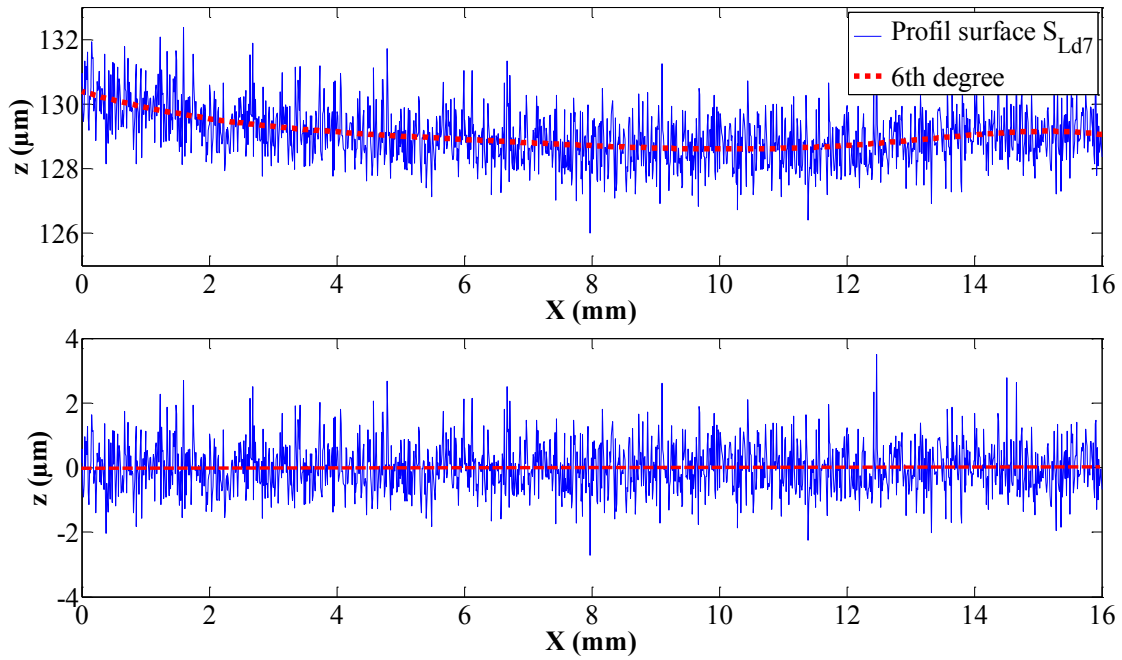


Figure 2.5 : Exemple de profil avant et après correction numérique de la planéité

Une autre correction majeure est apportée pour déterminer correctement le paramètre RMS. Mchale et Garimella (2013) et Jones et al. (2009) ont montré que la mesure des paramètres moyens de rugosité (R_a et RMS) est insuffisante pour caractériser le rôle de la surface dans l'ébullition. L'analyse au microscope confocal révèle, en effet, la présence de défauts, sur certains échantillons que plusieurs polissages successifs n'ont pu éliminer. Ces défauts sont constitués d'orifices de grand diamètre (de l'ordre de $5\text{ }\mu\text{m}$, distance entre deux centres de spots lumineux consécutifs) et de grande profondeur (figure 2.6). Il est donc probable qu'ils préexistaient au sein même de l'élément en aluminium. Comme la présence de sites favorise l'ébullition, il nous a paru intéressant de réaliser des essais avec ces échantillons pour les comparer avec les surfaces sans imperfections. Cependant, la présence de telles imperfections fausse la détermination des paramètres caractéristiques. Pour calculer les grandeurs comme le RMS, nous avons éliminé les mesures de hauteurs liées aux imperfections. Ainsi, les échantillons sont caractérisés à la fois par leur RMS en absence d'imperfections et par le nombre d'imperfections que ceux-ci possèdent. Le RMS non corrigé donne une idée très imparfaite de l'état moyen de la surface, et cela même si le nombre de défauts est faible. Par exemple, la surface S_{Ld1+} possède 10 défauts et a un RMS non corrigé égal à 1100 nm . La valeur corrigée du RMS chute à 95 nm lorsque les défauts ne sont pas pris en compte, ce qui montre la nécessité de séparer les deux caractéristiques de l'état de surface.

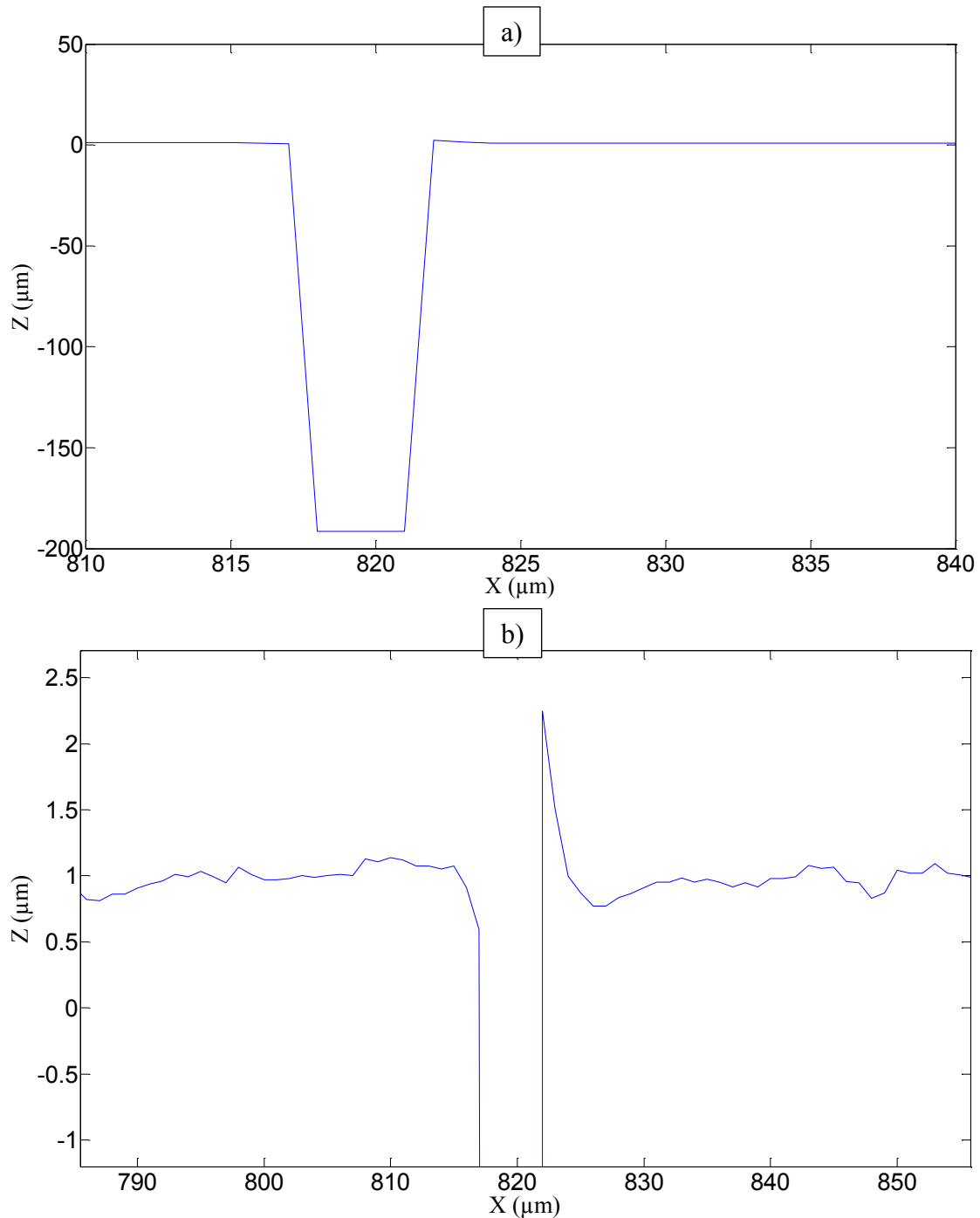


Figure 2.6 : Exemple d'un défaut détecté, a) vue globale, b) vue zoomée

2.4.3. Bilans des échantillons d'essais

Plus d'une centaine d'échantillons en aluminium Au4G ont été fabriqués par l'atelier du CETHIL et l'atelier du LHC. La phase de polissage est longue ; parfois elle doit être répétée à plusieurs reprises afin de parvenir à l'état de surface désiré. A chaque polissage, l'état de surface est vérifié d'abord visuellement, puis au microscope confocal lorsque la surface a l'aspect d'un miroir, sans défauts apparents. Durant la procédure de polissage, quelques échantillons se percent du fait de la finesse de l'épaisseur de métal séparant le fond de la rainure et la face supérieure. La nécessité de limiter les pertes thermiques nous a conduits à réaliser une épaisseur

2.4. Caractérisation des surfaces

très fine, mais cette finesse affecte la robustesse de l'échantillon. Les autres difficultés rencontrées sont liées à l'environnement, car les procédures n'ont pas été effectuées dans une salle blanche (présence de poussières), à la technique de polissage utilisant un plateau rotatif (les particules de métal arrachées peuvent, après rotation, revenir sous la surface et y créer des nouvelles rayures) et à la qualité du métal qui peut comporter des défauts dans son volume (micro espaces vides).

Un nombre limité d'échantillon (20 parmi 100) a été réussi. Initialement, nous les avons caractérisés sous le nom de surfaces « nano lisses sans défauts », « lisses avec défauts » et surfaces « rugueuses ». Nous avons choisi d'appeler nano lisses les surfaces dont le RMS est inférieur à 60 nm (limite de résolution du microscope), lisses des surfaces dont le RMS est inférieur à 1 μm et rugueuse les surfaces dont le RMS est supérieur à 1 μm . A ce stade, cette dénomination est arbitraire. Une classification incluant des limites bien définies ne pourra être proposée qu'à partir de l'étude du comportement des surfaces lorsqu'un nombre suffisant d'essais auront été effectués dans différentes conditions (mouillabilité, pression, etc.).

Le tableau 2.2 donne les caractéristiques des échantillons réalisés. La largeur W de la rainure en face arrière, le RMS, le nombre de défauts et une estimation de leur rayon sont présentés. Sur le nom de 3 échantillons, le symbole + indique que la surface a été recouverte après polissage d'une couche d'aluminium ultra pur.

Selon le type d'études présentées en chapitre 4, un histogramme des altitudes regroupant les échantillons comparés est présenté (figures 2.7, 2.8 et 2.9). Ces histogrammes montrent une distribution d'altitudes plutôt symétrique avec anomalie dans la partie positive qui correspond à la présence de poussière. Cependant, les échantillons sont nettoyés à l'acétone avant de commencer le test d'ébullition, ce qui permet de supprimer ces poussières. Les échantillons regroupés sur chacune des figures sont les suivants :

- La figure 2.7 regroupe trois types d'échantillons : S_{N1} (nano lisse sans défaut), S_{Ld1+} , S_{Ld2} et S_{Ld3} (lisse avec défauts) et S_{R1} (rugueuse).
- La figure 2.8 présente cinq surfaces dont la rugosité varie d'une surface à autre dans le but d'étudier l'effet de rugosité sur le transfert thermique par ébullition nucléée.
- La figure 2.9 montre les altitudes pour la surface $S_{L,aCH1}$ avant et après dépôt. Les courbes sont presque confondues, sauf une anomalie dans la partie avant dépôt (présence de poussières) qui a bien été nettoyée avant la procédure de dépôt. La figure présente également les altitudes mesurées pour la surface $S_{L,aSiCH}$ (dépôt aSiCH). Pour réaliser ce dernier profil, un pas de balayage deux fois plus fin a été utilisé selon les deux directions avec le microscope confocal (pas selon $x = 3 \mu\text{m}$, pas selon $y = 5 \mu\text{m}$).

CHAPITRE 2 : PREPARATION ET CARACTERISATION DES SURFACES D'EBULLITION

N°	W (mm)	RMS (filtré total) nm	Numéro de défauts	Rayon de défaut μm	Nature de l'échantillon
S _{N1}	5	< 60 nm	-	-	Nano lisse sans défaut
S _{N1+}	5				
S _{N2+}	5				
S _{N3}	10				
S _{Ld1+}	10	95	10	5 à 25	Lisse avec défaut
S _{Ld2}	5	145	21	5 à 25	
S _{Ld3}	5	196	23	5 à 25	
S _{Ld4}	5	231	5		
S _{Ld5}	5	365	2		
S _{Ld6}	5	740	2	10	
S _{Ld7}	5	758	19		
S _{R1}	5	5166	360	5 à 40	Rugueuse
S _{NR1}	10	< 60 nm	-	-	Nano structurée (réseau)
S _{NR2}	10				
S _{NR3}	10				
S _{L,aCH1}	5	120	11		Lisse avec défaut, revêtement aCH
S _{L,aCH2}	5	162	1		
S _{L,aSiCH}	5	457	11	-	Lisse avec défaut, revêtement aSiCH
S _{C1}	10	-	18	7 à 20	Lisse avec cavités artificielles
S _{C2}	10	-	54	7 à 16	

Tableau 2.2 : Caractéristiques de l'état des surfaces d'essais

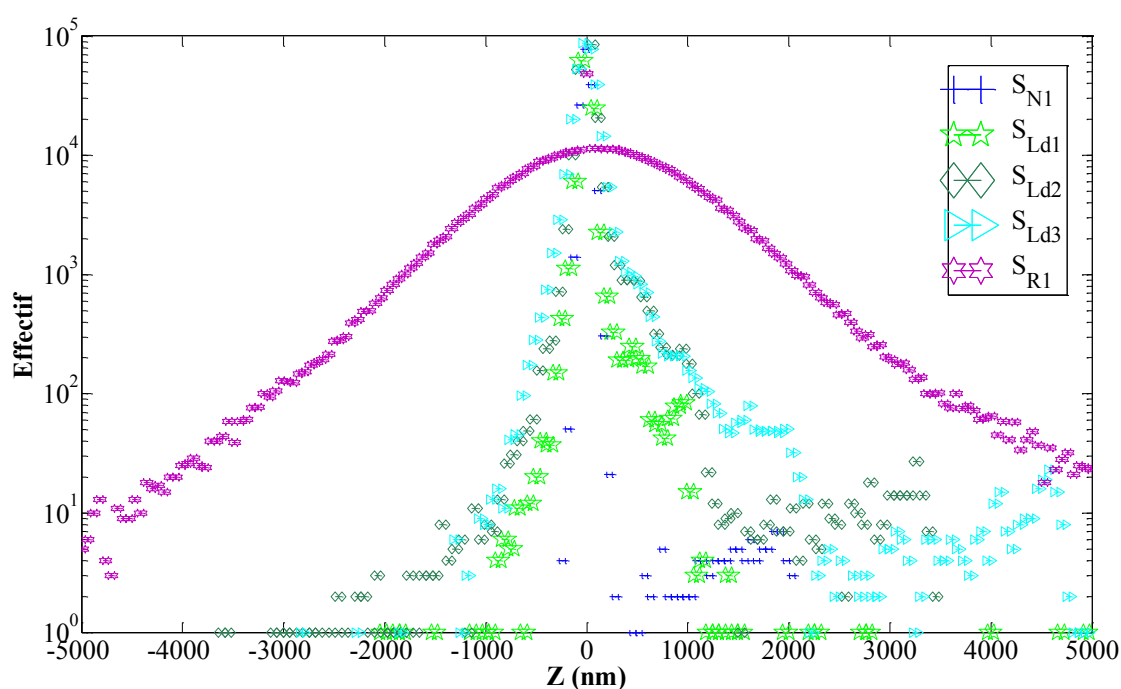


Figure 2.7 : Histogramme d'altitudes corrigées pour trois types d'échantillons : ultra lisse sans ou avec défauts et rugueux

2.5. Echantillons avec cavité artificielle

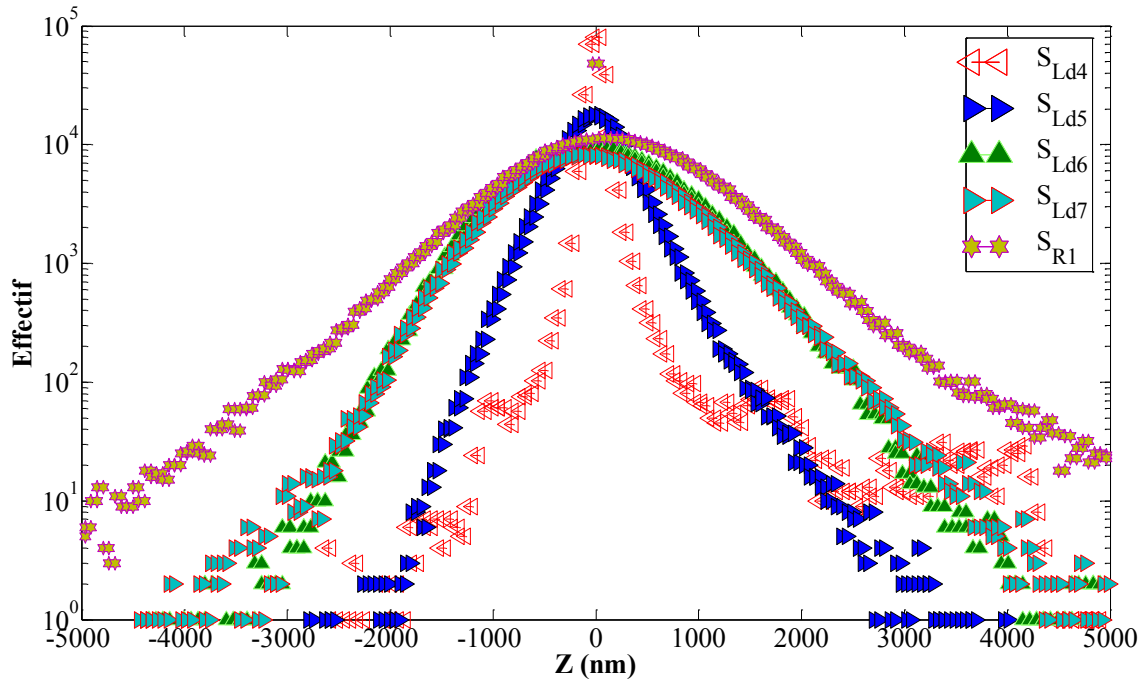


Figure 2.8 : Histogramme d'altitudes corrigées pour six surfaces de rugosités différentes

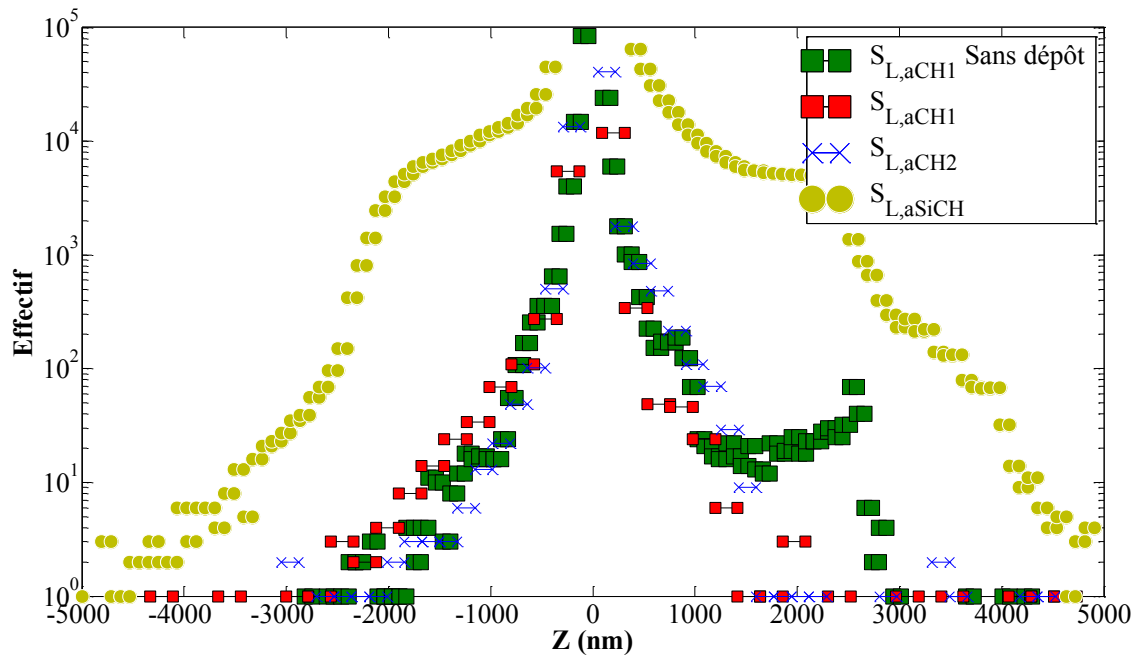


Figure 2.9 : Histogramme d'altitudes corrigées pour deux surfaces avec dépôt chimique aCH et aSiCH

2.5. Echantillons avec cavité artificielle

Des cavités artificielles ont été fabriquées par Manutech sur des surfaces Au4G nano lisses dont le RMS est de l'ordre de 60 nm. Un Laser femto seconde a été utilisé pour percer les trous dans les échantillons. La figure 2.10 présente la cartographie des cavités sur les deux échantillons S_{C1} (18 cavités) et S_{C2} (58 cavités) repérés à l'aide du microscope confocal dans la

zone d'étude. Une analyse précise des cavités est menée avec le microscope confocal, après localisation les coordonnées (x,y) de chaque cavité. Le mode de balayage pas à pas asservi en z est utilisé pour obtenir la forme complète de la cavité. Le pas selon x et y est de 2 μm . Pour l'échantillon S_{C1} , une analyse complète pour toutes les cavités a été menée, ce qui a représenté plusieurs jours de mesures pour 18 cavités avec le microscope confocal (voir annexe 10). La figure 2.11 montre un exemple de géométrie 3D d'une cavité artificielle. La profondeur des cavités varie entre 7 μm et 20 μm . Les ouvertures des cavités ont une forme assez quelconque comme le montre la figure 2.12, les diamètres variant entre 10 μm et 20 μm . Les cavités de l'échantillon S_{C2} sont assez similaires à celle de l'échantillon S_{C1} . Deux cavités ont une profondeur supérieure à 30 μm et une ouverture d'environ 15 μm .

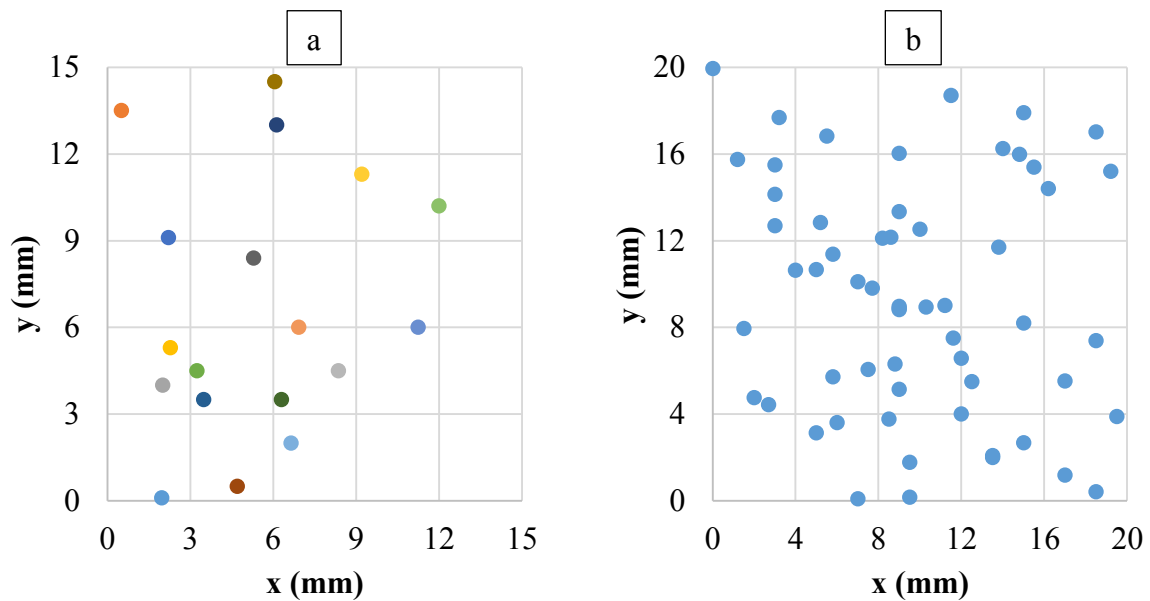


Figure 2.10 : Distribution des cavités ; a) échantillon S_{C1} b) échantillon S_{C2}

2.5. Echantillons avec cavité artificielle

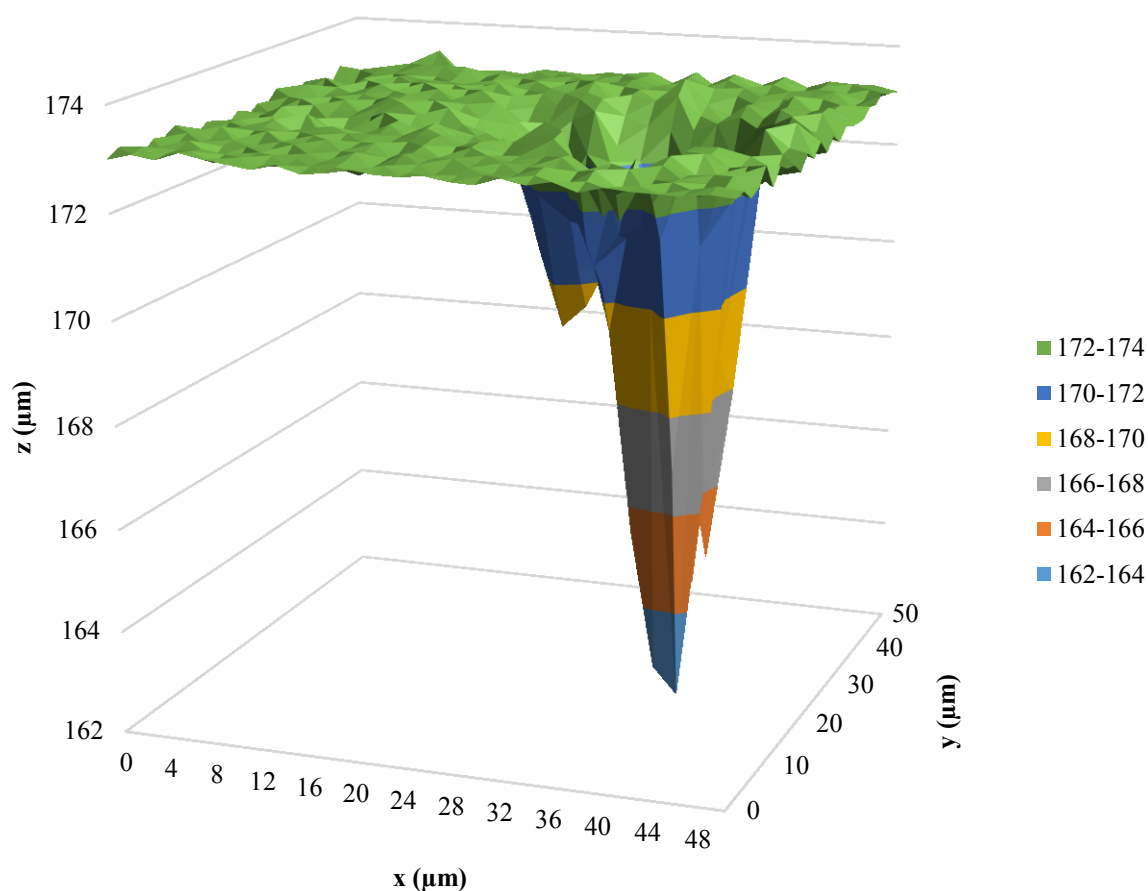


Figure 2.11 : Exemple de la forme d'une cavité réalisée sur l'échantillon SC1

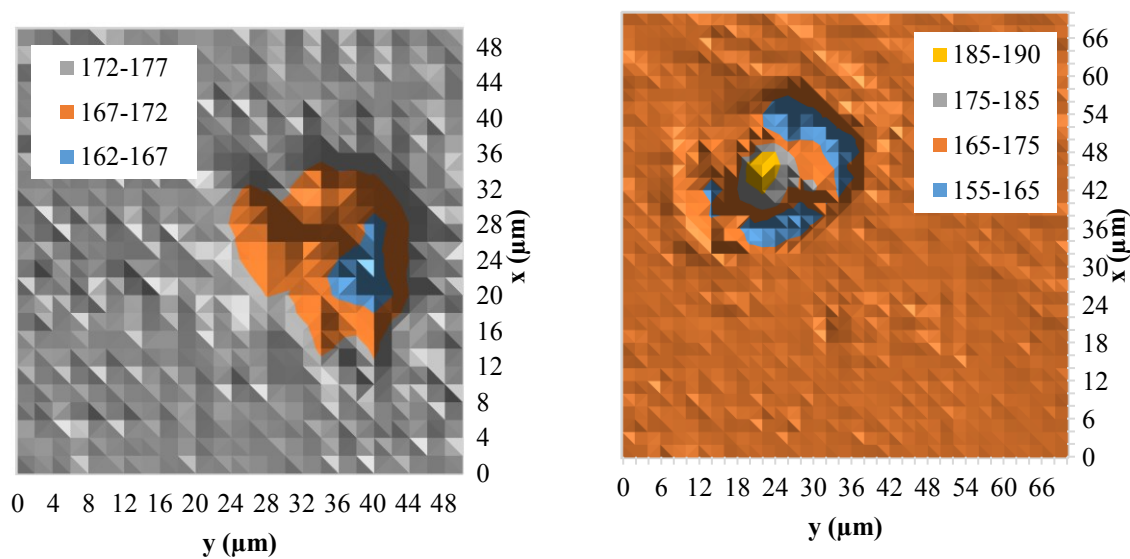


Figure 2.12 : Exemple d'ouverture d'une cavité

2.6. Echantillons avec réseaux de diffraction

Après polissage et vérification de l'état nanométrique de la surface, quelques échantillons ultra-lisses et sans défauts sont sélectionnés afin d'y graver un réseau périodique sur la zone d'ébullition. Ces réseaux seront utilisés pour les mesures par plasmon de surface.

Deux techniques ont été utilisées : aluminium gravé directement sur la surface ou dépôt d'aluminium sur un réseau de résine gravé.

2.6.1. Aluminium gravé

Cette technique consiste à recouvrir certaines parties de la surface par une couche périodique de résine. Les zones d'aluminium non protégées sont gravées par attaque chimique. A la fin du procédé, la résine est éliminée. Deux techniques de gravure ont été utilisées : la gravure humide (par voie chimique) et la gravure sèche. La gravure humide se réalise par attaque chimique à l'aide de solutions liquides qui réagissent avec le matériau à éliminer uniquement et pas avec la résine utilisée. Dans le cas de l'aluminium, les produits chimiques utilisés sont : HNO_3 , CH_3COOH , H_3PO_4 et H_2O . Les étapes sont indiquées sur la figure 2.13. L'échantillon est d'abord poli et nettoyé, la surface doit être ultra-lisse et sans défauts. La deuxième étape consiste à recouvrir la surface d'un dépôt d'aluminium pur. Cela est réalisé par le partenaire IREIS du projet. Les étapes suivantes sont réalisées par le laboratoire Hubert Curien. Durant la troisième étape, une résine est déposée sur la couche d'aluminium. L'étape 4 consiste en une attaque locale de la résine, par insolation périodique (interférences lumineuses) selon un réseau périodique utilisant un masque. La longueur d'onde de la lumière utilisée pour réaliser les interférences est de 442 nm. A la cinquième étape, le dépôt d'aluminium pur est attaqué par les produits chimiques dans le but de réaliser la gravure périodique. Puis, la surface est rincée, nettoyée et les traces sont éliminées.

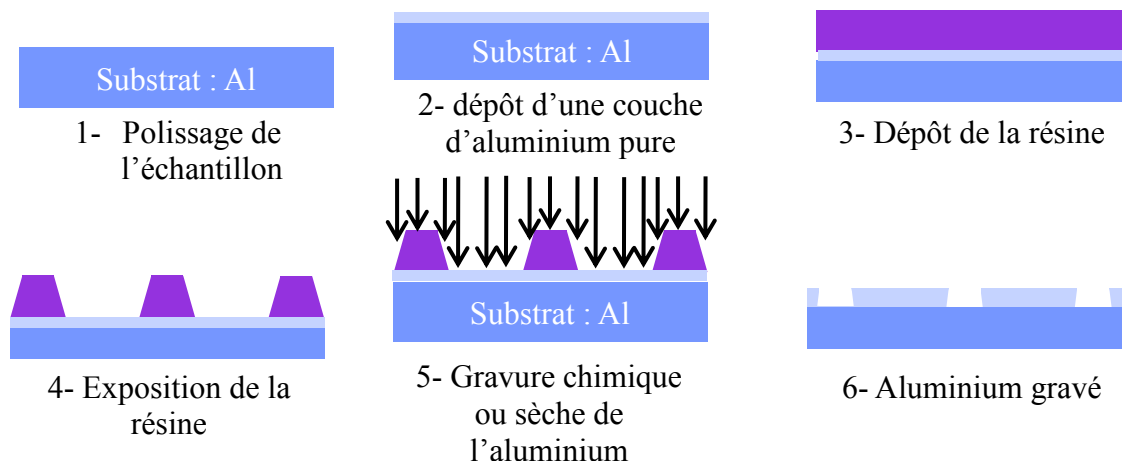


Figure 2.13 : Les étapes de fabrication du réseau sur l'aluminium

L'état du réseau est vérifié à l'aide d'un microscope électronique à balayage (SEM) du laboratoire Hubert Curien. La figure 2.14 donne un exemple de résultat obtenu. L'anisotropie de la gravure est causée par l'aspect inhomogène de la résine.

2.6. Echantillons avec réseaux de diffraction

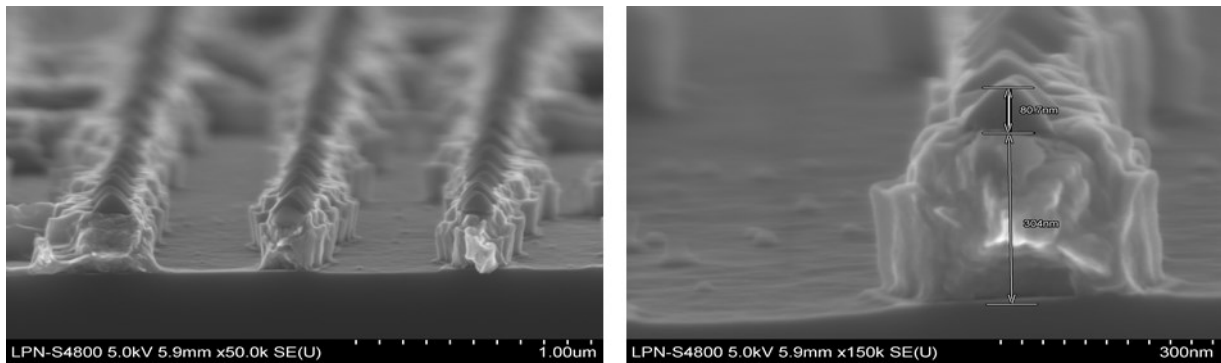


Figure 2.14 : Caractérisation du réseau fabriqué par voie sèche

2.6.2. Dépôt d'aluminium sur résine

Cette méthode consiste à réaliser un réseau périodique à l'aide d'une résine déposée sur l'échantillon, puis à recouvrir l'ensemble par un dépôt d'aluminium pur. Cette technique a pour inconvénient d'insérer des fines couches d'isolant entre l'échantillon et la surface. Mais, elle permet de réaliser des réseaux très réguliers, sans défauts, avec une couche d'aluminium pur très homogène. La présence de résine n'a pas d'incidence sur le signal plasmon.

Là encore, deux techniques ont été testées. Les deux premières étapes (polissage et dépôt d'aluminium pur) sont identiques à celles de la technique « aluminium gravé ».

Dans la première technique (figure 2.15), une fine couche de résine est déposée sur la surface (étape 3). Un réseau est gravé sur la résine par photolithographie (étape 4). Enfin une fine couche d'aluminium est déposée sur le réseau ainsi formé (étape 5). Le dépôt d'aluminium ne change pas ni la nano structure, ni la rugosité.

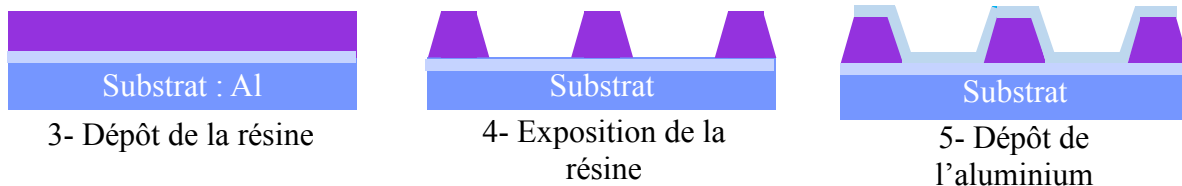


Figure 2.15 : Fabrication de réseau sur la résine par photolithographie

La deuxième technique, appelée nano impression (figure 2.16) diffère pour l'étape 4 qui consiste à graver le réseau sur l'échantillon recouvert de la résine, à l'aide d'un moule (figure 2.14). La figure 2.17 montre l'état de surface du moule et un profil de surface. Ce moule a une période de 760 nm et une profondeur de 50 nm. On obtient ainsi un réseau en résine sur la surface métallique (étape 5). L'étape finale 6 consiste à recouvrir le réseau par un dépôt d'aluminium pur.

CHAPITRE 2 : PREPARATION ET CARACTERISATION DES SURFACES D'EBULLITION

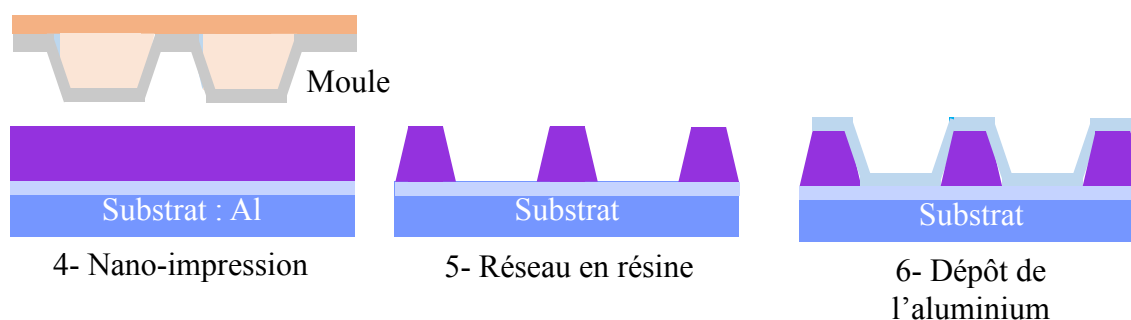


Figure 2.16 : Fabrication de réseau sur la résine par nano-impression

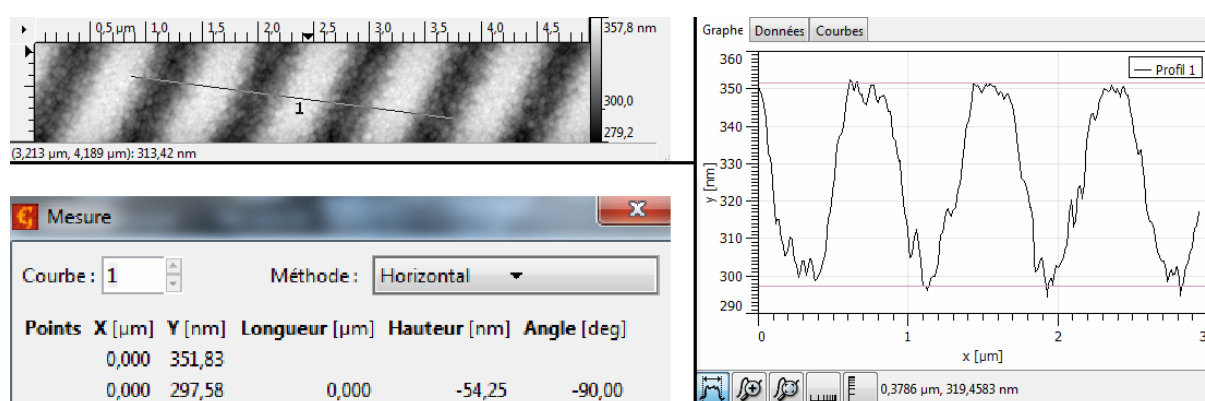


Figure 2.17 : Caractérisation du moule utilisé lors de la procédure de nano-impression

Dans ce projet, beaucoup d'essais ont été réalisés par les 4 méthodes décrites ci-dessus, afin d'obtenir un réseau idéal sans défauts et homogène. Les échantillons contenant des défauts lors de la fabrication (tels que par exemple, l'échantillon de la figure 2.18) ne sont pas présentés dans ce mémoire. La dernière technique, utilisant un moule, a permis de réaliser trois échantillons idéaux d'un point de vue optique et état de surface (réseau homogène et sans défaut local). Ces échantillons ont été dénommés S_{NR1} , S_{NR2} et S_{NR3} .

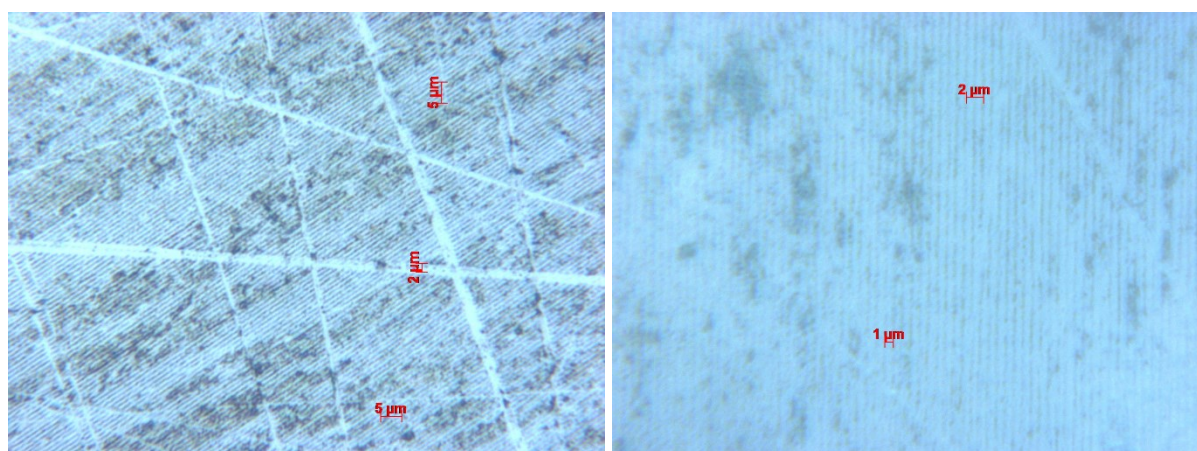


Figure 2.18 : Photo par microscope optique, 50 X à gauche et 100 X à droite

2.6. Échantillons avec réseaux de diffraction

2.6.3. Caractérisation des réseaux

Les échantillons utilisés pour graver les réseaux, ont initialement une surface ultra lisse avec un RMS (filtré) inférieur à 60 nm. Après sa fabrication, le nano-réseau est caractérisé à l'aide d'un microscope à force atomique (le microscope confocal ne permet pas une telle mesure car la limite de résolution verticale de ce microscope est de l'ordre de la profondeur du réseau). Comme le montre la figure 2.19 (voir annexe 10 pour les autres échantillons), les réseaux sont homogènes, périodiques, et très réguliers. La période est de 760 nm et la profondeur varie entre 50 à 70 nm (figure 2.20).

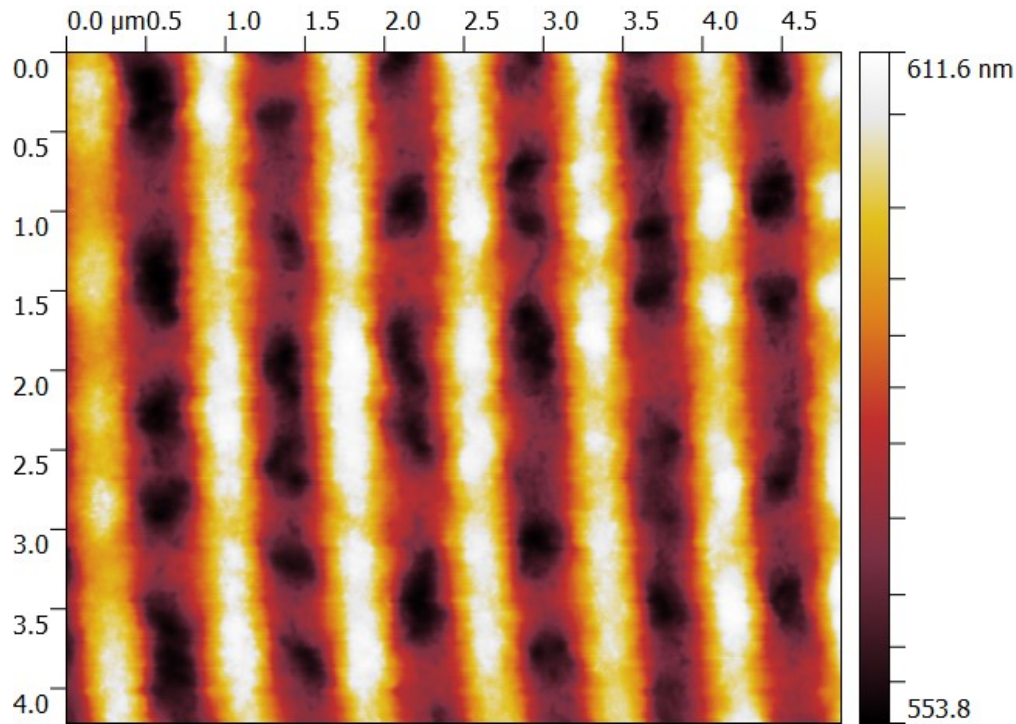


Figure 2.19 : Caractérisation de réseau par AFM pour la surface S_{NRI}

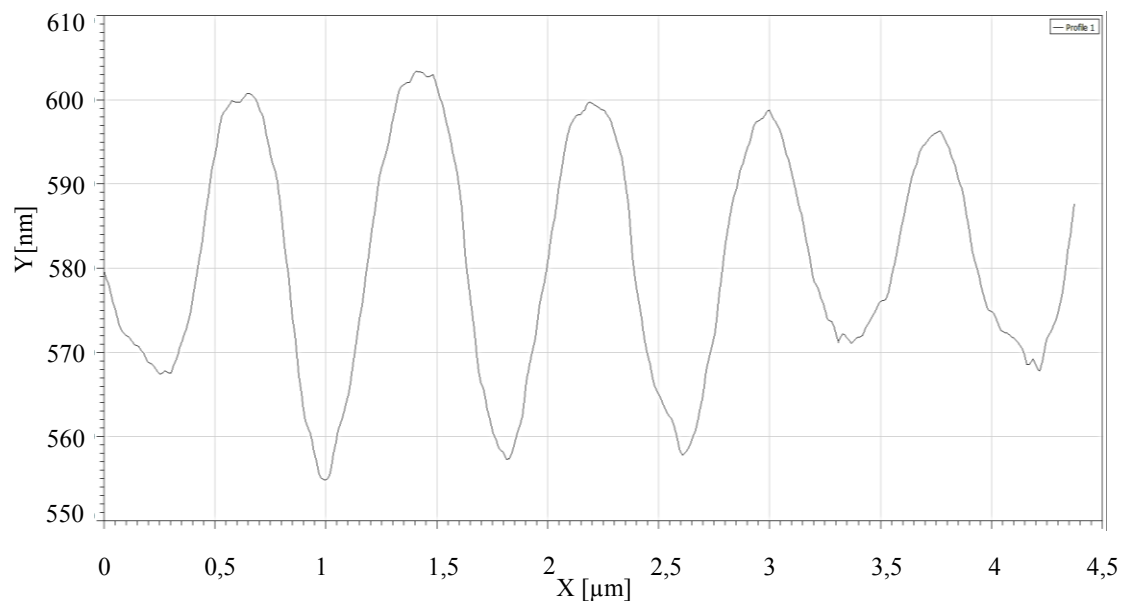


Figure 2.20 : Exemple de profil de la surface avec nanoréseau mesuré par AFM

2.7. Conclusion

Des échantillons adaptés pour l'étude du déclenchement de l'ébullition ont été réalisés. Pour cela, la géométrie des échantillons a été conçue pour éviter la formation de bulles parasites à la périphérie. Une procédure de polissage a été définie pour réaliser des surfaces ultra-lisses de rugosité contrôlées. Cependant, des défauts préexistants au sein du métal AU4G, qui n'ont pas pu être éliminés, sont parfois apparus. L'influence de ces défauts sur l'ébullition sera donc étudiée car ces défauts jouent un grand rôle dans l'ébullition. Une procédure précise d'analyse de l'état de la surface a été définie. Un balayage fin, de la zone soumise à l'ébullition a été réalisé, à l'aide d'un microscope confocal. La méthode de balayage a permis de détecter et de préciser les défauts de la surface. D'autres contrôles de surfaces ont été réalisés avec le microscope électronique à balayage (SEM) du laboratoire Hubert Curien. Les paramètres caractéristiques globaux de l'état de surface (RMS, etc.) ont été déterminés. Pour obtenir des valeurs non faussées, la planéité de la surface a été corrigée numériquement, et les défauts ont été soustraits. Pour obtenir une vue synthétique de la dispersion de la rugosité, des histogrammes de niveau des pics et des creux ont été tracés. Environ une centaine d'échantillons a été réalisée, à la fois au CETHIL et au laboratoire Hubert Curien.

Afin d'étudier l'influence de la mouillabilité sur l'ébullition, certains échantillons ont été recouverts d'une couche nanométrique d'aluminium ultra pur, d'oxyde de cérium, d'hydrocarbure amorphe ou de carbure de silicium amorphe, par le laboratoire IREIS de HEF. Cependant, des mesures d'angle de contact (méthode de la goutte sessile) n'ont révélé aucune modification significative de la mouillabilité : avec le fluide utilisé pour les essais (acétone) les surfaces demeurent toujours mouillantes.

Pour réaliser les mesures par plasmon de surfaces, des réseaux de diffraction monodimensionnels doivent être gravés sur la surface. Quatre méthodes de gravure ont été testées afin d'obtenir des réseaux réguliers. La méthode de dépôt par résine utilisant un moule (nano-impression) a été retenue : elle permet d'obtenir un réseau satisfaisant avec les caractéristiques attendues. La gravure a été assurée par le laboratoire Hubert Curien.

CHAPITRE 3 : DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

Ce chapitre présente les dispositifs expérimentaux utilisés et la procédure suivie pour étudier l'ébullition sur des surfaces lisses de rugosité contrôlée, plus simples à analyser en théorie, que les surfaces rugueuses ou complexes généralement présentées dans la littérature. L'objectif est de poursuivre et compléter la compréhension actuelle du phénomène d'ébullition. Une attention particulière sera portée sur le déclenchement de l'ébullition. Dans ce but, une nouvelle méthode a été testée, la détection éventuelle de l'existence d'un noyau de vapeur préexistant par plasmon de surface. Nous bénéficions pour cela de l'expérience du laboratoire Hubert Curien dans ce domaine. Ce travail devra donc, en particulier, nous dire si une telle méthode peut être appliquée pour atteindre cet objectif. A défaut, si le résultat est négatif, les possibilités d'utilisation des plasmons dans le domaine de la thermique seront analysées.

3.1. Bancs expérimentaux

Pour cette étude, deux bancs expérimentaux ont été développés. Un banc expérimental adapté à la visualisation de l'ébullition avec une caméra rapide et un banc expérimental adapté à l'étude de plasmon de surface. Le premier banc est utilisé pour tracer les courbes d'ébullition, mesurer les surchauffes de déclenchement de la nucléation et étudier le phénomène d'hystérésis. Une caméra rapide est utilisée afin d'analyser le phénomène d'ébullition en corrélation avec les courbes obtenues. Le deuxième banc a été conçu spécialement pour l'étude du déclenchement de la nucléation. Une technique basée sur l'utilisation de plasmon de surface est testée. Les méthodes de détection par plasmon de surface permettent de détecter la présence de particules de taille nanométrique à la surface d'objets métalliques. Ces méthodes sont-elles utilisables pour l'ébullition ? Peuvent-elles fournir de l'information ? Peuvent-elles permettre de détecter la formation éventuelle de noyaux de vapeur bien avant l'apparition visuelle de la première bulle ? C'est pour répondre à ces questions que le second banc a été réalisé. Les enceintes principales des deux bancs sont de géométries différentes, mais elles ont en commun les éléments suivants : une résistance électrique pour chauffer l'échantillon en aluminium et fournir le flux thermique au fluide, un fluxmètre pour mesurer les pertes thermiques sous l'autre face de la résistance, un capteur de pression, des thermocouples pour mesurer la température de l'échantillon et la température de saturation du liquide, une pompe à vide pour réaliser un vide primaire dans l'enceinte, un générateur de tension pour alimenter la résistance chauffante et une centrale d'acquisition relié à un micro-ordinateur.

3.1.1. Dispositif expérimental adapté à la visualisation

La figure 3.1 présente le dispositif expérimental. Il se compose principalement d'une enceinte en verre et d'un support en aluminium. L'enceinte est un réservoir cylindrique transparent double paroi. L'enveloppe externe est de fond plat et de diamètre 190 mm. Dans

cette enveloppe circule de l'eau provenant d'un bain thermostaté permettant de contrôler la pression et la température du fluide de travail dans l'enceinte (température de saturation maintenue à $\pm 0,2$ °C). Deux torions (diamètre 14 mm) en verre assurent sa liaison au bain thermostaté, via un tuyau flexible. L'enveloppe interne est de fond rond, de diamètre 170 mm et de capacité 2 litres. C'est dans cette enceinte que s'effectue le phénomène d'ébullition. Cette enceinte permet de visualiser le phénomène d'ébullition par caméra rapide.

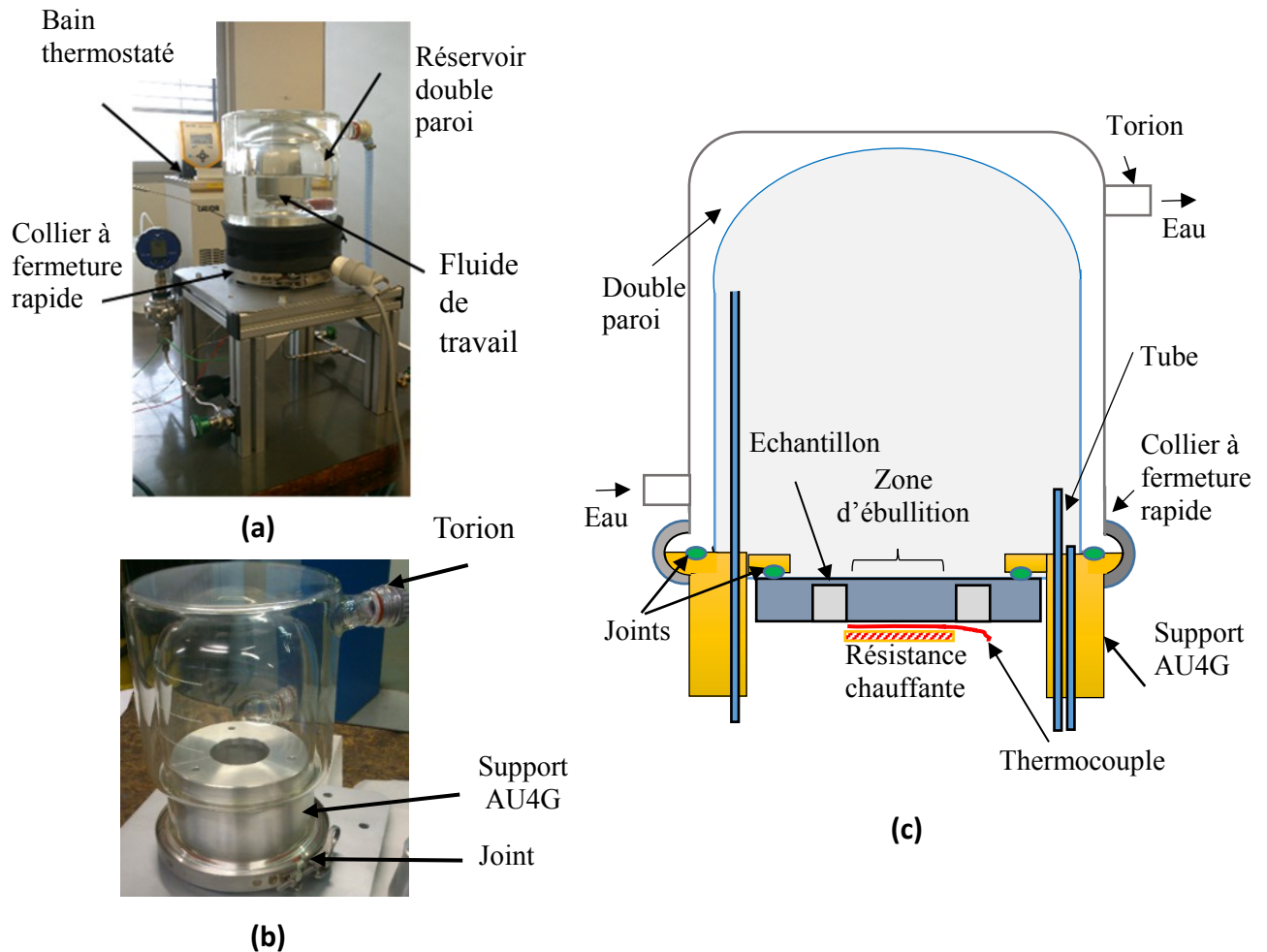


Figure 3.1 : a) Photographie du dispositif expérimental ; b) Photographie de l'enceinte ; c) Schéma de l'enceinte avec les éléments principaux

Le réacteur en verre est hermétiquement fermé sur le support en AU4G à l'aide d'un joint torique PTFE compatible chimiquement avec le fluide utilisé (acétone ultra pure) et d'un collier de fermeture rapide. Le support en AU4G est traversé par trois tubes. L'un des tubes est relié au capteur de pression pour mesurer la pression dans le fluide. Le second tube est traversé par un thermocouple utilisé pour relever la température de saturation. Le troisième tube est relié à la pompe à vide primaire pour la mise au vide de l'enceinte. Ce tube permet aussi de réaliser la vidange et le remplissage de l'enceinte en acétone. Pour limiter les pertes thermiques, le support en AU4G est maintenu à la température de saturation du fluide, à l'aide d'un cordon chauffant.

3.1. Bancs expérimentaux

L'échantillon d'essai est maintenu contre le support à l'aide d'un système de fixation constitué d'un piston isolant en Peek ($\lambda = 0,25 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) d'un ressort et d'un support en Nylon ($\lambda = 0,25 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$). La figure 3.2 présente le schéma de ce montage.

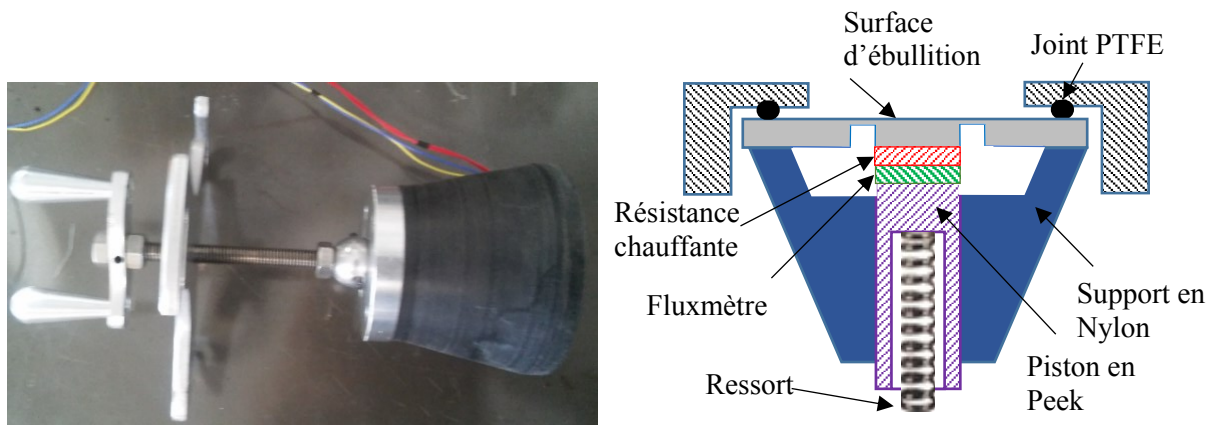


Figure 3.2 : Système de fixation par piston ; a) photographie du piston ; b) schéma montrant le piston insérant la résistance et le fluxmètre contre l'échantillon

Ce système permet de positionner rapidement l'échantillon. Il permet également d'exercer sur l'échantillon une force de poussée bien contrôlée, suffisante pour assurer l'étanchéité, mais pas trop élevée afin d'éviter la déformation de l'échantillon fragilisé par la présence de la rainure. L'étanchéité entre l'échantillon et le support Au4G est assurée par un joint torique en Téflon. Entre le piston et l'échantillon sont insérés la résistance chauffante et un fluxmètre pour mesurer les pertes éventuelles sous la face inférieure de la résistance chauffante (figure 3.2 b). Le fluxmètre est fixé sur le piston par un adhésif polyamide double face, résistant aux températures élevées.

3.1.2. Dispositif expérimental adapté à la mesure plasmonique (cas ébullition)

Le but de ce deuxième dispositif est de tester si une méthode de visualisation du déclenchement de l'ébullition par plasmon de surface est possible. Les figures 3.3 a) et b) présentent des photographies du dispositif expérimental et la figure 3.4 représente un dessin de l'enceinte.

L'enceinte est un réservoir cylindrique en aluminium AU4G de diamètre externe 250 mm, et de hauteur externe 65 mm. Le diamètre interne du réservoir est de 200 mm et sa capacité est de 0,8 litres. Cette enceinte est recouverte par un hublot en borosilicate suffisamment épais afin de résister à la pression. Le réservoir est hermétiquement fermé à l'aide d'un joint torique PTFE ayant une bonne compatibilité chimique avec le fluide utilisé (acétone ultra pure) et d'un collier de fermeture rapide compressant le hublot en verre contre l'enceinte.

L'épaisseur de la couche de fluide située entre l'échantillon et le hublot en verre est de 25 mm. Le grand rapport d'aspect entre le diamètre du hublot et la distance hublot-échantillon, permet de régler avec une grande latitude l'angle d'incidence (entre 0 et 55°) du faisceau de lumière utilisé pour la mesure par plasmon de surface. Un second avantage, pour les mesures par plasmon, est dû à la forme plane du hublot. Cette enceinte n'est pas adaptée à l'utilisation d'une caméra car la caméra nécessairement positionnée face à la surface polie miroir filme sa

propre image. Ce problème n'apparaît pas avec l'autre enceinte, où la visualisation s'effectue sur le côté.

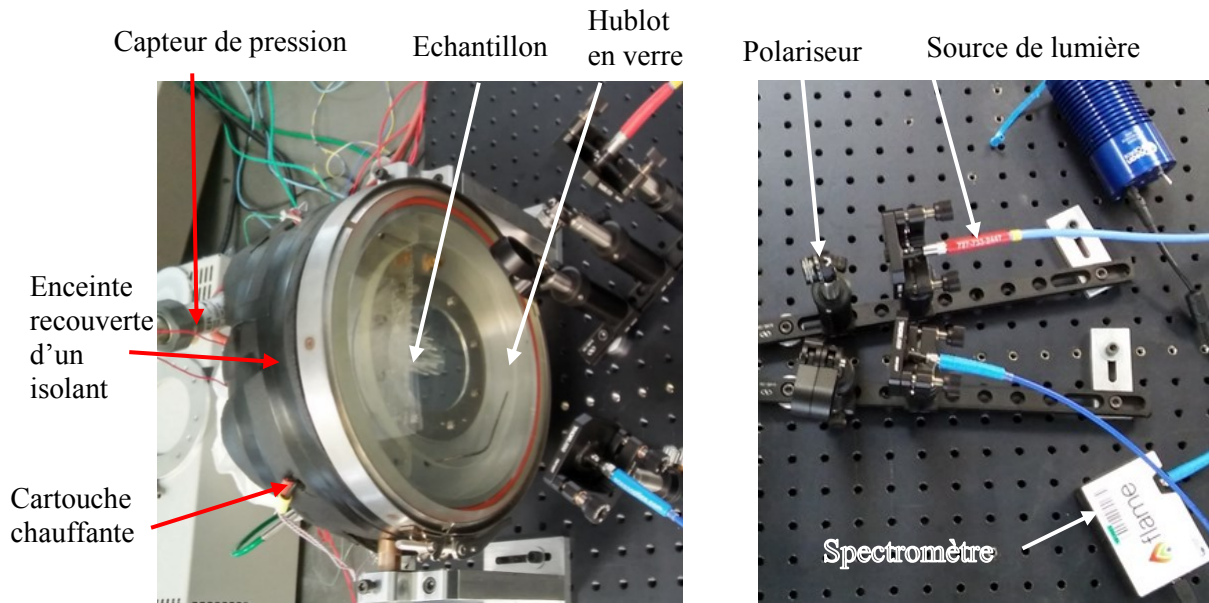


Figure 3.3 : Photographie du dispositif expérimental ; a) Enceinte avec l'instrumentation ; b) Système optique pour la mesure Plasmon

Quatre cartouches chauffantes insérées en partie basse dans l'épaisseur du fond de l'enceinte en AU4G et deux panneaux chauffants collés sur la base du réservoir permettent de porter le fluide à la température de saturation désirée. Un isolant recouvre l'enceinte afin d'atteindre cette température plus rapidement. Lorsque la température de saturation est atteinte, la puissance thermique est fournie à l'échantillon. Comme ce dispositif ne possède ni de condenseur, ni de double paroi, la régulation de la température de saturation est réalisée par pertes. Pour cela, pour des flux thermiques élevés, l'isolant recouvrant l'enceinte peut être retiré en partie afin de maintenir constante la température de l'enceinte. Pour la même raison, la puissance fournie aux cartouches est réduite puis stoppée, afin de maintenir toujours le fluide à la température de saturation désirée. Deux tubes traversent le support en AU4G. Ils assurent la liaison du fluide avec un capteur de pression et un thermocouple de type K, ils permettent aussi le remplissage/vidange de liquide et la réalisation d'un vide primaire par l'intermédiaire d'une pompe à vide. Un système de fixation constitué d'un piston isolant en PEEK et d'un ressort, permet tout comme dans la première enceinte, de maintenir la résistance chauffante et le fluxmètre sous l'échantillon.

Ce dispositif est équipé d'un banc optique pour la mesure des phénomènes par analyse d'un plasmon de surface. Ce banc optique se compose d'une source de lumière blanche, d'un polariseur orienté pour réaliser une onde transverse magnétique (TM), d'un détecteur et d'un analyseur du signal (spectromètre). Contrairement au premier dispositif expérimental, l'ébullition s'effectue dans une orientation verticale. Cette disposition est liée à la contrainte supplémentaire due à la présence du banc de mesure optique.

3.1. Bancs expérimentaux

Sur le banc optique, deux guides permettent de positionner le faisceau dans la zone précise à analyser et de régler finement l'angle d'incidence et l'angle de détection. Le montage optique (figure 3.3) est constitué en amont de l'échantillon :

- D'une source halogène (HL-2000 OCEAN OPTICS) de longueur d'onde 360-2400 nm, de puissance 6,8 mW et de très bonne stabilité optique.
- D'une fibre optique utilisée pour orienter sur l'échantillon un faisceau de 5 mm de diamètre.
- D'un polariseur de lumière.
- D'un filtre absorbant pour réduire l'intensité du faisceau incident sans modifier la polarisation de la lumière.

Une fibre optique relié à un spectromètre (Flame Spectrometer) permet de recueillir le signal réfléchi, de l'analyser puis de le visualiser à l'aide du logiciel « OceanView : Real-Time Acquisition and Analysis ». La résolution optique du spectromètre est de 1,5 nm. Le temps d'intégration de l'appareil, réglable entre 1 ms et 65 s, a été réglé à 1 ms dans notre cas.

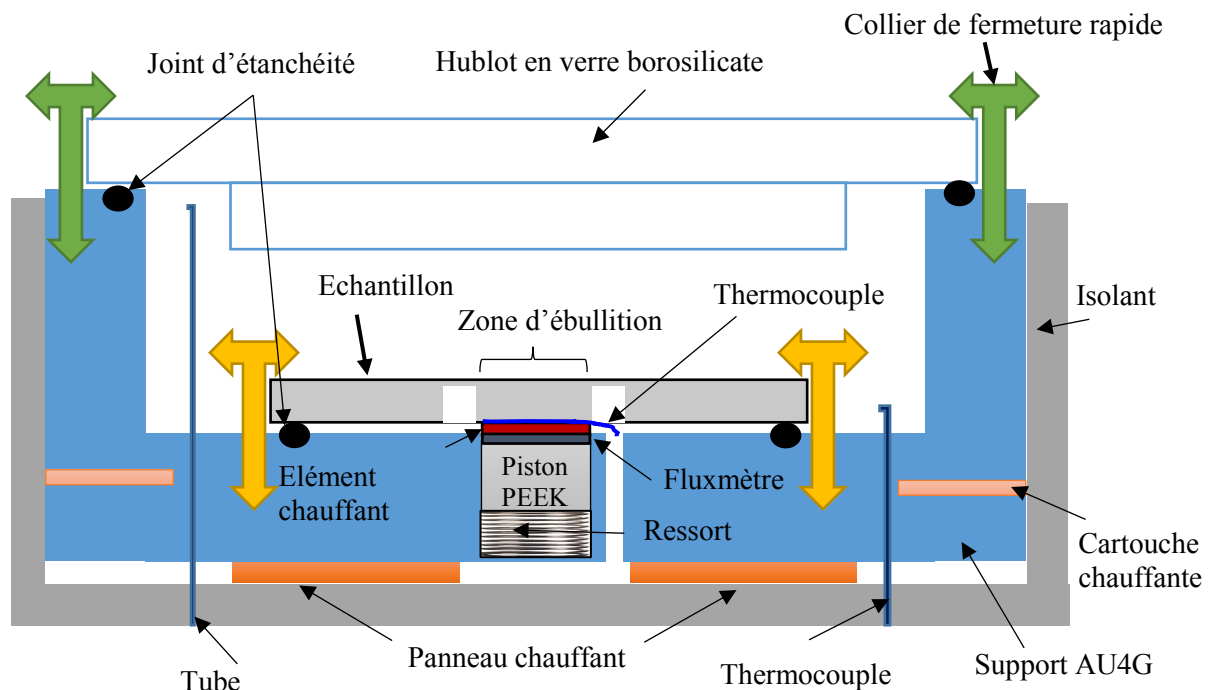


Figure 3.4 : Schéma du dispositif pour la mesure plasmon

3.1.3. Eléments communs aux deux dispositifs

3.1.3.1. Elément chauffant

L'élément chauffant (Captec) a la forme d'un disque fin de diamètre 25,4 mm, d'épaisseur 0,25 mm et de résistance électrique 7 Ω . La face effective qui chauffe l'échantillon est couverte d'une feuille de cuivre parfaitement plane, l'autre face (qui apparaît sur la figure 3.5) est recouverte d'une feuille de Kapton isolant ($\lambda \approx 0,16 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$). Les fils d'alimentation électrique sont gainés de PTFE. La résistance chauffante est alimentée par un générateur de

tension 0-60 V. Du fait de la présence de Kapton, la température de la résistance ne doit pas dépasser 160 °C. Le respect de cette contrainte, limite la surchauffe de la paroi à une valeur de 100 K pour une température de saturation de 60 °C correspondant à une pression de 1,15 bar.



Figure 3.5 : Elément chauffant

3.1.3.2. Thermocouples

La température T_m de la face inférieure de l'échantillon est mesurée par un thermocouple de type K de diamètre 80 μm (Chromel/ Alumel) positionné dans une micro-rainure de largeur 300 μm , profondeur 500 μm et de longueur 25,4 mm, traversant la zone centrale de l'échantillon. Afin de maintenir bien fermement le thermocouple de 80 μm dans la rainure et aussi de limiter les résistances thermiques, un fil de cuivre de diamètre légèrement supérieur à 300 μm , est inséré dans la rainure au-dessus du thermocouple (figure 3.6). Un soin particulier a été apporté afin d'obtenir une surface très plane, même avec la présence du thermocouple. Ainsi, un bon contact a été réalisé entre la résistance chauffante et la face inférieure de l'échantillon située à l'intérieur de la rainure annulaire.

La température dans le fluide est mesurée par un thermocouple de type K de diamètre 1 mm. Tous les thermocouples utilisés dans ce travail ont été étalonnés en utilisant un banc d'étalonnage développé et mis au point par le laboratoire, constitué principalement d'un bain thermostaté de grande stabilité et d'un thermomètre de référence (sonde de platine régulièrement étalonnée par un organisme agréé). L'étalonnage a été réalisé avec les thermocouples branchés sur la même centrale d'acquisition utilisée pour nos essais.

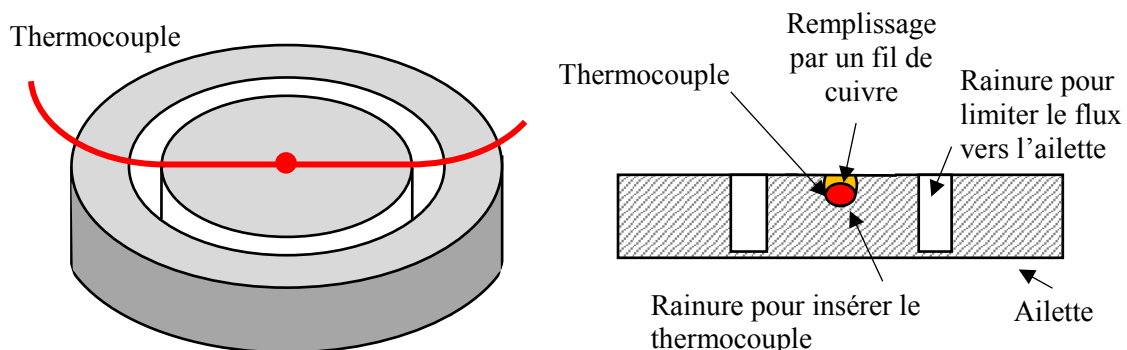


Figure 3.6 : Mise en place du thermocouple sur la face inférieure de l'échantillon

3.2. Mesure des grandeurs et instrumentation utilisée pour l'analyse

3.1.3.3. Mesures de la pression

La mesure de la pression dans la chambre d'ébullition est réalisée à l'aide d'un capteur de pression Keller de haute précision (erreur de 0,1 % sur l'étendue de mesures). La mesure simultanée de la pression dans l'enceinte et de la température du fluide, permet de vérifier que les conditions de saturation sont atteintes, et qu'il n'y a pas de gaz incondensables détectables dans l'enceinte.

3.1.3.4. Autres éléments

Les autres éléments analogues pour les 2 dispositifs sont une résistance étalon Keithley 1651 (étalon $0,001 \Omega \pm 1 \%$) pour mesurer de façon précise l'intensité du courant circulant dans la résistance chauffante, un générateur de 0-60 V continu pour alimenter la résistance chauffante, un multimètre Keithley 2700 pour la mesure des tensions électriques, et un fluxmètre disposé entre la résistance chauffante et le piston en Peek. Ce fluxmètre (diamètre 25,4 mm, épaisseur 0,4 mm) est uniquement utilisé pour vérifier que les pertes thermiques sur la face inférieure de la résistance thermique en contact avec le piston isolant en PEEK sont négligeables. Sa sensibilité et son temps de réponse fournis par le fabricant (Captec) sont respectivement égaux à $2,62 \mu\text{V}/(\text{W} \cdot \text{m}^2)$ et à 0,3 s.

3.1.3.5. Fluide utilisé

Le fluide de travail est l'acétone. Les propriétés à la température de saturation choisie pour les essais sont reportées dans le tableau 3.1. L'acétone utilisée, fournie par la société Carlo Erba, a une pureté égale à 99,9%. L'acétone est compatible chimiquement avec l'aluminium.

T_{sat} (°C)	p_{sat} (bar)	ρ_l (kg/m ³)	ρ_v (kg/m ³)	σ (N/m)	h_{lv} (kJ/kg)
60	1,15	744,27	2,58	0,0184	497
50	0,819	756,08	1,86	0,0196	508
40	0,565	767,6	1,315	0,0208	518,7

Tableau 3.1 : Propriétés thermophysiques de l'acétone

3.2. Mesure des grandeurs et instrumentation utilisée pour l'analyse

Nous présentons ci-dessous, les méthodes utilisées pour obtenir les mesures avec les meilleures précisions possibles, compte tenu de notre matériel expérimental.

3.2.1. Mesure de la puissance thermique

La puissance thermique fournie par l'élément chauffant est donnée par le produit de l'intensité du courant circulant dans la résistance et de la tension aux bornes de la résistance. Pour mesurer de façon précise l'intensité, l'élément chauffant est relié en série avec la résistance étalon. Le multimètre Keithley 2700 mesure la tension aux bornes de la résistance étalon et de la résistance chauffante. La puissance transmise sur la surface d'ébullition (de diamètre 25,4 mm) est plus difficile à évaluer, car une partie de la puissance fournie par la résistance est évacuée vers l'ailette. Un programme numérique a été développé pour estimer ces pertes thermiques.

La détermination de la surchauffe nécessite la mesure de la température du liquide et la connaissance de la température moyenne de la surface de l'échantillon en contact avec le fluide. Les mesures étant réalisées en régime permanent, une valeur brute (non corrigée) de la température moyenne en surface peut d'abord être déduite en appliquant la loi de diffusion thermique de Fourier, à partir de la mesure de la puissance fournie par la résistance chauffante et de la température mesurée sur la face inférieure de l'échantillon. L'utilisation du modèle numérique permet de corriger le résultat, en prenant compte les pertes thermiques vers l'ailette.

3.2.2. Visualisation de l'ébullition

Dans le but de détecter le déclenchement de l'ébullition et de comparer les caractéristiques des bulles (diamètre, fréquence, etc.) à flux décroissant, une caméra rapide (Photron Fastcam SA3) a été utilisée pour visualiser les phénomènes. La fréquence d'acquisition est réglée sur 1000 f/s ; la taille d'image est de 384×240 pixels. Dans certain cas, pour détecter la nucléation et suivre en détails l'évolution de la bulle lors de sa croissance, la fréquence a été réglée sur 3000, 5000, 10000, 25000 ou 40000 images par seconde. L'éclairage est assuré à l'aide d'un éclairage LED muni d'un verre dépoli afin d'avoir un éclairage uniforme. Cette caméra est uniquement utilisée pour la première enceinte.

3.2.3. Détection des phénomènes par plasmon de surface

Elle est basée sur la mesure du signal diffracté par un réseau métallique. Le plasmon de surface correspond à une oscillation du nuage d'électrons à la surface d'un métal, sous l'effet d'un champ électromagnétique extérieur dont les fréquences sont celles du visible (de l'ordre de 10^{14} Hz). L'apparition d'un événement tel que la formation d'une couche de vapeur nanométrique, se traduit par une variation du signal diffracté (variation de son intensité, translation du signal). La mise en œuvre de cette méthode requiert un matériel optique de haute qualité mais assez classique (source de lumière blanche, polariseur, spectromètre) et peu encombrant (ces éléments sont maintenant bien miniaturisés). L'utilisation du plasmon étant, à notre connaissance, une première en thermique, en tout cas pour l'ébullition, une présentation détaillée des éléments théoriques nécessaires sera faite dans le chapitre 5.

3.3. Procédure expérimentale

Avant le remplissage, un premier vide est réalisé dans l'enceinte (0,03 bar) afin de chasser l'air. Lorsque le vide est réalisé, l'enceinte est isolée (fermeture de la vanne). L'étanchéité de l'enceinte est testée. Si la pression dans l'enceinte n'évolue pas et reste stable à la valeur de 0,03 bar longtemps après la fermeture de la vanne, le test est satisfaisant et le remplissage par de l'acétone peut avoir lieu. Durant ce remplissage (par aspiration), les précautions sont prises afin d'éviter l'introduction d'air dans l'enceinte. Ensuite, la température de l'enceinte est régulée à une température de 60°C. La pression dans l'enceinte est alors de l'ordre de 1,2 bars, légèrement supérieure à la pression atmosphérique. Lorsque cette pression est atteinte, une vanne est brièvement ouverte afin de chasser les incondensables restant. Le dégazage est jugé satisfaisant, lorsque la correspondance température/pression correspond aux données thermodynamiques des tables de saturation (voir table 3.1). L'enceinte est alors prête et les essais peuvent démarrer.

3.3. Procédure expérimentale

Le système d'acquisition est mis en marche afin d'enregistrer les grandeurs au cours du temps, (températures, puissances, etc.) et de visualiser leurs évolutions en temps réel sur écran (utilisation du logiciel Labview).

Le flux de chaleur est fourni progressivement à l'échantillon par petits paliers de puissance. A chaque palier, les relevés sont effectués lorsqu'un régime stationnaire est atteint, c'est-à-dire lorsque les courbes affichées sur l'écran de contrôle n'évoluent plus. Pour déterminer de façon très précise la surchauffe nécessaire à l'apparition de l'ébullition, les paliers imposés autour de la valeur de cette surchauffe doivent être très petits. Cette opération peut être très longue, si la valeur de la surchauffe nécessaire est élevée. Des essais de répétabilité sont réalisés. Lors de la première mesure, les paliers imposés restent relativement grands, ce qui permet de repérer la zone de surchauffe où apparaît l'ébullition. A partir des autres essais, le pas est affiné autour de cette zone afin d'obtenir une valeur plus précise. Lorsque le déclenchement apparaît, l'accroissement du flux se poursuit par petits paliers jusqu'à une densité surfacique de flux de l'ordre de 200 kW/m^2 . Cette valeur est loin du flux critique à 1 bar situé à environ 380 kW/m^2 , selon Cioulachtjian et Lallemand, 2004. A partir de ce niveau, les essais sont effectués à flux thermique décroissant, toujours par la même méthode c'est-à-dire par diminution par petits paliers de la puissance fournie.

3.3.1. Spécification banc 1

Le niveau d'acétone liquide est fixé à 75 mm au-dessus de la surface de l'échantillon. Le reste est occupé par la vapeur d'acétone. La température de l'acétone est élevée à 60°C par circulation, dans la double paroi, d'eau chaude provenant du bain thermostaté (figure 3.7). Lorsque les conditions sont satisfaites le test peut commencer.

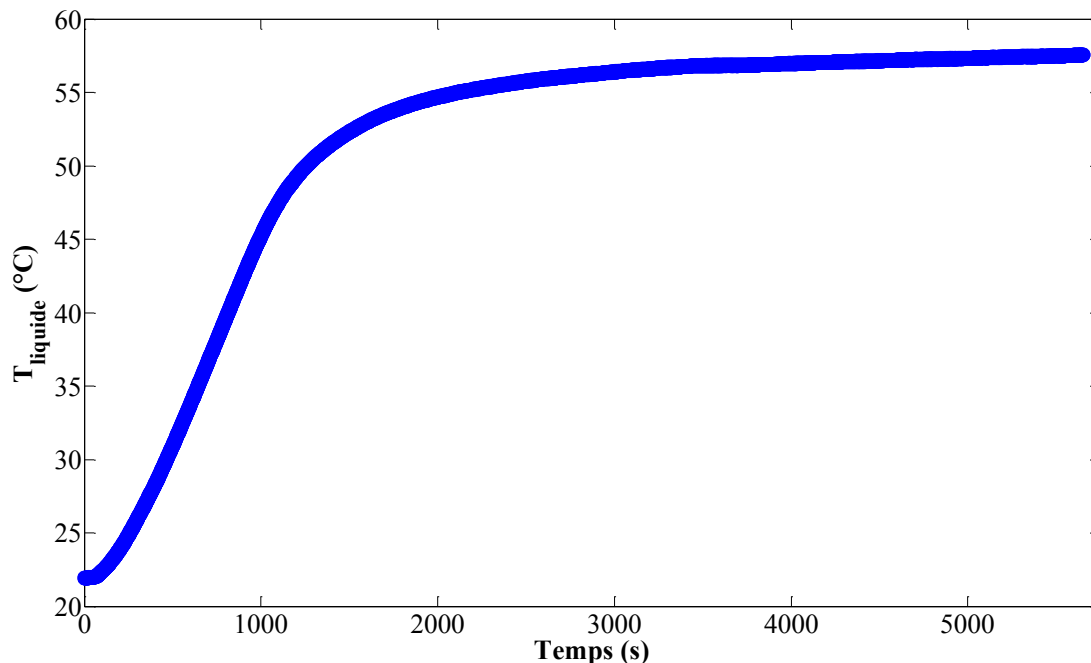


Figure 3.7 : Montée en température de l'acétone dans l'enceinte à l'aide du bain thermostaté

La caméra rapide est préparée pour visualiser l'ébullition. Ceci permet de comparer en fonction de l'état de la surface, les régimes d'ébullition, les performances sur les transferts thermiques et d'analyser le phénomène d'hystérésis.

Le but de cette étude étant de détecter le déclenchement de l'ébullition et d'analyser comment l'état de surface peut modifier l'ébullition (densité, taille des bulles, etc.) nous n'avons pas cherché à atteindre le flux critique. Nous avons limité l'augmentation de la puissance fournie avant l'apparition de poches de coalescence bien développées. Ceci a sans doute permis de préserver les surfaces (notamment si elles sont recouvertes d'un fragile revêtement nanométrique) et donc de pouvoir réaliser des essais de répétabilité. Pour valider les essais, chaque échantillon a été testé 3 ou 4 fois avec une période de repos de plusieurs heures entre les tests, dans les mêmes conditions de saturation (pression 1,15 bar, température de saturation 60 °C). Tous les essais de répétabilité ont été réalisés à flux thermiques croissant et décroissant. Ils montrent qualitativement une bonne répétabilité en ce qui concerne les mécanismes visuels, tandis que le point de déclenchement de l'ébullition varie d'un test à l'autre. A chaque essai, la caméra rapide est utilisée pour enregistrer le processus de l'ébullition lors de la naissance de la première bulle, mais aussi pour analyser les différents régimes de l'ébullition à flux croissant et décroissant.

3.3.2. Spécification banc 2

Pour se placer dans les conditions d'existence d'un plasmon de surface, le faisceau optique arrivant sur la surface doit être polarisé rectilignement. De plus, l'onde incidente (supposée ici plane) doit être transverse magnétique, c'est-à-dire que le vecteur champ magnétique associé à l'onde doit être normal au plan d'incidence. Comme l'échantillon est vertical et que le faisceau incident est horizontal, le plan d'incidence est horizontal. Le vecteur champ magnétique doit donc être orienté suivant la verticale. Enfin, comme le détecteur se déplace dans un plan horizontal, les ordres de diffraction doivent s'étaler sur ce plan. La périodicité du réseau doit donc être orientée selon une ligne horizontale. La figure 3.8 explique ce réglage. Sur cette figure, le système de détection et d'analyse est positionné sur le pic d'intensité (maximum d'intensité) obtenu à l'ordre 0.

3.3. Procédure expérimentale

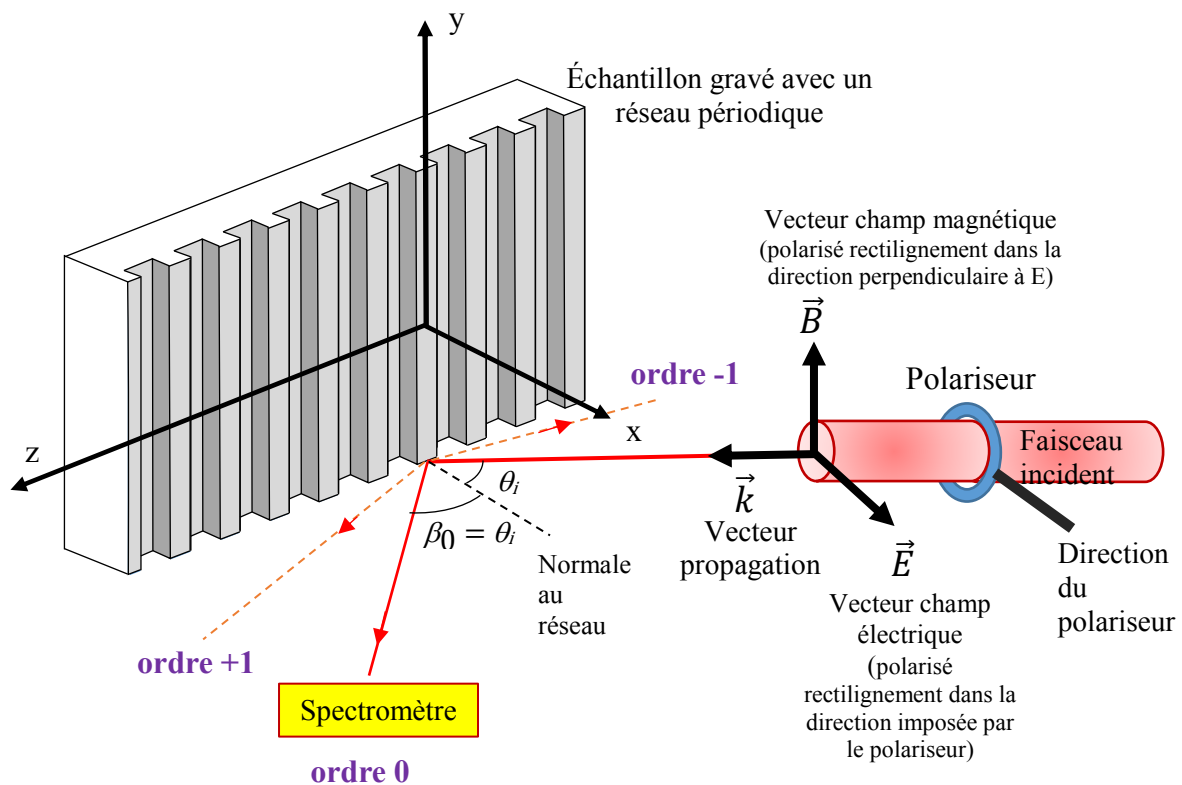


Figure 3.8 : Installation et réglage du système optique pour l'étude de plasmon de surface

L'enceinte est remplie d'acétone, le liquide occupe 75 % du volume, le reste étant occupé par la vapeur d'acétone. Après remplissage, l'enceinte est portée à la température souhaitée à l'aide des cartouches chauffantes insérées dans la paroi de l'enceinte. Si une bonne correspondance pression-température de saturation avec les données des tables thermodynamiques de l'acétone est constatée, les essais peuvent être effectués.

Un étalonnage de la chaîne de mesure optique doit d'abord être effectué. Cet étalonnage est tout d'abord réalisé à la température uniforme correspondant à la température du fluide utilisée pour les essais (entre 50 et 60 °C). Pour cela l'enceinte est chauffée à l'aide des résistances chauffantes insérées dans l'enceinte alors que la résistance située sous l'échantillon n'est pas utilisée. Lorsque cette température est atteinte, la température de l'enceinte est maintenue constante et l'étalonnage est effectué. Tout d'abord le faisceau est orienté vers l'ailette utilisé comme un miroir. L'angle d'incidence choisi (voir justification au chapitre 5) est compris entre 20 et 30°, ce qui correspond, avant réfraction dans l'acétone, à un angle compris entre 30° et 40° dans l'air (indice de réfraction de l'acétone est égal à 1,36). La position et l'orientation du détecteur sont ajustées de façon à recueillir un signal d'intensité maximale. Le détecteur est alors aligné de façon très précise selon l'angle de réflexion. C'est ce même angle qui sera utilisé pour les essais sur le réseau, l'ordre choisi étant l'ordre 0 en diffraction. Le choix de cet ordre sera justifié au chapitre 5. Ce signal comporte du bruit correspondant à l'éclairage environnant et qu'il convient d'éliminer. L'étape suivante consiste donc à éteindre la source de lumière afin d'enregistrer le signal avec la lumière ambiante. Ce bruit est mis en mémoire. Il sera soustrait aux signaux obtenus. Lors des essais, l'éclairage de la salle ne doit pas être modifié. Si nécessaire, une autre référence doit être réalisée. Avant les essais, le

faisceau est translaté sur le réseau, le signal nettoyé du bruit est enregistré, la position du détecteur est de nouveau réajustée afin d'obtenir un signal d'intensité maximale.

D'autres étalonnages ont été effectués, en utilisant la même procédure, à des températures supérieures à 60°C pour correspondre aux températures de la paroi lors des essais.

La méthode plasmonique est utilisée pour enregistrer les phénomènes lors de la convection naturelle, est en particulier afin de tenter de capter un signal éventuel avant l'apparition de l'ébullition. Après la nucléation, cette méthode n'est plus utilisable, car la réflexion n'est plus spéculaire, à cause de la présence des bulles. A flux croissant, les mesures plasmoniques sont de nouveau réalisées à la disparition de la dernière bulle.

3.4. Correction numérique de courbes d'ébullition

Comme il a été précisé plus haut, l'un des objectifs de cette étude étant d'analyser le déclenchement de l'ébullition, l'échantillon a été muni d'une ailette. Cette ailette permet d'éviter la génération de bulles parasites sur la périphérie de l'échantillon et donc le déclenchement de l'ébullition par ces mêmes bulles parasites. Mais du fait de la conductivité thermique élevée de l'aluminium, l'ailette doit être de grand diamètre afin de faire chuter suffisamment la température sur sa périphérie. Cependant, un grand diamètre signifie aussi grande surface d'échange. Les pertes thermiques par l'ailette peuvent donc être élevées, même si l'épaisseur du métal séparant l'ailette de la partie centrale de l'échantillon est très fine. Comme, il n'est pas possible de trouver un bon compromis entre la taille de l'ailette qui doit être grande et sa surface qui doit être petite, un modèle numérique a dû être développé afin d'apporter des corrections aux valeurs mesurées.

3.4.1. Mise en évidence de l'influence de l'épaisseur de métal au fond de la rainure

Les problèmes liés aux pertes thermiques par l'ailette ont été pris en compte dès le début de la thèse pour la conception des échantillons : choix du diamètre de l'ailette, choix de la largeur de la rainure circulaire, choix de l'épaisseur de métal au fond de la rainure. Une première modélisation a été réalisée sur le logiciel Comsol (figure 2.1, chapitre 2 et annexe 8), mais aussi à l'aide d'une méthode nodale développée au laboratoire. Une largeur de rainure égale à 5 mm ou 10 mm, a semblé un choix judicieux, car une épaisseur plus grande fragilise l'échantillon et n'apporte que peu d'améliorations sur les pertes thermiques. L'effet de l'épaisseur de métal recouvrant la rainure est par contre très important, ce qui explique le choix d'une épaisseur aussi faible.

L'influence des pertes thermiques a été mise en évidence en traçant les courbes brutes (avant correction) pour trois types de surface (lisses, lisses avec défauts et rugueuses). La figure 3.9, représente les courbes obtenues à flux croissant, pour les faibles flux thermiques correspondant donc à la convection naturelle. Sur ces courbes, la densité de flux thermique est déduite directement de la puissance fournie par la résistance et elle ne tient pas compte la présence de l'ailette. La convection naturelle d'un liquide est, en principe, insensible à la présence de rugosités de tailles inférieures au micromètre. Cependant des écarts importants apparaissent entre les courbes. Par exemple (voir figure 3.9) pour une même puissance imposée égale à 40 W (80 kW/m²), la surchauffe passe de 39 K pour l'échantillon S_{Ld1+} à 50 K pour l'échantillon S_{N2+}, ce qui signifie que l'écart mesuré sur la température située sous la face inférieure de l'échantillon en contact avec la résistance est de 11 K.

3.4. Correction numérique de courbes d'ébullition

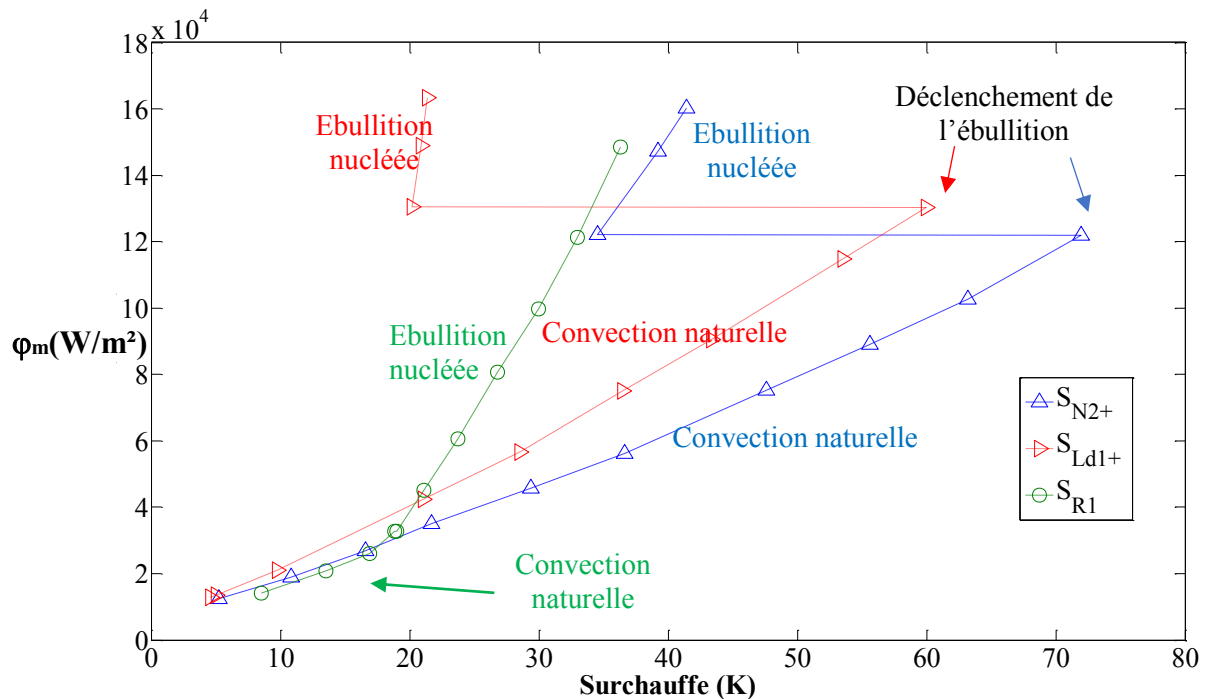


Figure 3.9 : Courbes non corrigées de convection naturelle pour 3 échantillons différents

Pour expliquer ces écarts, l'influence du thermocouple placé sous l'échantillon a d'abord été testée, mais le remplacement des thermocouples a conduit à des écarts similaires. L'influence de l'épaisseur de l'échantillon mesurée avec précision ($5 \text{ mm} \pm 0,1 \text{ mm}$) a aussi été examinée. Enfin, des essais de reproductibilité sur le montage ont été réalisés, pour voir si les écarts pourraient provenir des résistances de contact. Finalement, ces écarts ont été attribués aux pertes thermiques vers l'ailette à travers le pont de métal qui la sépare de la zone centrale. Une épaisseur aussi fine (entre 150 et 300 μm) ne peut pas être contrôlée avec un matériel d'usinage classique. L'usinage de cette partie est d'ailleurs très délicat. Plusieurs échantillons ont été détruits en tentant de réduire au maximum cette épaisseur dans le but de limiter les pertes thermiques. D'autres échantillons ont été détruits lors du polissage en réduisant cette épaisseur ou lors du montage dans l'enceinte à cause de la déformation due à la poussée du piston. Enfin, il n'a pas été possible de mesurer avec précision l'épaisseur de métal au fond de la rainure après sa réalisation. La méthode numérique est donc apparue comme le seul moyen d'estimer cette épaisseur.

3.4.2. Modèle numérique 2D

Les pertes dépendent de l'épaisseur de métal (150 à 300 μm) séparant la zone centrale de l'ailette. Cette épaisseur n'est pas constante au fond de la rainure et présente une certaine courbure due au processus d'usinage. Ainsi, la valeur exacte de cette épaisseur en tout point de la rainure n'est pas connue et est difficile à mesurer précisément. Nous avons donc choisi d'estimer une valeur moyenne de cette épaisseur à l'aide d'un modèle thermique.

Un modèle axisymétrique 2D de l'échantillon a donc été développé en régime stationnaire. Les équations du modèle sont décrites en annexe. Une méthode nodale par direction alternée a été utilisée (figure 3.10). Sur la face supérieure de l'échantillon (zone d'étude et surface périphérique) est appliqué un coefficient d'échange par convection naturelle

ou par ébullition ; sur la partie centrale de la face inférieure de l'échantillon est appliqué un flux thermique uniforme correspondant à la puissance fournie par la résistance. Le reste de la surface est adiabatique. Le paramètre variable est l'épaisseur du métal au fond de la rainure H_r .

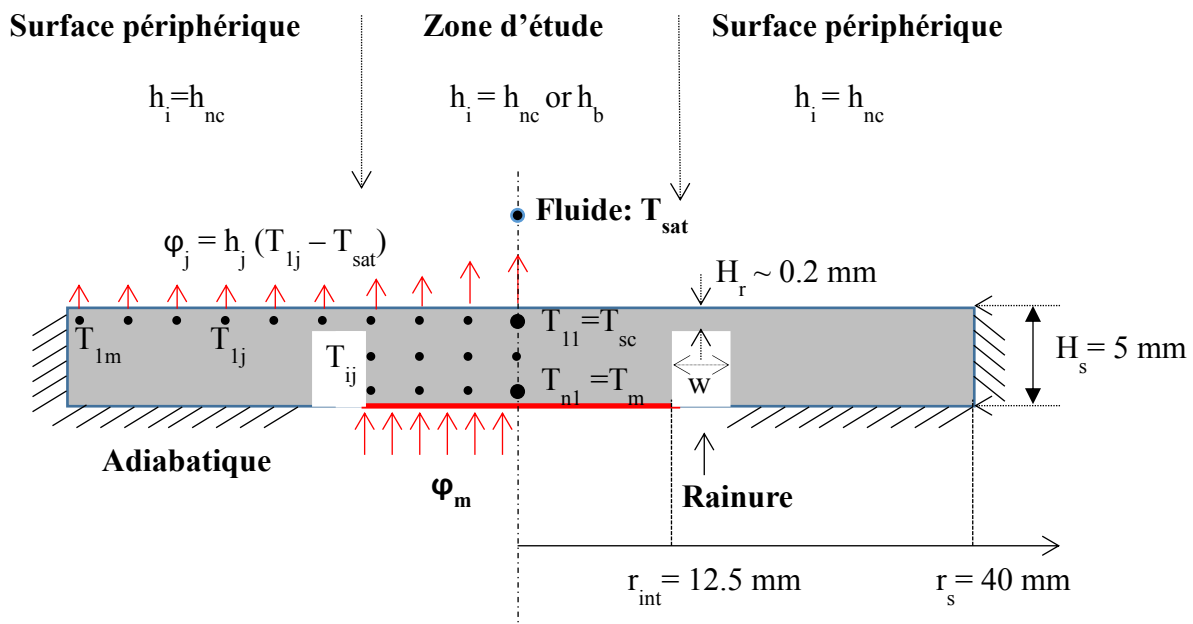


Figure 3.10 : Conditions aux limites et nœuds du modèle thermique

La figure 3.11 présente un exemple de surchauffe calculée avec le modèle pour un coefficient d'échange convectif de $500 \text{ W/m}^2\text{K}$ sur l'ensemble de la surface et un flux de chaleur q appliqué de 15 W/cm^2 . La conductivité thermique de l'aluminium est égale à 160 W/mK . La surchauffe obtenue est tracée pour trois différentes épaisseurs de métal séparant la zone centrale de la périphérie de l'échantillon ($H_r = 150 \text{ }\mu\text{m}$, $H_r = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et $H_r = 250 \text{ }\mu\text{m}$). On peut voir clairement que la largeur des ailettes n'est pas assez petite pour empêcher complètement le flux de chaleur d'aller de la zone étudiée vers la surface périphérique, en particulier dans les conditions de convection naturelle. De plus, les résultats montrent que l'épaisseur de cette couche de métal est un paramètre très sensible du modèle. Pour un flux de chaleur q de 15 W/cm^2 , une diminution de cette épaisseur de $1 \text{ }\mu\text{m}$ augmente la température du dispositif de $0,2 \text{ K}$. En conséquence, la géométrie du fond de la rainure est une inconnue majeure et critique du problème thermique en convection naturelle. Elle doit être estimée pour analyser correctement les résultats et comparer les données les unes aux autres.

La figure 3.12 présente un exemple de surchauffe calculée avec le modèle en conditions d'ébullition avec un coefficient d'échange de $2500 \text{ W/m}^2\text{K}$ dans la zone d'étude et un coefficient d'échange convectif de $500 \text{ W/m}^2\text{K}$ sur la périphérie. Le flux de chaleur q appliqué est de 15 W/cm^2 comme dans la figure 3.11. La surchauffe obtenue est tracée pour trois différentes épaisseurs de métal séparant la zone centrale de la périphérie de l'échantillon ($H_r = 150 \text{ }\mu\text{m}$, $H_r = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et $H_r = 250 \text{ }\mu\text{m}$). On peut voir qu'en conditions d'ébullition, le champ de température est beaucoup moins sensible à l'épaisseur du métal au fond de la rainure. En effet, en conditions d'ébullition (figure 3.13), une part beaucoup plus importante du flux de chaleur est dissipée dans la zone d'étude, plutôt que sur la périphérie.

3.4. Correction numérique de courbes d'ébullition

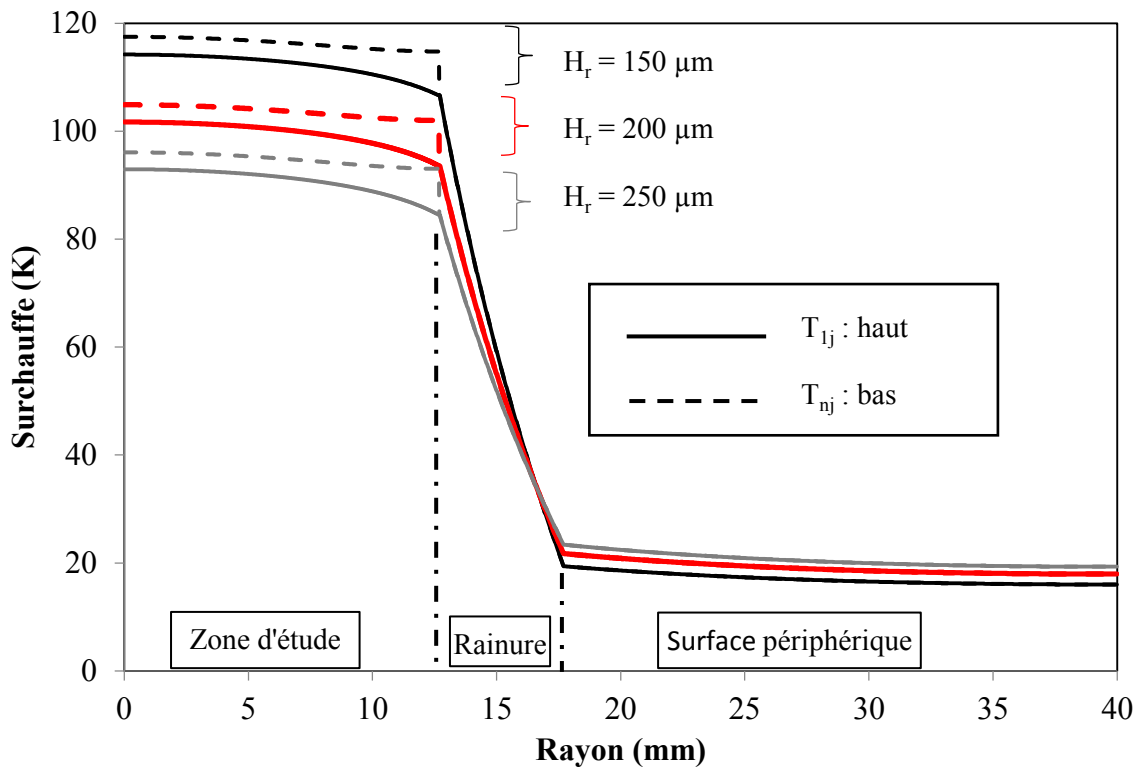


Figure 3.11 : Surchauffe en convection naturelle pour trois différentes épaisseurs de la couche métallique séparant la zone d'étude de la périphérie de l'échantillon ($H_r = 150 \mu\text{m}$, $H_r = 200 \mu\text{m}$ et $H_r = 250 \mu\text{m}$) ; $q = 15 \text{ W/cm}^2$; $h_{nc} = 500 \text{ W/m}^2\text{K}$

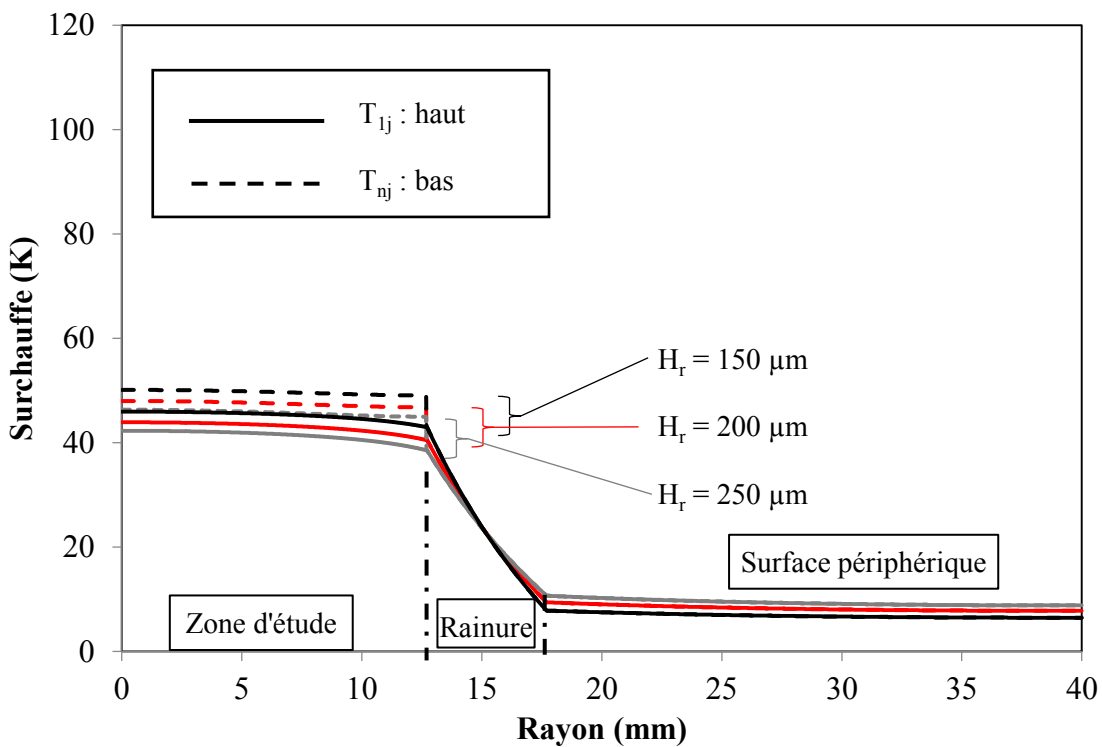


Figure 3.12 : Surchauffe en présence d'ébullition pour trois différentes épaisseurs de la couche métallique séparant la zone d'étude de la périphérie de l'échantillon ($H_r = 150 \mu\text{m}$, $H_r = 200 \mu\text{m}$ et $H_r = 250 \mu\text{m}$) ; $q = 15 \text{ W/cm}^2$; $h_{nc} = 500 \text{ W/m}^2\text{K}$; $h_b = 2500 \text{ W/m}^2\text{K}$



Figure 3.13 : Photo de la zone d'ébullition

3.4.3. Estimation des paramètres du modèle par comparaison avec l'expérience

Les résultats du modèle sont comparés aux résultats expérimentaux obtenus en régime de convection naturelle pour chacun des échantillons et pour tous les tests réalisés. Cela permet d'obtenir un grand nombre de mesures pour l'estimation du coefficient d'échange en convection naturelle, supposé constant pour toutes les expériences, et l'épaisseur moyenne du métal pour chaque échantillon. Le modèle a été développé en langage VBA et l'outil SOLVER d'Excel est utilisé pour l'estimation des paramètres inconnus dans une approche inverse. Le coefficient d'échange moyen obtenu est de l'ordre de $500 \text{ W/m}^2\text{K}$ et les résultats pour l'estimation de l'épaisseur de métal correspondent à des valeurs plausibles estimées entre 150 et $300 \text{ }\mu\text{m}$ pour tous les échantillons. La connaissance de cette épaisseur permet de calculer les pertes vers l'ailette et de corriger les résultats des expériences. En présence d'ébullition nucléée, le même coefficient d'échange par convection naturelle est appliqué sur la périphérie du système, ce qui permet également de corriger les résultats des expériences, même si la correction est moins importante en présence d'ébullition.

La figure 3.14 donne un exemple de courbes en convection naturelle, obtenues sans et après correction. Elle montre la nécessité d'effectuer une correction car les valeurs sont nettement modifiées. Cela provient des pertes inévitables vers l'ailette.

3.5. Analyse des incertitudes expérimentales

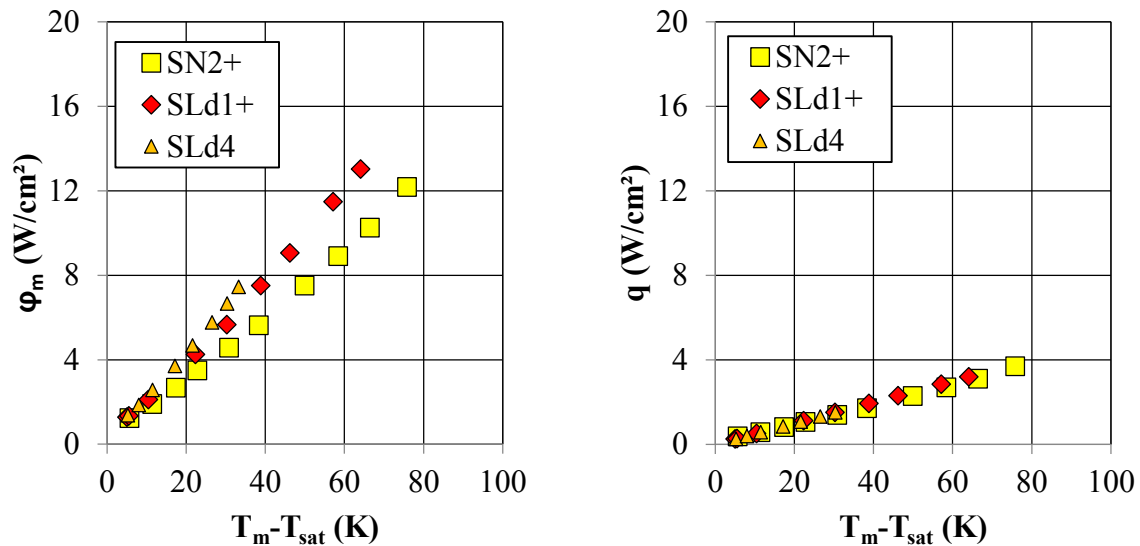


Figure 3.14 : Courbes de convection naturelle ; a) données brutes de capteurs ; b) données traitées avec correction de perte thermique.

3.5. Analyse des incertitudes expérimentales

La simulation numérique montre que les écarts de températures entre la partie centrale et la périphérie de l'échantillon sont plus élevés en convection naturelle qu'en ébullition (voir section 3.4.2.). Pour mesurer ces écarts nous avons muni un échantillon de cinq thermocouples, trois thermocouples sont insérés en zone centrale et deux autres en périphérie (figure 3.15). Ceci permet aussi de vérifier en face inférieure l'homogénéité de la température dans la zone centrale. La largeur de rainure est ici de 10 mm.

La figure 3.16 montre les mesures expérimentales obtenues avec cet échantillon. A chaque test, le thermocouple T1 a été retiré de la rainure puis inséré de nouveau afin d'estimer les erreurs liées à la mise en place du thermocouple dans la rainure (résistances de contact, etc). L'écart maximal de températures entre T1 et T3 est inférieur à 1 K. L'écart entre T2 et T1 ou T3 varie de 0,5 K (à bas flux thermique) à 2 K (à haut flux thermique). Les essais effectués à flux thermique croissant et décroissant sont reproductibles pour tous les tests réalisés. L'incertitude sur la température ne change globalement pas l'allure des courbes en convection naturelle. Les températures sous l'ailette varient peu avec le flux thermique et restent voisines de la température de saturation (figure 3.16 et 3.17).

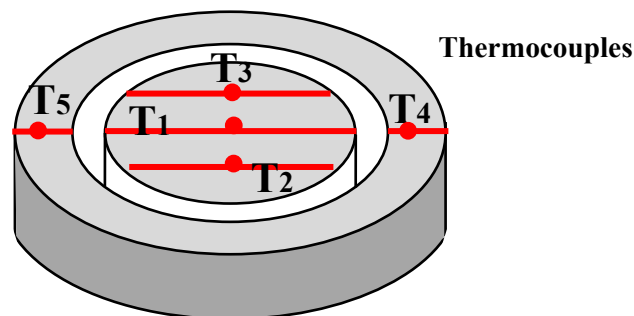


Figure 3.15 : Positions des thermocouples insérés sur la face arrière de l'échantillon

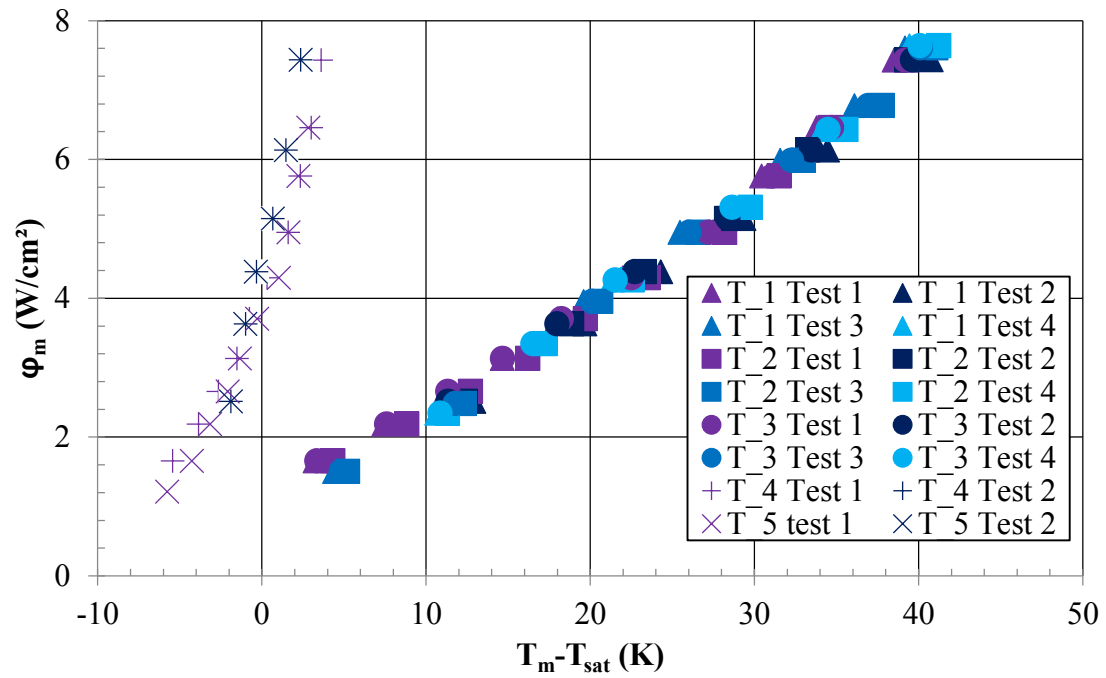


Figure 3.16 : Courbes brutes de la convection naturelle en régime croissant pour quatre tests

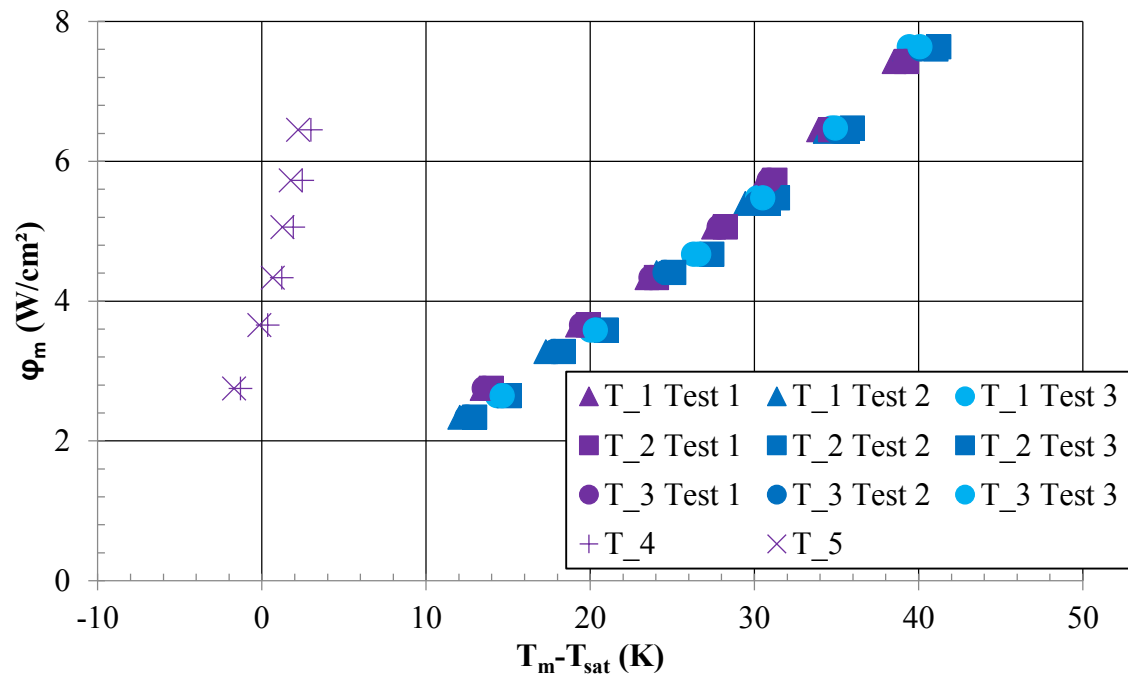


Figure 3.17 : Courbes brutes de la convection naturelle en régime de flux thermique décroissant

3.6. Conclusion

3.6. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les deux dispositifs expérimentaux développés au cours de cette thèse.

Le premier dispositif est conçu pour étudier l'ébullition en fonction de l'état de la surface. Sur ce dispositif différents échantillons seront testés. Ces échantillons possèdent tous une surface polie miroir mais ils sont classés en plusieurs catégories suivant le degré de polissage. Ce dispositif est adapté pour la visualisation des phénomènes à l'aide d'une caméra rapide. Sur ce dispositif, l'ébullition s'effectue sur une surface horizontale.

Le second dispositif a été conçu pour l'étude de l'ébullition par plasmon de surface. Le plasmon de surface est un phénomène d'oscillation d'électrons qui peut être généré sur des surfaces métalliques. Les méthodes de détection par plasmon permettent de détecter des événements à l'échelle nanométrique. L'utilisation du plasmon pour l'étude de l'ébullition n'a jamais été testée. Les échantillons utilisés sont des surfaces avec un réseau gravé. Sur ce dispositif, l'ébullition s'effectue sur une surface verticale.

L'étude du déclenchement de l'ébullition nécessite impérativement l'absence de toutes bulles parasites. La géométrie de l'échantillon que nous avons conçu, permet d'éviter la formation de ces bulles. Cependant du fait de cette ailette, des pertes non négligeables de flux thermiques sont obtenues. Afin, d'estimer ces pertes et de corriger les courbes, un modèle numérique axisymétrique de l'échantillon a été développé.

CHAPITRE 4 : ANALYSE EXPERIMENTALE DE L'EBULLITION NUCLEE SUR DES SURFACES LISSES, RUGUEUSES ET NANO-STRUCTUREES

Cette thèse a pour but d'apporter des éléments de compréhension de l'influence de la topographie et de la chimie de surface sur le déclenchement et le phénomène de l'ébullition. Nous avons donc choisi de travailler avec des surfaces métalliques simples telles que les surfaces polies miroirs. Bien que ces surfaces constituent des surfaces de référence pour l'ébullition, elles sont très mal connues : dans la littérature il n'existe qu'un nombre extrêmement restreint de travaux sur l'ébullition sur des surfaces ultra-lisses.

Dans ce chapitre nous présentons les résultats expérimentaux obtenus à l'aide du banc d'essais d'ébullition pour les différents échantillons présentés dans le chapitre 2, tableau 2.2. Des courbes d'ébullition sont tracées à flux thermiques croissant et décroissant. L'aspect de l'ébullition (taille, densité de bulle, etc.) est visualisé à l'aide de la caméra rapide. La formation du premier noyau de vapeur est également suivie et analysée avec la caméra. Les résultats obtenus avec les différents états de surface sont comparés.

Les essais sont en général réalisés loin du flux critique car le banc d'essais n'a pas été prévu pour ces conditions extrêmes. Cependant, quelques résultats, obtenus à la fin de cette thèse sont présentés également dans ce chapitre.

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

Ce paragraphe présente les courbes d'ébullition pour différents types de surfaces. L'étude de la nucléation n'est pas présentée ici, mais dans le paragraphe suivant.

4.1.1. Ebullition sur une surface nano lisse sans défauts

Ce sont des surfaces dont le RMS est inférieur à 60 nm (échantillons S_{N1} , S_{N1+} , S_{N2+} , S_{N3} dans le tableau 2.2). Les courbes d'ébullition obtenues pour ces quatre surfaces ont une allure tout à fait similaire. Ainsi, seules les courbes d'ébullition obtenues à flux de chaleur croissant et décroissant avec l'échantillon S_{N2+} sont présentées. La figure 4.1 présente les courbes d'ébullition brutes et la figure 4.2 les courbes d'ébullition corrigées. Quatre essais similaires ont été réalisés : les courbes se superposent, ce qui montre la reproductibilité de l'expérience. A faible densité surfacique de flux thermique, les échanges s'effectuent par convection naturelle. La température de la paroi s'élève linéairement. La surchauffe nécessaire pour amorcer le déclenchement est très élevée et donne lieu à une ébullition explosive (voir section 4.2). L'ébullition apparaît pour une surchauffe comprise entre 70 K et 90 K selon le test de répétabilité et pour un flux thermique mesuré de l'ordre de 12 à 15 Wcm^{-2} (figure 4.1). Après le déclenchement de l'ébullition, la surchauffe de la paroi décroît brutalement à une valeur comprise entre 35 K et 40 K, car les échanges thermiques entre la paroi et le fluide sont très élevés.

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

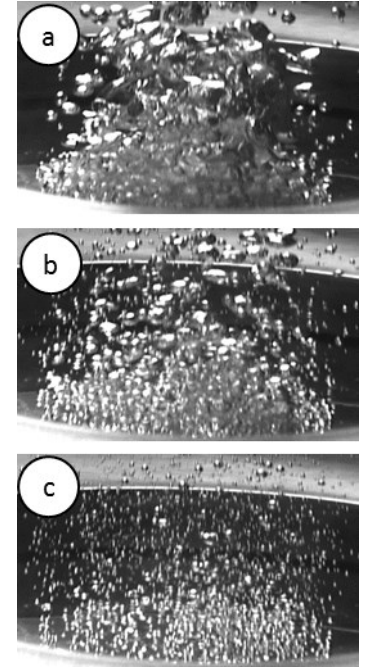
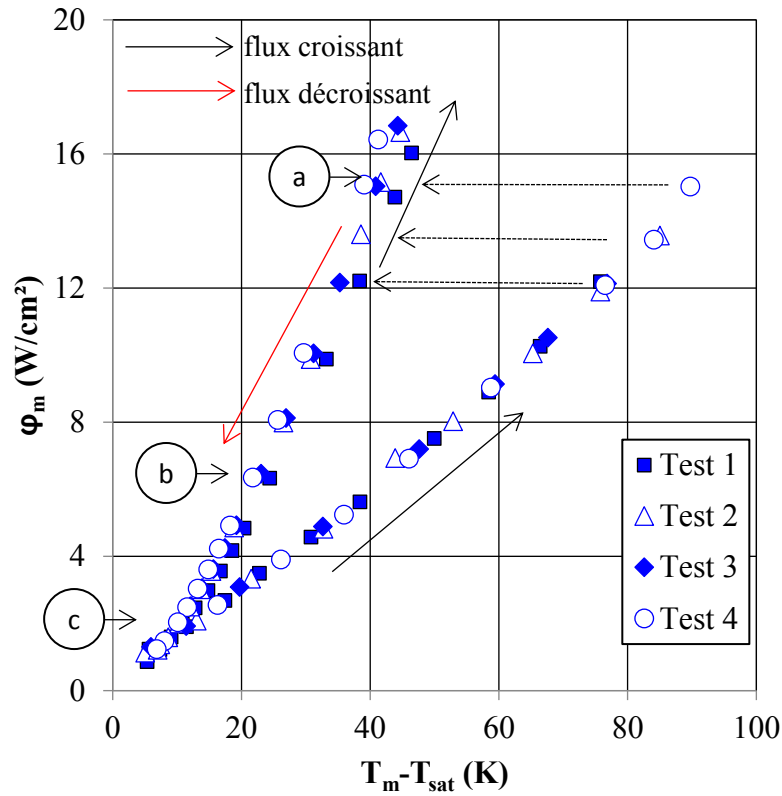


Figure 4.1 : Courbe typique d'ébullition obtenue sur une surface ultra-lisse (échantillon S_{N2+})

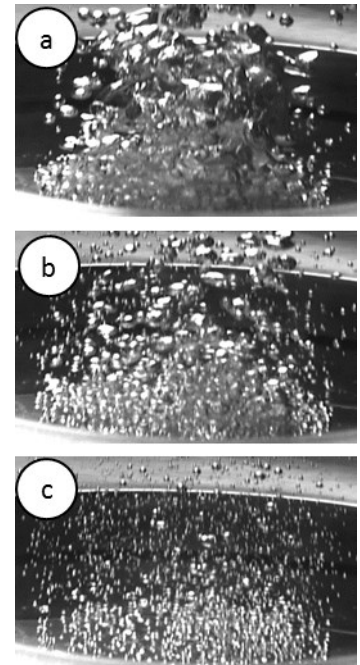
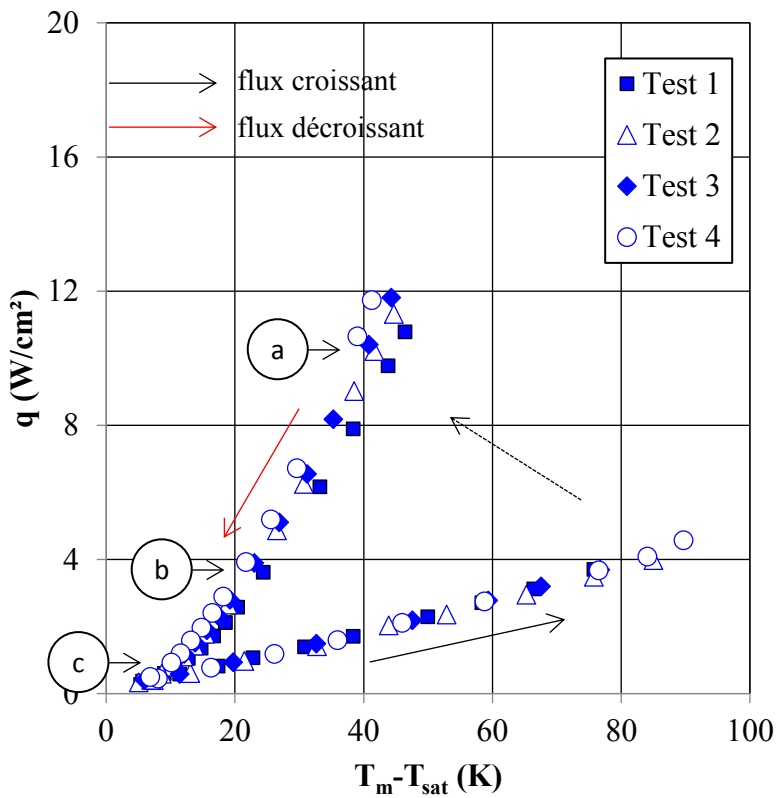


Figure 4.2 : Courbe typique d'ébullition corrigée obtenue sur une surface ultra-lisse (S_{N2+})

CHAPITRE 4 : ANALYSE EXPERIMENTALE DE L'EBULLITION NUCLEEE SUR DES SURFACES LISSES, RUGUEUSES ET NANO-STRUCTUREES

Au déclenchement de l'ébullition, malgré une ébullition forte dans la zone d'étude (photo a, figure 4.1), on constate une faible différence des performances thermiques entre la zone de convection naturelle et la zone d'ébullition sur les courbes non corrigées (coefficient d'échange augmenté d'un facteur 2). Ces dernières représentent en effet la densité de flux de chaleur mesurée φ_m en fonction de la surchauffe ($T_m - T_{sat}$). Elles sont une image du flux de chaleur dissipé sur l'ensemble de la surface de l'échantillon. Au contraire, les courbes corrigées (figure 4.2) représentent la densité de flux réellement dissipée dans la zone d'étude q - sans prendre en compte les pertes vers la périphérie de l'échantillon - en fonction de la surchauffe.

On constate clairement en comparant les figures 4.1 et 4.2 qu'en régime de convection naturelle, la densité de flux dissipée dans la zone d'étude est beaucoup plus faible que la densité de flux mesurée. Cela est dû aux pertes thermiques vers la périphérie de l'échantillon, la zone d'étude ne représentant que 10% de la surface totale de l'échantillon. Ainsi, en fin de régime de convection naturelle, la densité de flux dissipée dans la zone d'étude est comprise entre 3,5 et 4,5 Wcm⁻² alors que la densité de flux mesurée est de l'ordre de 12 à 15 Wcm⁻². Au déclenchement de l'ébullition, la part de la densité de flux dissipée dans la zone d'étude augmente fortement pour atteindre environ 11 Wcm⁻². Comme les échanges sur l'ailette continuent à se faire par convection naturelle, les échanges thermiques dans la partie centrale de l'échantillon sont bien plus intenses que sur sa périphérie. En situation d'ébullition, la chaleur fournie par la résistance est donc principalement orientée vers la zone centrale. La valeur de la densité de flux thermique atteinte est proche de celle fournie par la résistance, ce qui montre que les pertes sur l'ailette ont fortement été réduites. Ainsi, les courbes corrigées présentent une hystérésis beaucoup plus importante que les courbes non corrigées qui prennent également en compte les transferts vers la périphérie de l'échantillon. Les courbes d'ébullition présentées dans la suite de ce chapitre seront donc systématiquement corrigées par le modèle numérique pour faciliter l'interprétation des résultats.

A partir d'une densité surfacique de flux thermique q égale à 12 W/cm², les essais sont réalisés à flux décroissant (flèche rouge sur la figure 4.2). La courbe d'ébullition se superpose à celle tracée à flux croissant jusqu'au niveau du flux thermique correspond au détachement de la première bulle (8 à 11 Wcm⁻² suivant les tests). Au-delà, la courbe se poursuit par continuité. Les surchauffes de paroi sont bien plus faibles à flux décroissant qu'à flux croissant car l'ébullition persiste même pour les densités de flux très faibles. Pour $q = 4$ W/cm² la baisse de surchauffe, est de 50-60 K (par rapport à celle obtenue à flux croissant, en convection naturelle). La courbe d'ébullition présente donc un phénomène d'hystérésis qui traduit un mode d'échange de chaleur différent : par convection naturelle avant le déclenchement, par ébullition à flux décroissant. A très faible densité de flux, la courbe à flux décroissant est toujours au-dessus de celle à flux croissant car de multiples petites bulles parsèment la paroi (photo c, figure 4.2), puis les deux courbes se rejoignent à flux presque nul lorsque les sites se désactivent, et donc les bulles se raréfient. Le régime d'ébullition se maintient pour des surchauffes extrêmement basses (de l'ordre de 5 à 10 K).

Les photographies de la figure 4.2 illustrent le phénomène d'ébullition obtenu à flux décroissant, à différents emplacements a, b et c de la courbe d'ébullition. Au point (a), le flux thermique est élevé, une multitude de bulles couvrent la paroi, des phénomènes de coalescence ont lieu. Le point b) se situe à un niveau de flux inférieur à celui du déclenchement de l'ébullition. La surface est couverte d'un grand nombre de petites bulles. Le point (c) correspond à une très faible densité de flux de chaleur. La surface possède encore une grande

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

densité de bulles, elles sont plus petites (entre 0,7 mm et 2 mm), bien séparées les unes des autres et elles sont distribuées de façon homogène sur la surface. L'inexistence de défauts sur la surface permet au flux de chaleur de se répartir uniformément sur la surface, sans ligne de flux privilégiée.

La stabilité de l'ébullition a été vérifiée pour quelques densités de flux. La figure 4.3 présente l'aspect de l'ébullition, à flux décroissant, pour une densité surfacique de flux thermique égale à $q = 1,6 \text{ W/cm}^2$, à l'instant t_0 lorsque le régime permanent a été atteint (figure 4.3 a), et à l'instant $t_0 + 5500 \text{ s}$ (figure 4.3 b). Pour cet échantillon de type nano lisse sans défaut, une stabilité remarquable de l'ébullition est observée.

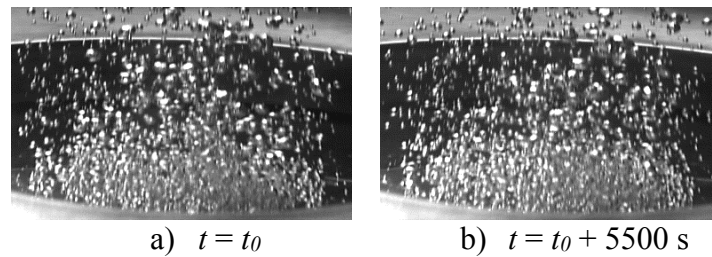


Figure 4.3 : Aspect de l'ébullition à deux instants différents pour une surface ultra-lisse et une même densité de flux thermique égale à $1,6 \text{ W/cm}^2$

Le même comportement a été observé pour les surfaces $S_{\text{NI}+}$ et S_{NI} . L'échantillon $S_{\text{NI}+}$ correspond à l'échantillon ultra-lisse S_{NI} en AU4G, mais qui a été recouvert par la suite par une couche d'aluminium pur. Les deux échantillons présentent la même rugosité. Le déclenchement apparaît, là encore, pour de fortes surchauffes ($65^\circ\text{C} < \Delta T < 85^\circ\text{C}$). Aucune différence n'a donc été observée entre les deux échantillons $S_{\text{NI}+}$ et S_{NI} car le revêtement n'a pas modifié fondamentalement la surface du point de vue de la rugosité et de la mouillabilité. De façon générale, une grande répétabilité du phénomène a été obtenue sur les surfaces nano-lisses et les mêmes phénomènes ont été observés pour tous les échantillons nano-lisses sans défauts testés.

4.1.2. Ebullition sur une surface rugueuse

Ce sont des surfaces dont le RMS est supérieur à $5 \mu\text{m}$ (échantillons S_{RI} dans le tableau 2.2). Les courbes d'ébullition obtenues pour ces surfaces ont une allure tout à fait similaire, même si un seul échantillon est présenté dans ce mémoire. La figure 4.4 présente les courbes d'ébullition obtenues à flux thermiques croissant et décroissant pour l'échantillon S_{RI} .

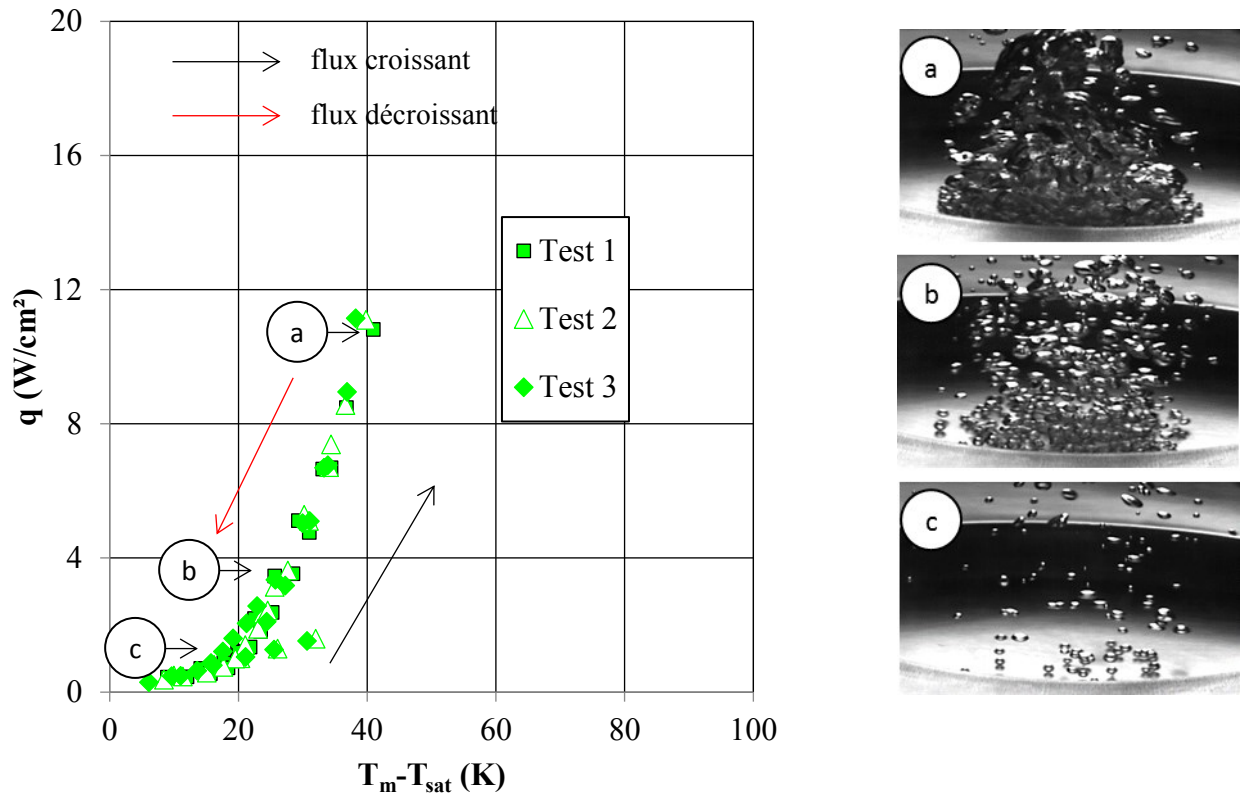


Figure 4.4 : Courbes d'ébullitions corrigées pour une surface « rugueuse » (S_{R1})

L'apparition de l'ébullition intervient pour des surchauffes de parois relativement faibles (17 K – 30 K) et pour un flux thermique peu élevé (0,85 à 1,5 W/cm²) car la présence de nombreux défauts (donc de sites potentiels) favorise la génération de bulles. Le refroidissement brutal, observé lors du déclenchement de l'ébullition pour une surface nano lisse n'est pas observé, car l'ébullition se déclenche pour des surchauffes de paroi bien plus basses. La transition entre la convection naturelle et l'ébullition s'effectue de façon progressive. Les courbes à flux croissant et décroissant sont quasiment confondues, l'hystérésis est donc pratiquement inexistante. Après l'apparition des premières bulles, la pente de la courbe est plus importante, mais varie presque linéairement.

Les photographies présentées sur la figure 4.4 donnent l'allure de l'ébullition pour 3 niveaux de flux thermique, les mêmes flux que ceux représentés sur la figure 4.2 relative aux surfaces ultra lisses. Pour les densités de flux élevées (photographie a) les images sont assez similaires, la densité de bulles produites est grande, ce qui donne lieu à des phénomènes de coalescence. Pour les densités de flux inférieures à 4 W/cm² (photographies b et c), les différences apparaissent nettement. Sur les surfaces rugueuses, la densité de bulles est bien plus faible et la taille des bulles est plus grosse. Sur la photographie c, les bulles sont très peu nombreuses ce qui permet de constater qu'elles se forment toujours sur les mêmes sites pour des surchauffes de l'ordre de 15 à 20 K.

Ces résultats sont conformes à la théorie classique de la nucléation hétérogène (Griffith et Wallis) qui exprime que la présence de sites (cavités) favorise la nucléation et que la surchauffe de paroi nécessaire à croissance des bulles s'accroît lorsque la taille des sites est plus petite.

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

4.1.3. Ebullition sur une surface lisse avec défauts

Dans le cas de surfaces lisses mais avec défauts, des différences de comportement ont été observées entre les sept différents échantillons. Ces différences peuvent être attribuées à la taille des défauts (diamètre, profondeur) et à leurs formes. Cependant, ceux-ci n'ont pu être mesurés avec précision avec le microscope confocal du fait des limites de résolution de cet appareil. D'autres défauts n'ont sans doute pas été détectés. Un balayage complet nécessitant une durée trop élevée, correspondant environ $70 \cdot 10^6$ points de mesure seraient nécessaires pour couvrir toute la surface. Un balayage partiel de la surface ayant été généralement réalisé, l'état complet de la surface n'a pu être connu. Ceci était aussi vrai pour les surfaces ultra-lisses et rugueuses. Cependant, leurs comportements très différents ont permis de distinguer nettement ces deux types de surface.

4.1.3.1. Cas particulier de la surface S_{Ld1+}

Le comportement (figure 4.5) le plus singulier correspond à celui de la surface S_{Ld1+} . Il s'agit d'une surface nano-lisse mais présentant 10 défauts repérés. Quatre tests de répétabilité ont été réalisés, les courbes sont quasi-confondues. La surchauffe nécessaire au déclenchement de l'ébullition est élevée, assez similaire à celle obtenue avec une surface lisse sans défauts. Le déclenchement apparaît pour une surchauffe de la paroi comprise entre 60 et 70 K. Le refroidissement se traduit, là aussi, par un refroidissement élevé de la paroi compris entre 40 et 50 K. Les défauts présents sur cette surface semblent donc ne pas jouer de rôle dans le déclenchement de l'ébullition.

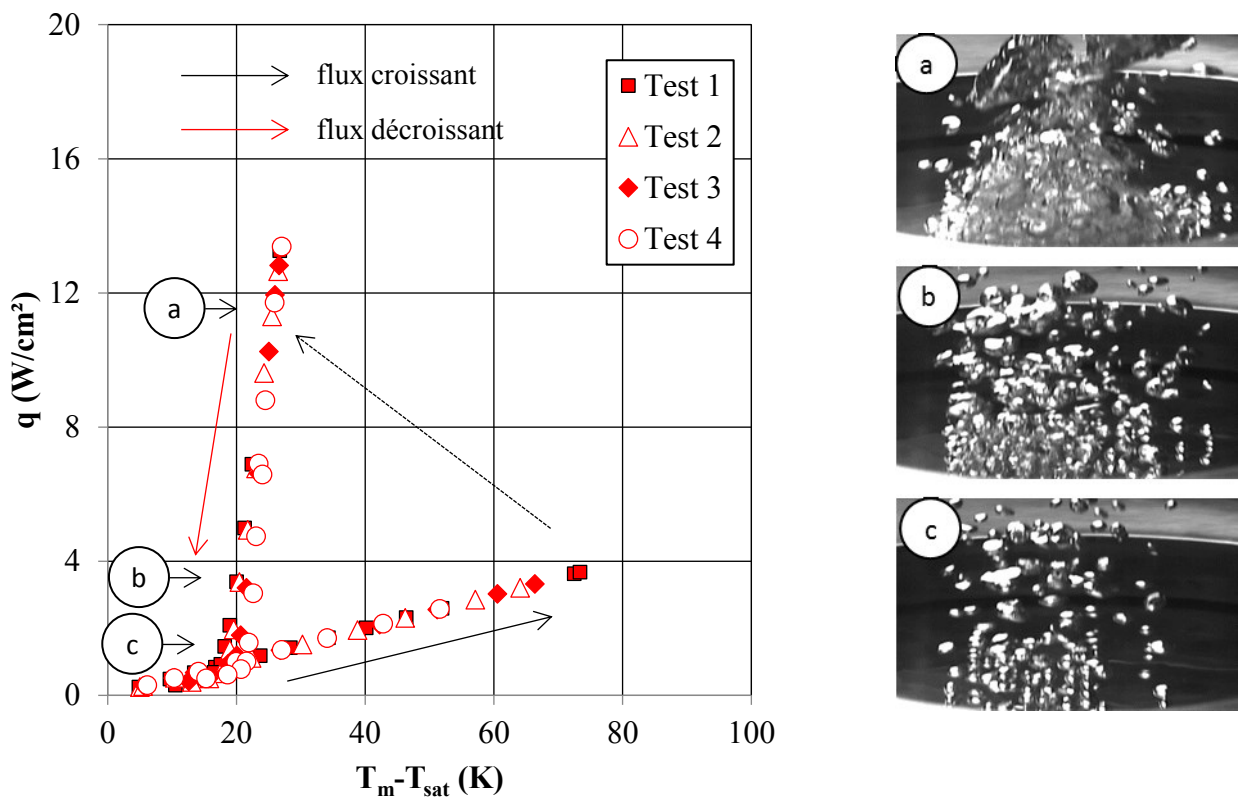


Figure 4.5 : Courbes d'ébullition corrigées pour une surface lisse avec défauts (S_{Ld1+})

CHAPITRE 4 : ANALYSE EXPERIMENTALE DE L'EBULLITION NUCLEEE SUR DES SURFACES LISSES, RUGUEUSES ET NANO-STRUCTUREES

Les photographies de la figure 4.5 illustrent le phénomène d'ébullition obtenu à flux décroissant, à différents emplacements a, b et c de la courbe d'ébullition. Au point a, la densité de flux thermique est élevée et les bulles coalescent. Une colonne continue de vapeur semble se former. Lorsque la densité de flux thermique est plus basse, les bulles apparaissent de façon bien distinctes et de moins en moins denses.

Le comportement de cette surface est tout à fait différent de celui d'une surface ultra lisse ou de celui d'une surface rugueuse. Au déclenchement, le mécanisme d'ébullition est celui d'une surface lisse : la surchauffe est élevée et l'ébullition est explosive. A flux décroissant, la taille et la densité de bulles sont celles d'une surface rugueuse car les bulles sont plus grosses et moins nombreuses. A une densité surfacique de flux thermique de l'ordre de 1 W/cm^2 (photographie c), il ne subsiste plus que quelques bulles pour une surchauffe relativement importante (de l'ordre de 20 K). Ces bulles sont plus grosses que celles que l'on obtient sur une surface lisse. Il est donc possible qu'elles proviennent des défauts de la surface constituant des sites très stables. Avec une surface ultra-lisse, des petites bulles couvrent presque entièrement la surface à flux décroissant pour les faibles flux de chaleur (figure 4.1 ou 4.2 photographie c). Ce n'est pas le cas ici (figure 4.5 photographie c).

Une explication peut être donnée par la convergence, au sein de l'échantillon, des lignes de flux thermique vers les sites actifs. Le flux thermique se concentre alors vers les sites, délaissant ainsi le reste de la surface. Ces convergences des lignes de flux ont été analysées par Bonjour et al. (2000). Ces sites se désactivent pour des surchauffes plus élevées que dans le cas des petites bulles observées sur les surfaces ultra-lisses sans défauts. Cependant, à flux croissant, ces sites isolés continuent à concentrer le flux de chaleur, ce qui limite le phénomène de coalescence et permet d'obtenir une courbe d'ébullition presque verticale par rapport aux surfaces lisses ou rugueuses. Ce résultat nous a conduits à réaliser des surfaces ultra-lisses avec des défauts de position aléatoire afin de vérifier cette hypothèse (section 4.1.4).

4.1.3.2. *Autres surfaces lisses avec défauts*

La figure 4.6 présente une synthèse des résultats obtenus avec les différentes courbes lisses avec défauts (S_{Ld1+} à S_{Ld7}). La courbe d'ébullition de la surface rugueuse (en vert) est également tracée pour comparaison. On constate que l'ensemble des points de mesure sont situés entre la courbe de la surface rugueuse et celle de la surface S_{Ld1+} . Les courbes d'ébullition des surfaces S_{Ld3} , S_{Ld4} et S_{Ld6} sont assez similaires à celles de la surface S_{Ld1+} , même si la surchauffe est plus importante pour les mêmes densités de flux en régime d'ébullition nucléée. Les courbes d'ébullition des surfaces S_{Ld2} , S_{Ld5} et S_{Ld7} sont quant à elles plus proches de celle de la surface rugueuse S_{R1} .

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

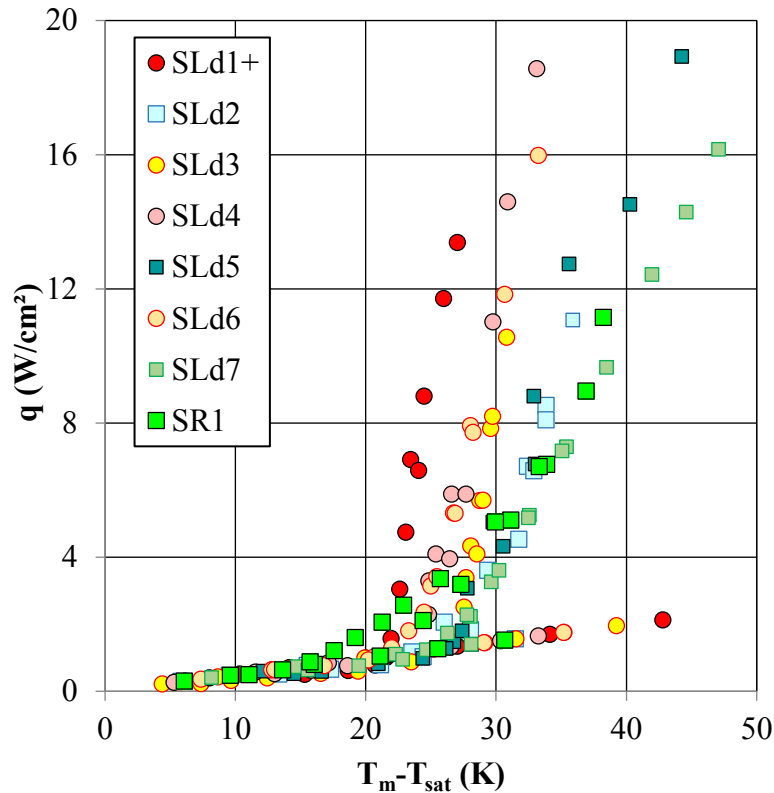


Figure 4.6 : *Courbes d'ébullition corrigées pour plusieurs surfaces lisses avec défauts*

Les courbes des surfaces SL_{d7} , SR_1 sont caractéristiques d'une surface rugueuse. Malgré des RMS nettement différents (758 nm et 5166 nm, voir figure 2.8 chapitre 2), les courbes à flux décroissant sont relativement proches. Cela laisse supposer que l'ébullition est gouvernée par quelques sites favorables et non pas par l'état global de la surface.

L'ébullition est plus efficace sur la surface SL_{d4} que sur la surface SL_{d5} . Le RMS de l'échantillon SL_{d5} est nettement moins élevé que celui de l'échantillon SL_{d4} , mais la surface SL_{d4} possède une quantité non négligeable de « pics » et de « creux » de taille supérieure à 2000 nm, alors que l'échantillon SL_{d5} , plus homogène, en est dépourvue (voir figure 4.7). Le RMS et les nombreux paramètres globaux des surfaces ne permettent donc pas de prédire la courbe d'ébullition, car la nucléation est un phénomène local dû à des sites particuliers favorables et non à une rugosité globale. Cependant, la probabilité d'obtenir des sites favorables diminue lorsque la surface est polie de façon très fine et très homogène. On remarque cependant que la surface SL_{d2} , dont le niveau de RMS est le plus faible après la surface SL_{d1+} a un comportement très proche d'une surface rugueuse, ce qui est le cas également au déclenchement de l'ébullition qui a lieu à très faible surchauffe (voir section 4.2).

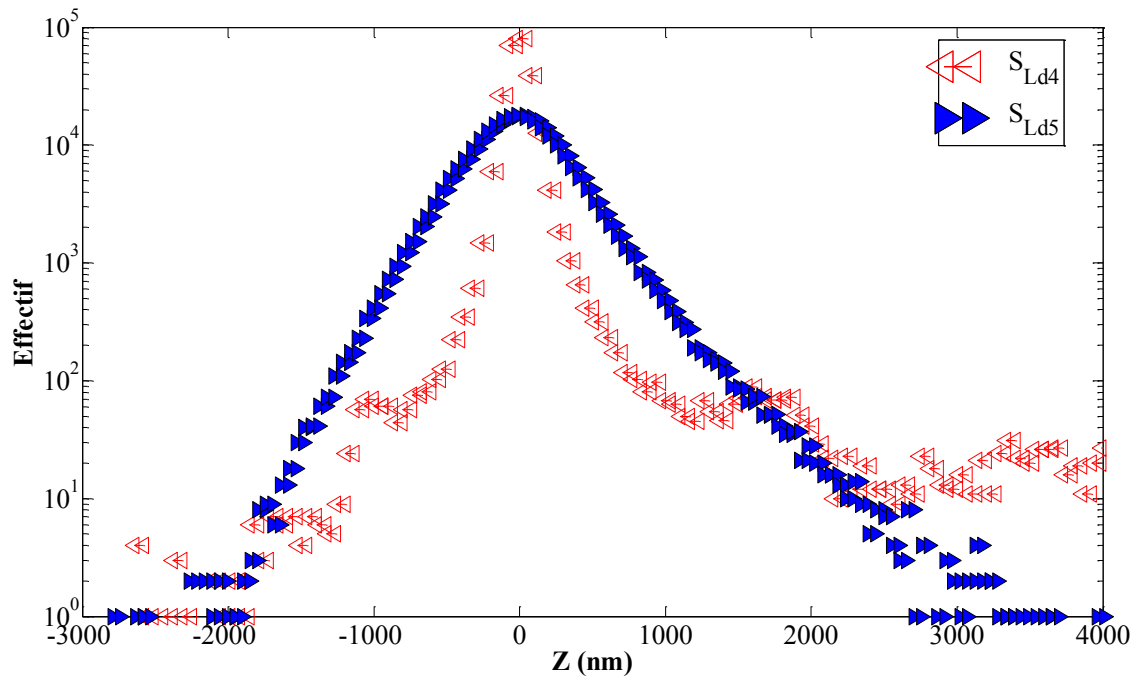


Figure 4.7 : Histogramme d'altitudes corrigées pour S_{R1} et S_{Ld7}

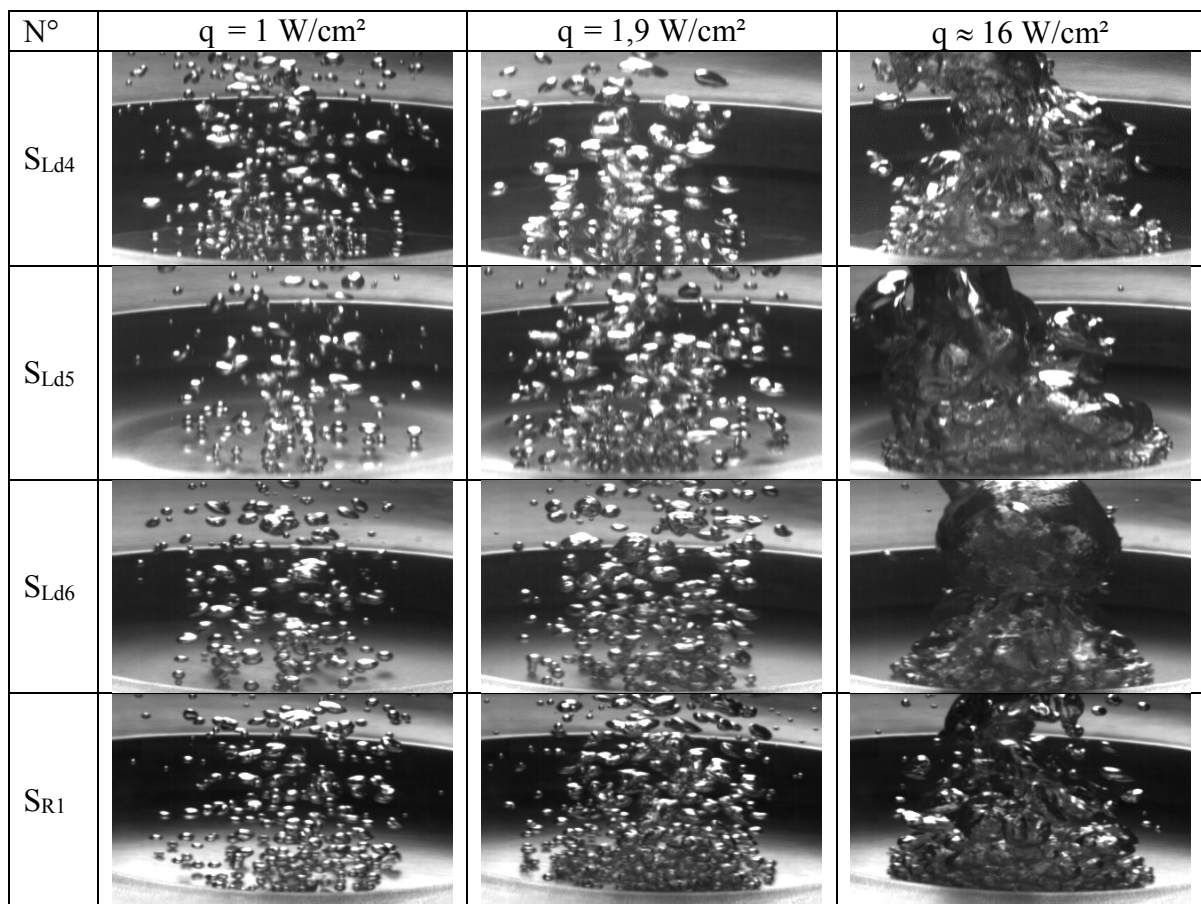


Figure 4.8 : Comparaison de l'aspect de l'ébullition à flux thermique décroissant pour les échantillons S_{Ld4} , S_{Ld5} , S_{Ld6} , S_{R1}

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

La figure 4.8 compare à flux thermique décroissant, l'aspect de l'ébullition pour les surfaces S_{Ld4} , S_{Ld5} , S_{Ld6} et S_{R1} . Pour les densités de flux thermiques élevées (3^{ème} colonne), le nombre de bulles émises est grande, la production de vapeur est élevée, des phénomènes de coalescence ont lieu. L'aspect de l'ébullition est donc le même sur tous les échantillons testés. Les bulles fusionnent et forment une grosse colonne de vapeur très agitée au-dessus de la surface. Peu de différences entre les échantillons peuvent être mises en évidence avec les images, même à bas niveau de flux, ce qui n'aide pas non plus à comprendre les différences de comportement observées. Une étude plus exhaustive avec une mesure précise de l'ensemble de l'état de surface semble nécessaire pour pouvoir apporter des conclusions mieux étayées sur l'influence de la rugosité et des sites de nucléation.

4.1.4. Ebullition sur une surface nano lisse avec des trous aléatoirement répartis

La figure 4.9 présente les courbes d'ébullition obtenues avec les deux surfaces nano-lisses comportant des défauts dont la position est connue (S_{C1} (18 trous) et S_{C2} (58 trous)). Pour comparaison, la courbe d'ébullition obtenue avec la surface S_{Ld1+} est présentée. On constate que le comportement des trois surfaces est similaire et que l'augmentation du nombre de trous améliore les performances de la surface étudiée. L'hypothèse formulée dans la section précédente semble donc être confirmée par ces résultats obtenus à la fin de ce travail de thèse. Ce résultat ouvre des perspectives d'études, notamment sur l'amélioration des performances obtenues en augmentant encore le nombre de trous dans l'échantillon.

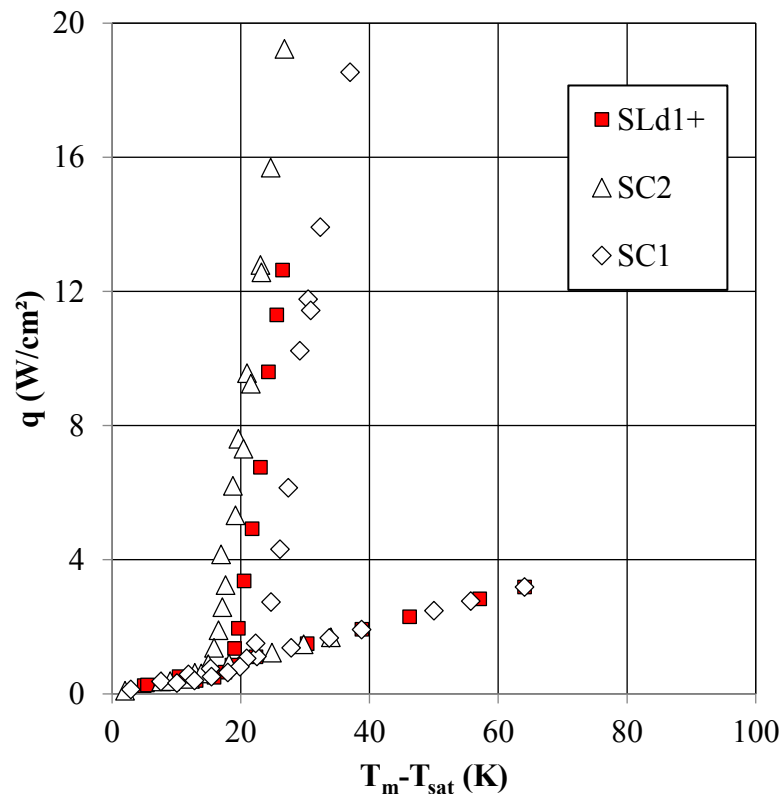


Figure 4.9 : Courbes d'ébullition corrigées des surfaces lisses avec défauts aléatoires et de position contrôlée

Pour l'échantillon SC_1 , quatre essais de reproductibilité ont été réalisés. Dans le test 4 nous avons augmenté le flux pour obtenir un flux critique CHF assez faible de 28 W/cm^2 . Sous la condition imposée de CHF, la surchauffe de la paroi change instantanément de 45 K à 134 K . Trois essais de reproductibilité ont été réalisés avec l'échantillon SC_2 (figure 4.10). Le test 3 étant le dernier réalisé au cours de ce travail de thèse, nous avons augmenté le flux de chaleur jusqu'à atteindre le flux critique, obtenu pour $q = 38 \text{ W/cm}^2$, une augmentation de 10 W/cm^2 par rapport à la surface SC_1 . Jusqu'à une densité de flux de chaleur de l'ordre de 22 W/cm^2 , la courbe d'ébullition est presque linéaire. Pour des densités de flux de chaleur plus importantes, on constate une augmentation plus importante de la surchauffe avec l'augmentation de q , ce qui traduit une dégradation des performances thermiques de l'échantillon.

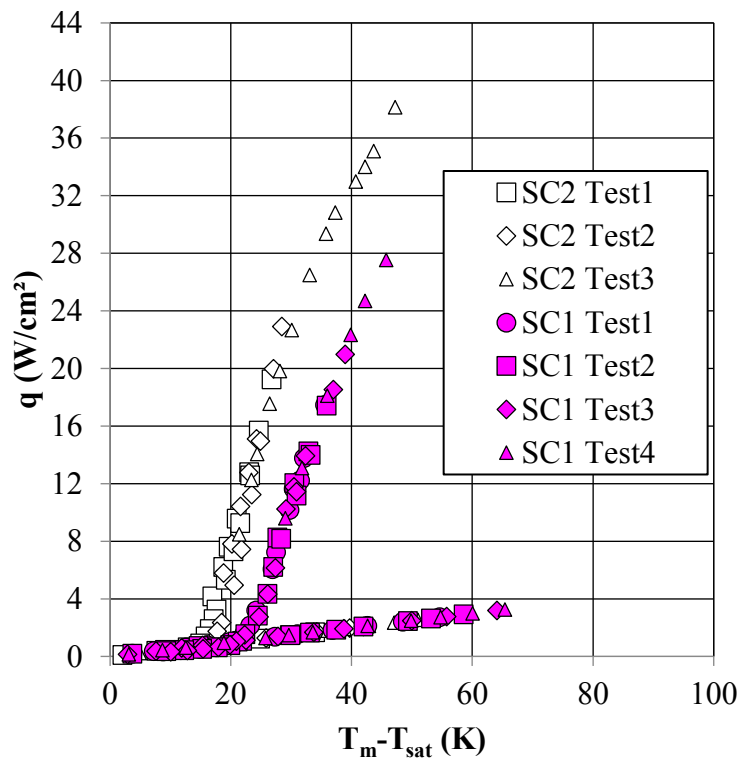


Figure 4.10 : Courbes d'ébullition pour l'échantillon SC_2 jusqu'au flux critique

La figure 4.11 présente l'évolution du coefficient d'échange dans la zone d'étude en fonction de la surchauffe. Le coefficient d'échange passe de $500 \text{ W/m}^2\text{K}$ en convection naturelle à environ $8000 \text{ W/m}^2\text{K}$ pour une surchauffe de 30 K . Au-delà de cette surchauffe, on observe une stabilisation de ce coefficient d'échange jusqu'au flux critique.

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

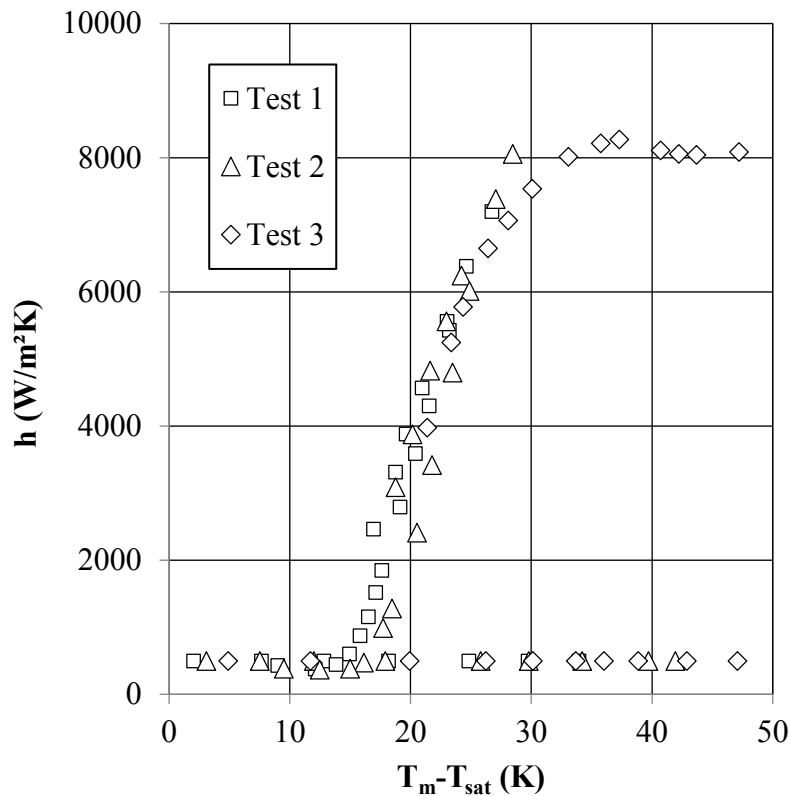


Figure 4.11 : Coefficient d'échange pour l'échantillon SC_2 jusqu'au flux critique

4.1.5. Ebullition sur une surface nano lisse avec un réseau gravé

La création et la détection d'un plasmon de surface (voir chapitre 5), nécessitent l'utilisation des surfaces métalliques gravées par un réseau périodique. Au cours de notre procédé de polissage, nous avons réussi à produire quelques échantillons idéaux c'est-à-dire de rugosité nanométrique et ne possédant pas de défauts apparents. Ces échantillons ont donc été choisis pour fabriquer des réseaux unidirectionnels. L'échantillon gravé S_{NR1} a été testé dans le but de vérifier l'existence ou non d'une relation entre l'ébullition nucléée et la nano structuration. Notons ici que la périodicité du réseau, égale à 740 nm, est 14 fois plus élevée que sa profondeur, égale à 55 nm. Comme le fluide utilisé est très mouillant sur l'aluminium, un tel rapport d'aspect ne doit pas constituer, selon la théorie classique et selon Qi et Klausner (2005), de sites de nucléation, puisque les cavités formées par la gravure peuvent être noyées par le liquide.

La figure 4.12 présente les courbes d'ébullition à flux croissant et décroissant pour l'échantillon S_{NR1} . Les courbes correspondant aux trois tests réalisés sont quasiment confondues, elles mettent donc en évidence la répétabilité des phénomènes.

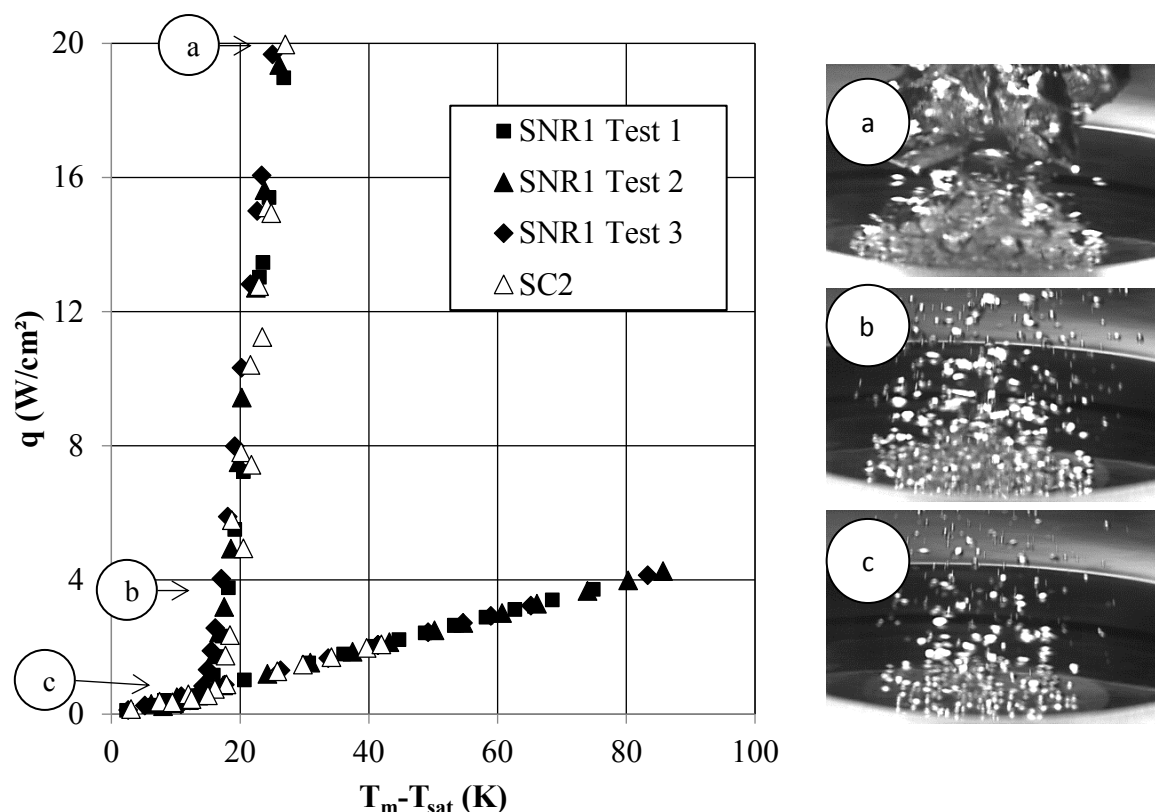


Figure 4.12 : Courbes d'ébullition pour une surface lisse avec réseau gravé (échantillon $SNR1$)

Une grande surchauffe de paroi est nécessaire pour déclencher l'ébullition (comprise entre 84 K et 100 K). Cela confirme que les « canaux » du réseau, ne constituent pas des sites de nucléation puisque les surchauffes atteintes sont similaires à celles des surfaces nano-lisses. Après le déclenchement de l'ébullition, la température de la paroi chute brutalement de 60 K environ (figure 4.12). La courbe d'ébullition présente donc un phénomène d'hystérésis très marqué. A flux décroissant, la courbe est presque une droite verticale ce qui traduit des échanges de chaleur très efficaces une fois la nucléation déclenchée : une augmentation notable du flux de chaleur s'accompagne d'une élévation négligeable de la température de la paroi. Cela s'explique par la densité élevée de bulles qui couvrent la surface, même à densité de flux thermique très faible (point c sur la figure 4.12). Cette courbe d'ébullition est très similaire qualitativement et presque quantitativement à celle obtenue avec l'échantillon $SC2$. Cela pourrait s'expliquer par la présence de défauts lors de la réalisation des rainures, mais c'est une hypothèse qui n'est pas vérifiée.

4.1.6. Effet d'un revêtement sur la surface

Plusieurs échantillons ont été recouverts de différents dépôts (aCH, CeO_2 , aSiCH) afin de modifier la mouillabilité du liquide (acétone) sur la surface. Toutes les tentatives de dépôts que nous avons réalisées ont échoué car les surfaces sont toujours restées très mouillantes à l'acétone (voir chapitre 2, tableau 2.2). Mais, afin de détecter d'éventuelles différences de comportement, nous avons tracé les courbes d'ébullition avec des surfaces pourvues de ces revêtements. Les courbes d'ébullition des surfaces avec dépôt aCH et aSiCH sont présentées en

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

figure 4.13. Pour le dépôt aSiCH, l'effet de rugosité (figure 4.14) ne nous permet pas de distinguer un effet de revêtement sur la surface. Les courbes d'ébullition sont assez similaires pour les deux surfaces avec revêtement aCH. Mais ces essais peu nombreux ne permettent pas d'expliquer cette différence de comportement entre des surfaces possédant des revêtements différents du fait que les mouillabilités sont assez similaires.

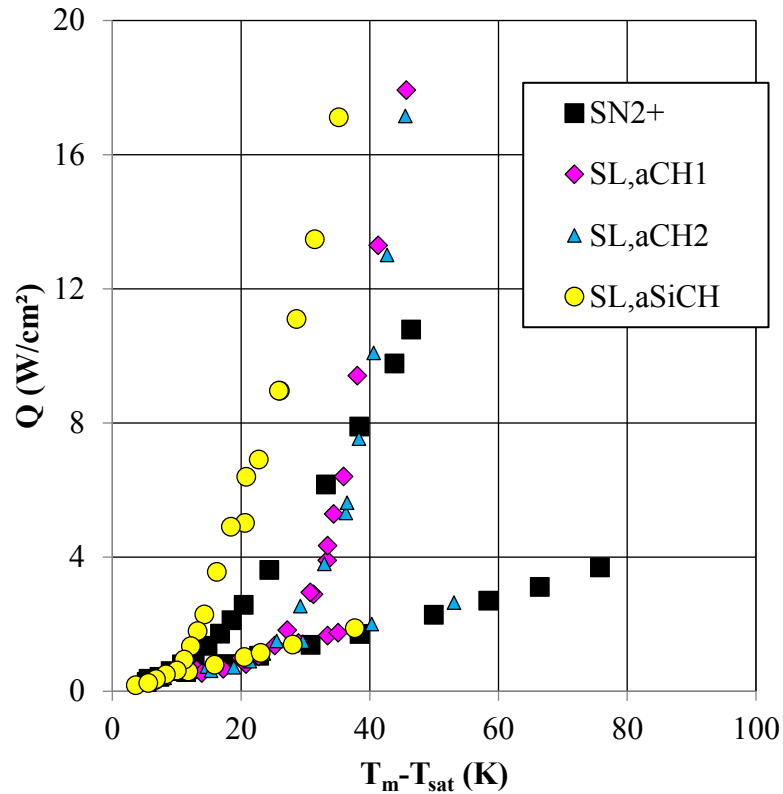


Figure 4.13 : Courbes d'ébullition pour une surface avec dépôt aCH et aSiCH

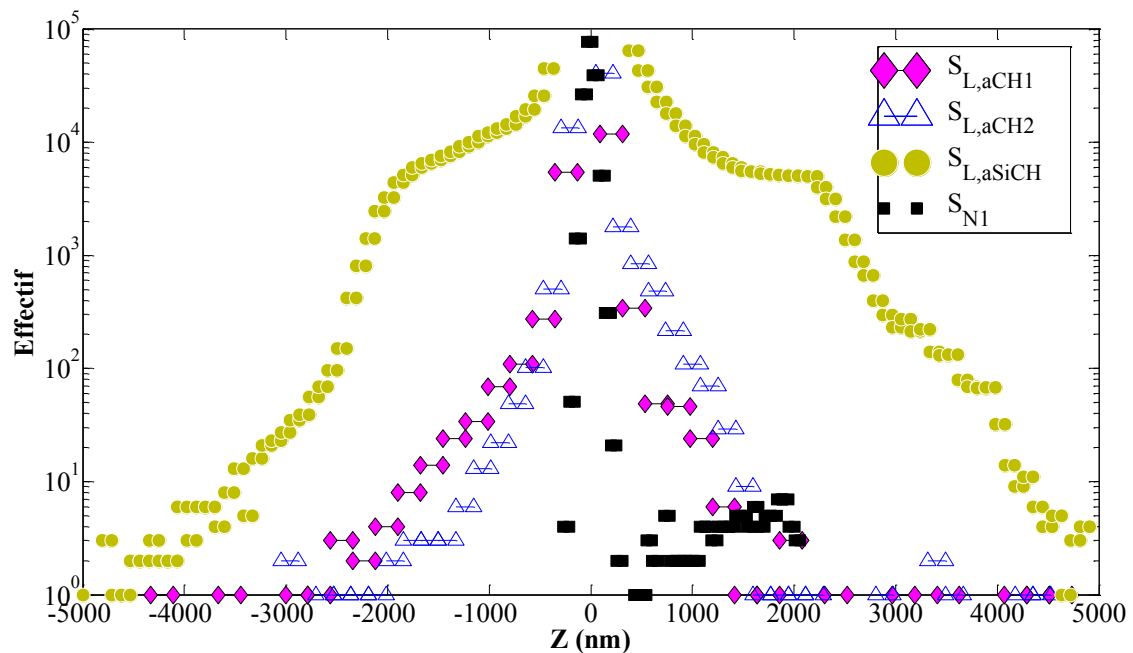


Figure 4.14 : histogramme pour les surfaces comparées en figure 4.13

4.1.7. Comparaison de l'ébullition sur ces différents types de surfaces

Puisque les points a, b et c ont été obtenus pour le même niveau de flux, avec différents types d'échantillons testés, leurs photographies sont rassemblés sur la figure 4.15 afin de les comparer. L'ébullition sur la surface nano lisse avec défauts, se distingue à bas flux (photographie c et b) des autres types de surfaces par la taille des bulles qui sont bien plus petites et leur densité qui est nettement plus élevé. En ce qui concerne la surface nano-lisse avec réseau gravé, l'aspect de l'ébullition se rapproche de celle l'échantillon S_{Ld1+} , ce qui peut expliquer pourquoi ces deux échantillons ont des courbes d'ébullitions assez similaires.

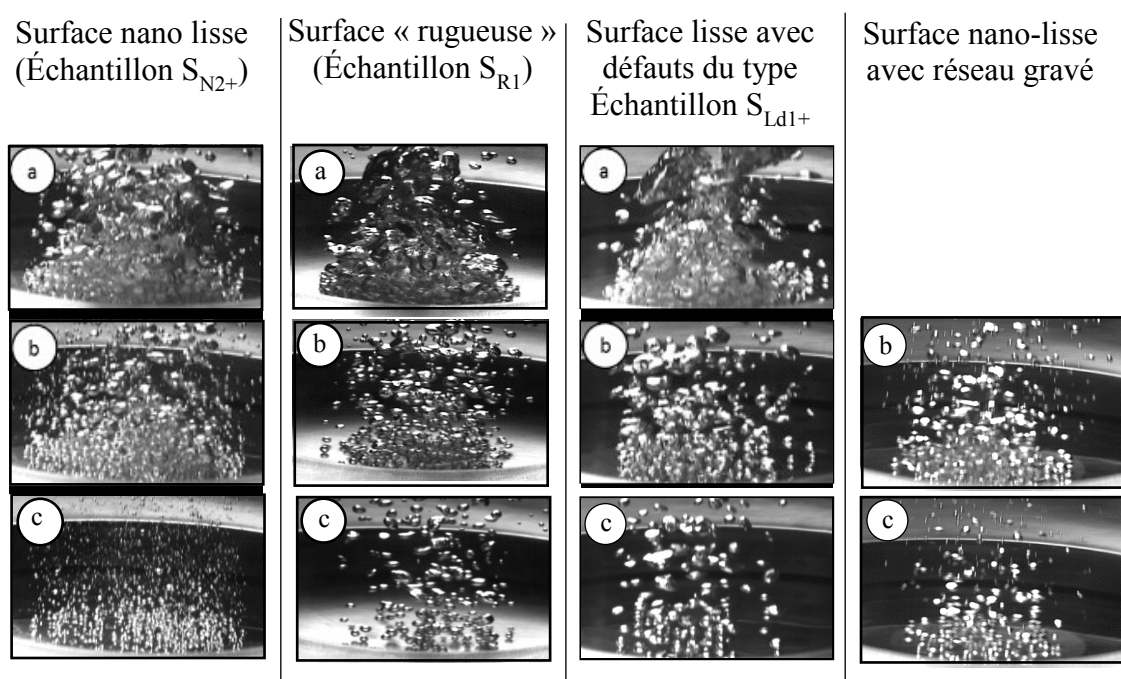


Figure 4.15 : Comparaison de l'aspect de l'ébullition à flux décroissant, entre les 3 types d'échantillon et pour les mêmes densités de flux thermique

La figure 4.16 compare les courbes d'ébullition pour les 4 types de surface (S_{R1} , S_{Ld1+} , S_{N2+} et S_{C2}). Pour les hautes valeurs de flux thermique ($q > 4 \text{ W/cm}^2$) les échanges thermiques sont meilleurs avec la surface lisse avec défauts (échantillon S_{Ld1+}) et la surface S_{C2} car la surchauffe de la paroi est moins élevée et elle n'évolue quasiment pas lorsque la puissance à évacuer s'accroît. Pour les surfaces « rugueuses » et « nanolisses », la forte coalescence des bulles à haut flux détériore considérablement les échanges thermiques. Pour les valeurs de flux thermiques moins élevée ($q < 1 \text{ W/cm}^2$) les courbes d'ébullition des échantillons S_{Ld1+} et S_{R1} (surface rugueuse) se rejoignent. La surface nano lisse S_{N2+} est plus efficace pour un flux thermique surfacique inférieur à 3 W/cm^2 . Cette efficacité s'explique pour le nombre plus important et la taille plus petite des bulles qui couvrent cette surface par rapport aux autres (Figure 4.15, photographies c). La figure 4.17 présente les coefficients d'échange correspondant aux points de la figure 4.16 qui montrent clairement l'intérêt de chacune des surfaces en fonction des conditions expérimentales.

4.1. Comparaison de l'ébullition pour les différents types de surfaces

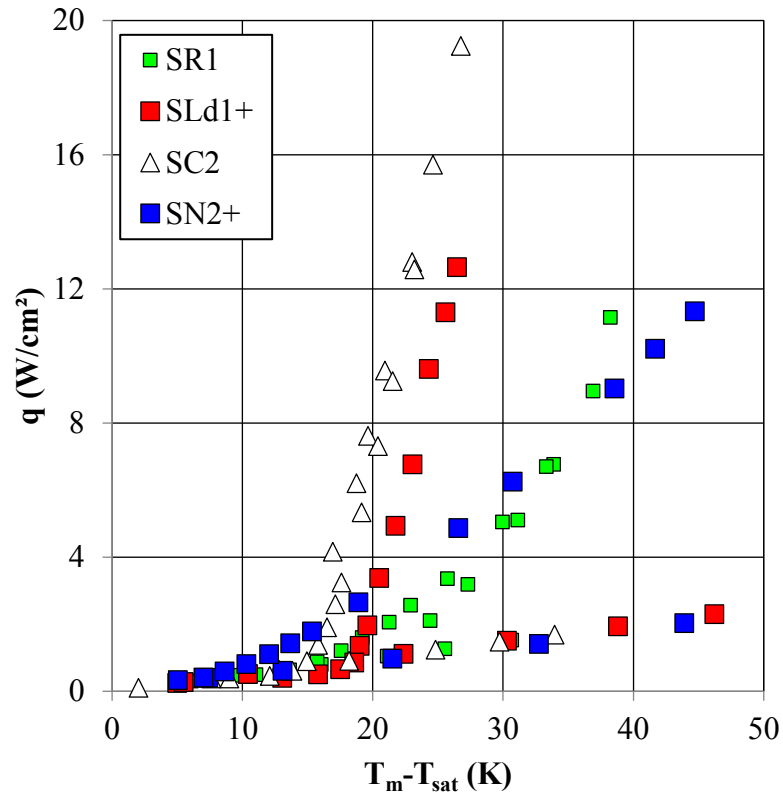


Figure 4.16 : Comparaison des courbes d'ébullition pour les 4 types de surface (nano-lisse SN_{2+} , rugueuse SR_1 , lisse avec défauts SL_{d1+} et SC_2)

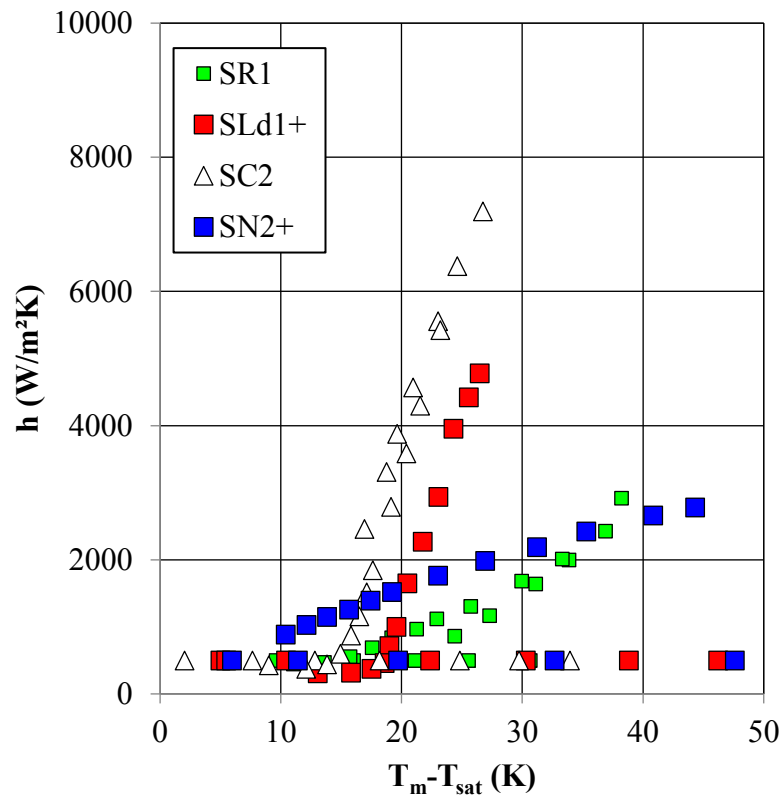


Figure 4.17 : Comparaison des courbes d'ébullition pour les 4 types de surface (nano-lisse SN_{2+} , rugueuse SR_1 , lisse avec défauts SL_{d1+} et SC_2)

4.2. Etude du phénomène de nucléation

Pour les différentes surfaces étudiées dans ce mémoire, le déclenchement de l'ébullition est très variable et a lieu pour des surchauffes comprises entre 20 K et 100 K.

La figure 4.18 représente la chute ΔT_c de température en fonction de la surchauffe ΔT_d nécessaire au déclenchement de l'ébullition, pour toutes les surfaces présentant un phénomène d'hystérésis et les différents essais effectués. A faible surchauffe (< 25 K), la chute de température est très faible et dans certains cas elle est indécélable, c'est le cas pour les surfaces rugueuses. On constate que la chute de température ΔT_c évolue presque linéairement en fonction de la surchauffe ΔT_d bien que le flux correspondant au début et à la fin du déclenchement ne sont pas identiques (figure 4.18).

Dans cette section, on décrit les différents types de déclenchement de l'ébullition en fonction des différents types de surfaces étudiées.

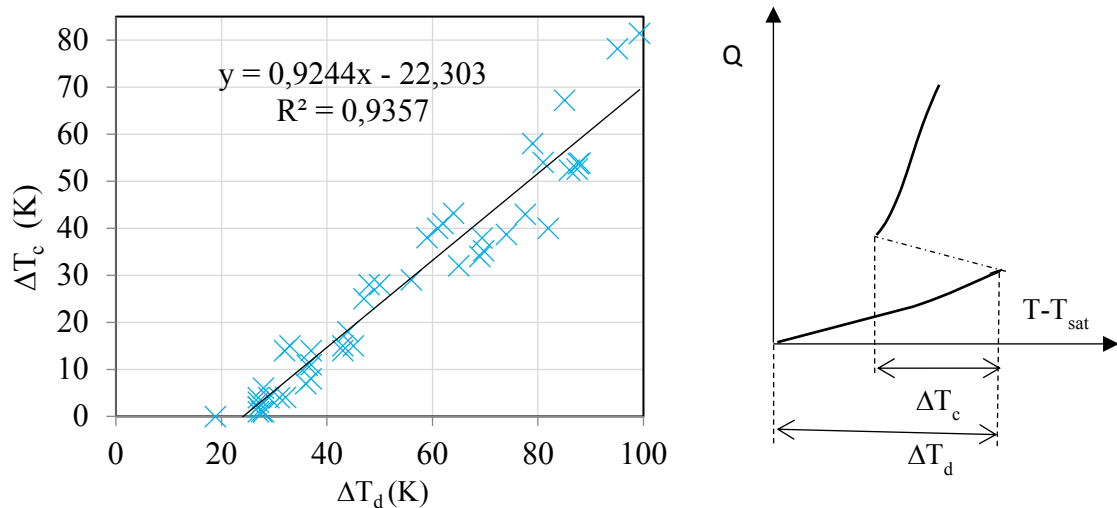


Figure 4.18 : Variation de la chute de température ΔT_c au déclenchement en fonction de la surchauffe d'apparition de l'ébullition ΔT_d

4.2.1. Cas des surfaces nano-lisses sans défauts

La caméra rapide permet de suivre la croissance de la première bulle lors du déclenchement de l'ébullition. Ce phénomène est illustré sur la figure 4.19. Sur cette figure, l'origine des temps est choisie à l'apparition visuelle de la bulle à la caméra. Pour ce test, la surchauffe de la paroi avant le détachement est égale à 73,5 K et le flux thermique parvenant à la surface dans la zone d'étude est égal à 3,5 W/cm². Très près de la surface, un changement de contraste, précédant l'apparition de la bulle, a été détecté. Ce changement de contraste est bien plus visible sur les vidéos que sur les photographies du fait du mouvement du liquide autour du noyau. L'intervalle de temps séparant le changement de contraste à l'apparition visuelle nette de la bulle de vapeur est inférieur à 1 ms. Ce changement de contraste peut donc être assimilé à un embryon de vapeur en formation.

A l'instant initial, un noyau de vapeur de forme hémisphérique apparaît sur la paroi au centre de l'échantillon. Le diamètre de la bulle est de 5 mm à $t = 5$ ms. Cette bulle s'accroît très rapidement pour former une grosse masse de vapeur de forme hémisphérique. A $t = 20$ ms, la

4.2. Etude du phénomène de nucléation

bulle de vapeur recouvre entièrement la partie centrale de l'échantillon, mais elle ne s'étend pas sur l'ailette (son diamètre maximal est de 25 mm). La croissance est très rapide et la bulle formée est de très gros diamètre car le liquide recouvrant la surface est fortement surchauffé donc très instable et a accumulé une grande quantité de chaleur nécessaire pour la formation d'une grosse bulle. A $t = 60$ ms, la bulle se détache de la paroi. En s'élevant, elle prend la forme d'une ellipsoïde de révolution allongée (grand diamètre égal à 30 mm) le long de la paroi. Selon les essais de répétabilité, la durée de croissance de cette masse de vapeur varie entre 45 et 65 ms. La croissance de la grosse bulle s'accompagne d'une légère augmentation de pression dans l'enceinte qui ensuite diminue et se stabilise rapidement à la pression initiale. Après le détachement de cette grosse bulle, un régime permanent est rapidement atteint et la surface de l'échantillon ($\varnothing = 25,4$ mm) se couvre entièrement d'une multitude de petites bulles car l'étalement de la grosse bulle sur la surface a activé de nombreux nano-sites de nucléation. Comme la densité de bulle est alors élevée, les échanges thermiques sont efficaces et la surchauffe de la paroi reste faible. Une chute importante de la température de la paroi (≈ 40 K) accompagne l'apparition de la formation de la grosse bulle car sa croissance nécessite une énergie élevée (chaleur latente).

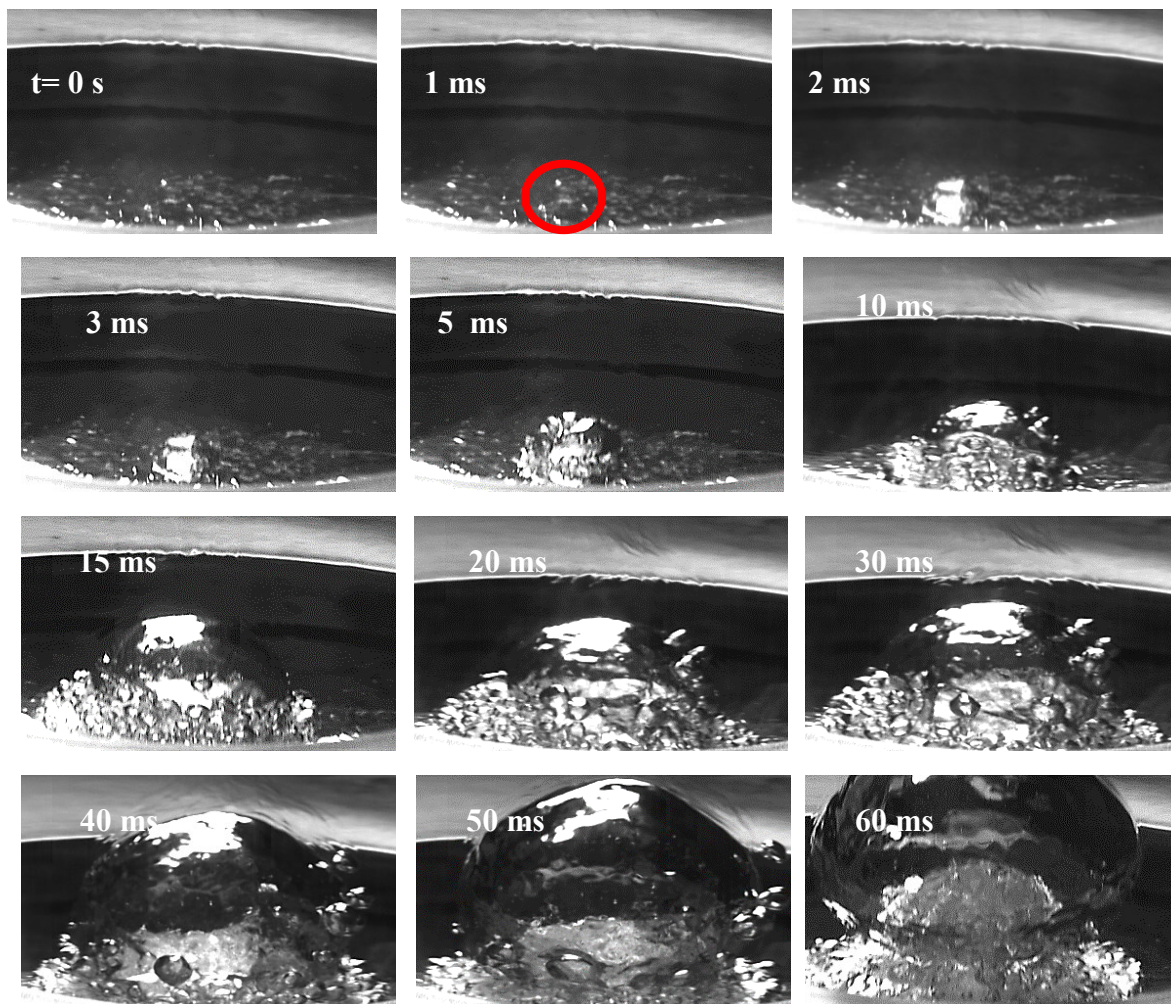


Figure 4.19 : Déclenchement de l'ébullition pour l'échantillon S_{N2+}
(Test n°1, $T_P - T_{sat} = 73,5$ K, $q = 3,5$ W/cm²)

Le même comportement a été observé pour les surfaces S_{N1+} et S_{N1} . L'échantillon S_{N1+} correspond à l'échantillon ultra-lisse S_{N1} en AU4G, mais qui a été recouvert par la suite par une couche d'aluminium pur. Le déclenchement apparaît, là encore, pour de fortes surchauffes ($65^{\circ}\text{C} < \Delta T < 85^{\circ}\text{C}$) sous la forme d'une grosse bulle recouvrant rapidement la surface (entre 5 ms et 30 ms selon les essais).

4.2.2. Cas de la surface rugueuse S_{R1}

Les photographies de la figure 4.20 décrivent les phénomènes lors du déclenchement de l'ébullition. L'origine des temps correspond à l'observation de la première bulle. A $t = 0$ s, une première bulle apparaît (partie gauche de la photographie) pour une densité de flux thermique corrigée faible ($q = 0,85 \text{ W/cm}^2$) et une surchauffe de la paroi peu élevée. Au détachement ($t = 85 \text{ ms}$), son diamètre est petit ($\approx 0,8 \text{ mm}$). Sa vitesse de croissance est beaucoup plus lente en comparaison avec la vitesse de croissance de la première bulle sur une surface lisse (les durées de croissance sont presque identiques, mais le volume de la bulle formée est ici environ 30 000 fois plus faible). A $t = 5,4 \text{ s}$ un second site est activé (partie centrale de la photo). Le détachement de la première bulle, au-dessus de ce second site, s'accompagne d'une légère extension de la zone de nucléation. Dès que la bulle quitte la surface, la surface de nucléation augmente autour de ce deuxième site de nucléation, conduisant à des phénomènes de coalescence et donc à la formation de bulles de vapeur de diamètre plus grand. Ce phénomène peut être dû à une convergence locale du flux de chaleur vers cette zone, du fait que les échanges thermiques sont plus élevés sous la bulle. Dans le cas de la première bulle (site activé à $t = 1 \text{ ms}$, sur la partie gauche des photographies), l'activation de bulles dans son voisinage immédiat ne se fait pas, probablement parce la surface qui l'entoure n'est pas assez rugueuse, ou alors parce qu'elle se situe à l'extrémité de la surface c'est-à-dire près de l'ailette. Rapidement, un équilibre est atteint, l'ébullition est alors stable et la surchauffe de la paroi n'évolue plus. Par rapport à la surface nano-lisse, le phénomène de déclenchement de l'ébullition est localisé, bien moins rapide, progressif et apparaît sous la forme de petites bulles.

4.2. Etude du phénomène de nucléation

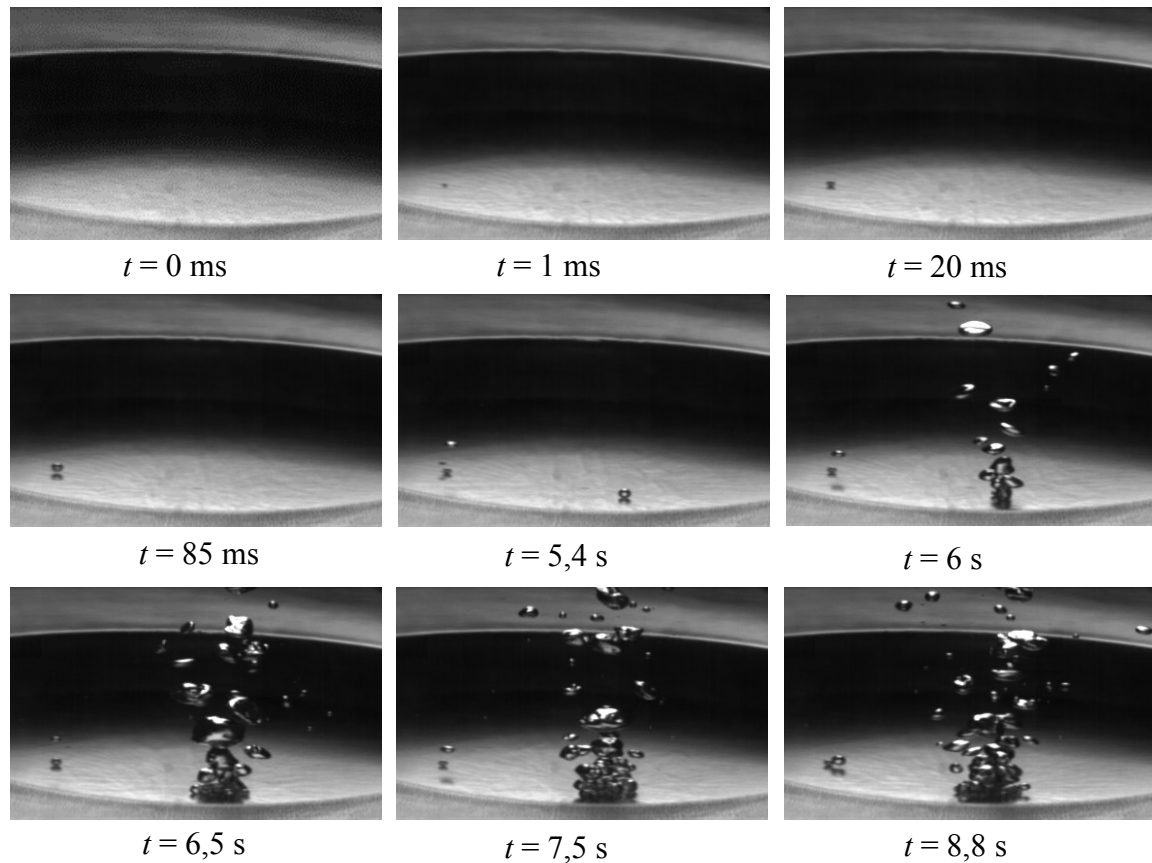
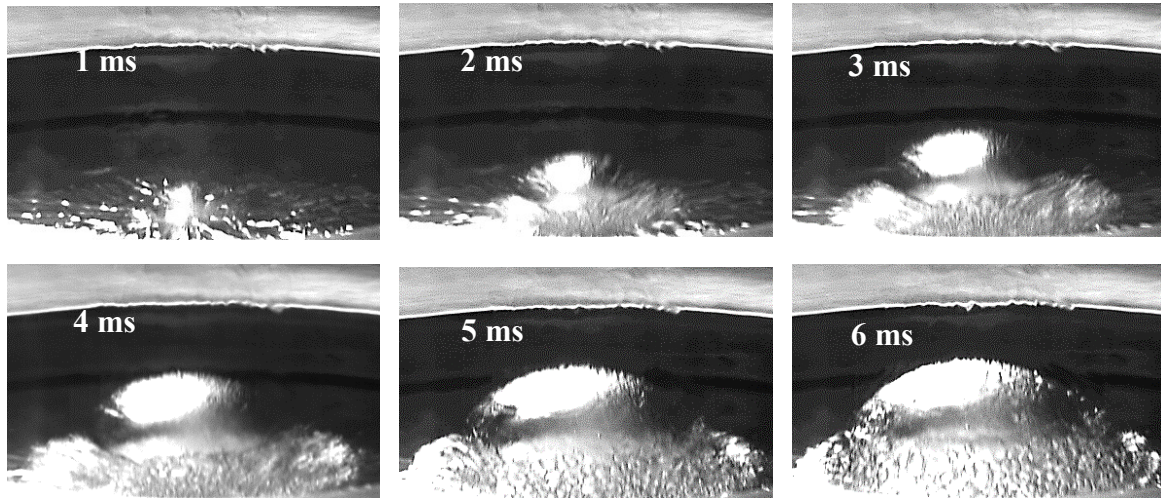


Figure 4.20 : Apparition de la nucléation de l'acétone sur une surface « rugueuse » (échantillon S_{R1})

4.2.3. Cas des surfaces lisses avec défauts

Le déclenchement de l'ébullition est illustré sur la figure 4.21 pour la surface S_{Ld1+} . Comme pour les surfaces lisses, l'apparition de l'ébullition est explosive. Une masse de vapeur apparaît au centre de l'échantillon et elle s'étend rapidement sur toute la surface (sauf l'ailette). La durée de croissance est très brève, inférieure à 10 ms. Sur chaque échantillon présentant ce phénomène, une très bonne répétabilité a été obtenue (figure 4.21 a et b). Juste avant l'apparition nette de la bulle à $t = 2 \text{ ms}$, une légère variation de contraste a été détectée dans le liquide, très près de la surface dans une zone de faible étendue (figure 4.21 b cercle rouge, $t = 1 \text{ ms}$).

a) Test 2



(b) Test 3

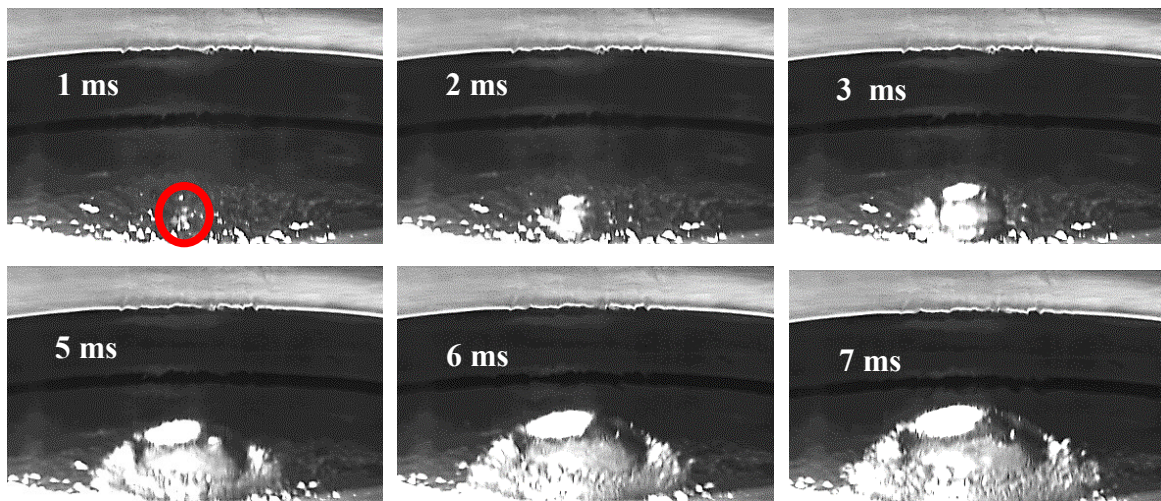


Figure 4.21 : Déclenchement de l'ébullition pour la surface lisse avec défauts S_{Ld1+}

(a) Test 2: $T_p - T_{sat} = 70,6 \text{ K}$; $q = 3,3 \text{ W/cm}^2$

(b) Test 3: $T_p - T_{sat} = 61,3 \text{ K}$; $q = 3,6 \text{ W/cm}^2$

Le second type de comportement observé correspond à celui de la surface S_{Ld2} , il se distingue nettement du précédent. Un mécanisme de nucléation sur un site, similaire à celui des surfaces rugueuses de type S_{R1} , est observé (figure 4.22). L'ébullition apparait pour une surchauffe relativement faible (29 K), un peu supérieure à celle d'une surface rugueuse et pour un flux de chaleur compris entre 1,9 à 2,5 W/cm².

4.2. Etude du phénomène de nucléation

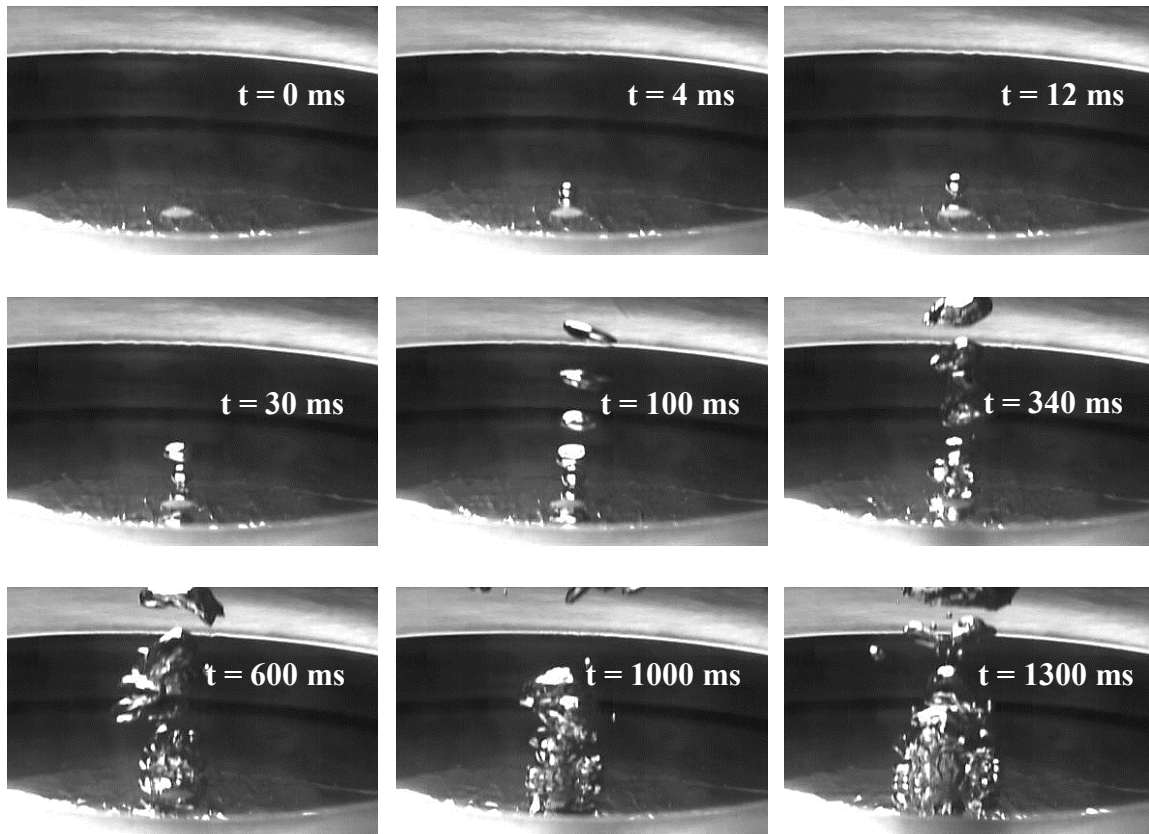


Figure 4.22 : Evolution temporelle de la zone de déclenchement de l'ébullition sur la surface lisse avec défauts S_{Ld2}

Lors du déclenchement, une petite bulle se forme et se détache. Le diamètre de bulle est petit (de l'ordre de 0,8 mm au détachement), son temps de croissance est de 12 ms. Les bulles suivantes sont un peu plus grosses et elles se suivent de très près. Des phénomènes de coalescences verticales peuvent donc avoir lieu entre deux bulles successives. Assez rapidement, la zone d'ébullition s'étend pour former une colonne de vapeur (à $t = 1000$ ms) formée de bulles très proches les unes des autres. Ceci s'explique par un accroissement du flux de chaleur vers cette zone liée, d'une part à des pertes thermiques bien moindres vers l'ailette et d'autre part à une convergence des lignes de flux de chaleur sous la zone d'ébullition où les échanges thermiques sont plus intenses.

Le troisième type de comportement est illustré sur la figure 4.23 avec l'échantillon S_{Ld3} . Ce cas est intermédiaire entre les deux précédents. Tout comme l'échantillon S_{Ld1+} , la nucléation est presque explosive (extension sur la paroi ultra rapide), mais elle apparaît pour une surchauffe de paroi plus faible égale de 40 K (au lieu de 60 K pour S_{Ld1+}). Comme la surchauffe de la paroi est plus faible, la durée de croissance de la première bulle est plus lente (40 ms) et la bulle formée est moins imposante, elle ne couvre pas totalement la surface à son détachement. Cependant, lorsqu'elle quitte la surface, l'ébullition à la paroi se poursuit formant un pied continu de vapeur à la base de la bulle qui continue donc à s'accroître. Ainsi, entre les instants 40 ms (instant du détachement de la bulle) et 120 ms, le volume de la bulle a été multiplié environ par un facteur 20.

Ce type de déclenchement a aussi été observé dans la littérature (Stutz et Moreira 2013) pour une surchauffe comprise entre 40 et 60 K mais pour le couple pentane/cuivre.

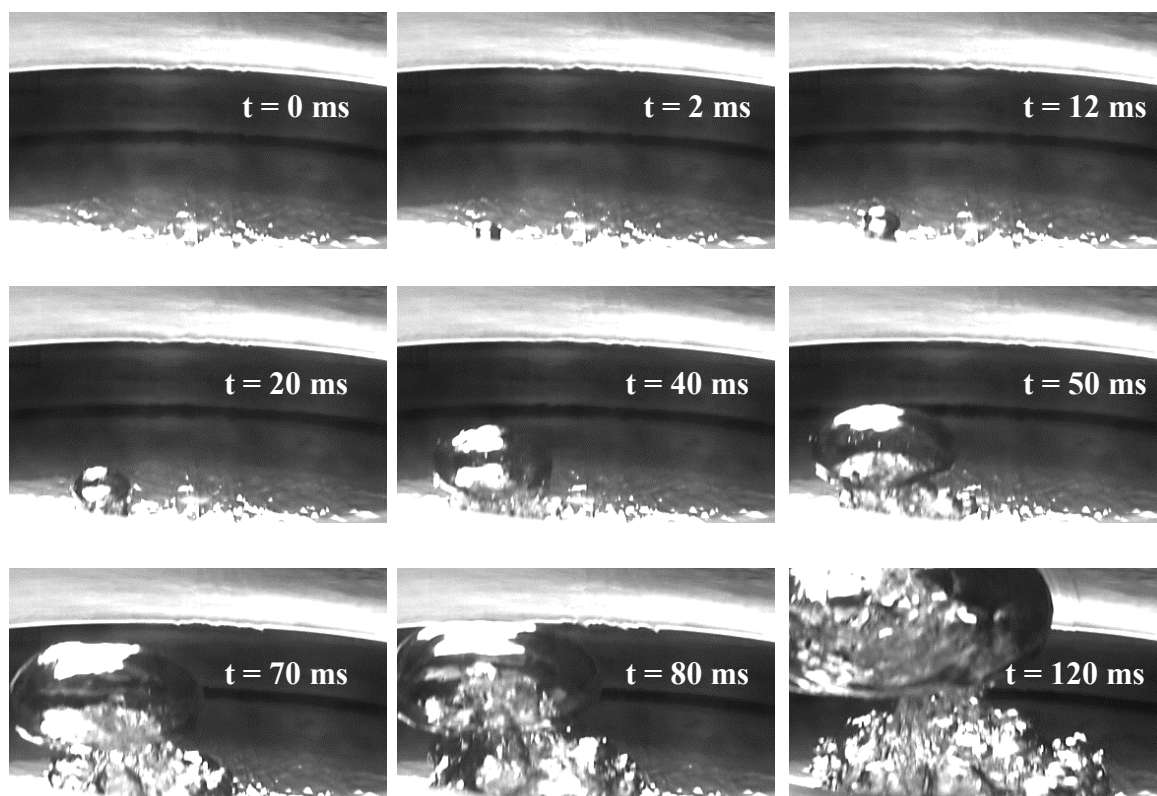


Figure 4.23 : Evolution temporelle de la zone de déclenchement de l'ébullition sur la surface lisse avec défauts S_{Ld3}

4.2.4. Cas des échantillons gravés par un réseau

Dans le cas d'une surface lisse sans défauts, nano structuré par un réseau 1D, la nucléation apparait pour une surchauffe de la paroi comprise entre 84 K et 100 K. Cette surchauffe élevée, similaire, voire supérieure à celle d'une surface lisse non gravée peut s'expliquer par la géométrie de la gravure (figure 4.24), le rapport d'aspect largeur/hauteur du canal assez élevé (de l'ordre de 14), l'angle de la cavité (de l'ordre de 160°). Comme le liquide utilisé est très mouillant (angle de contact inférieur à 18°), les rainures ne peuvent pas piéger un noyau de vapeur préexistant. Elles sont probablement entièrement noyées par du liquide en début d'essai.

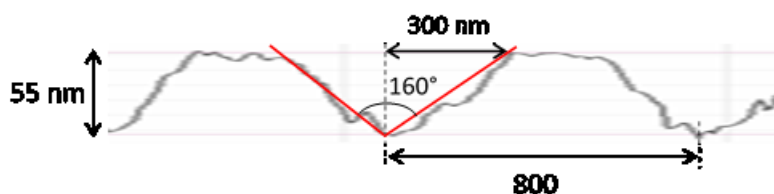


Figure 4.24 : Géométrie du réseau

La surchauffe nécessaire pour déclencher la nucléation est très proche de celle obtenue par différents auteurs (Blander et Katz, 1975 ; Avedissian, 1985) dans le cas de la nucléation homogène de l'acétone sous la pression de 1 bar (118 à 125 °C). Selon Blander et Katz, à partir de mesures expérimentales effectuées sur de nombreux fluides, l'ébullition homogène apparait

4.2. Etude du phénomène de nucléation

à une température voisine de $0,89 T_c$ (T_c est la température critique du fluide). Pour l'acétone ($T_c = 508$ K) cela correspond à une température de 179 °C, donc à une surchauffe de paroi égale à 123 °C ($T_{sat} = 56$ °C à $p = 1$ bar). Cette surchauffe constitue donc une limite pour l'acétone sous la pression de 1 bar. En ce qui concerne la nucléation hétérogène, la surchauffe nécessaire à la nucléation peut être calculée à l'aide de la relation de Griffith et Wallis (1962) valable pour des cavités non réentrantes. Elle est égale à 100 K si le diamètre d'ouverture de la cavité est égal à 200 nm, et à 125 K si ce diamètre est égal à 170 nm. Selon la relation de Griffith et les résultats expérimentaux de Blander, une surface ne possédant pas de cavités (non réentrantes) de diamètre supérieur à 170 nm, ne peut donner lieu à la nucléation hétérogène. Une question se pose donc : la nucléation que l'on obtient ici est-elle hétérogène ou homogène ? La taille extrêmement petite du noyau de vapeur à sa formation (nanométrique), sa croissance extrêmement rapide (explosive à cette surchauffe), sa localisation nécessairement à la surface (zone la plus chaude), ne nous a pas permis de répondre expérimentalement à cette question.

La figure 4.25 présente les premiers instants de l'apparition visuelle de la première bulle au déclenchement de l'ébullition. Le phénomène possède une grande répétabilité sur les cinq tests réalisés. Pour ces essais, la vitesse d'acquisition de la caméra a été réglée suivant les essais entre 3000 et 40000 images par seconde. La position de la bulle à son apparition est indiquée par la flèche (figure 4.25). La résolution du système caméra/objectif est de quelques micromètres.

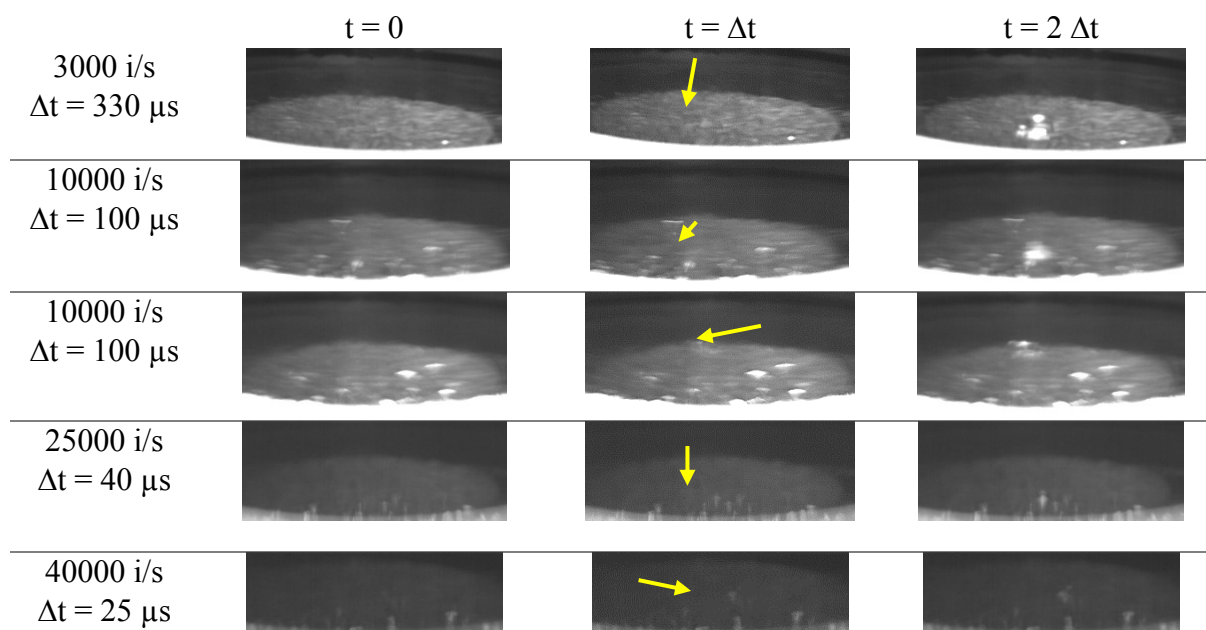


Figure 4.25 : Nucléation de l'acétone (surface S_{NRI})

La formation du noyau de vapeur est invisible à $t = \Delta t$ sur les photographies figées (Δt étant la durée séparant deux images successives). Mais elle est perceptible sur l'écran du PC car elle se manifeste par une fluctuation locale de contraste due à une légère variation locale d'indice de réfraction. Afin de détecter la bulle en formation à $t = \Delta t$, un traitement d'image est réalisé sur Matlab à l'aide d'une fonction qui permet de soustraire deux images afin de mettre en évidence la différence entre les deux images. Ainsi l'image « $t = 0$ » est soustrait des images « $t = \Delta t$ » et « $t = 2 \Delta t$ ». Les résultats correspondant à la vitesse d'acquisition la plus élevée

CHAPITRE 4 : ANALYSE EXPERIMENTALE DE L'EBULLITION NUCLEEE SUR DES SURFACES LISSES, RUGUEUSES ET NANO-STRUCTUREES

(40000 images par seconde) sont présentées sur la figure 4.26. La luminosité et le contraste des images ont été ajustées afin d'accroître la visibilité. Le halo lumineux trahit la présence de la bulle, la taille du halo s'accroît avec le temps.

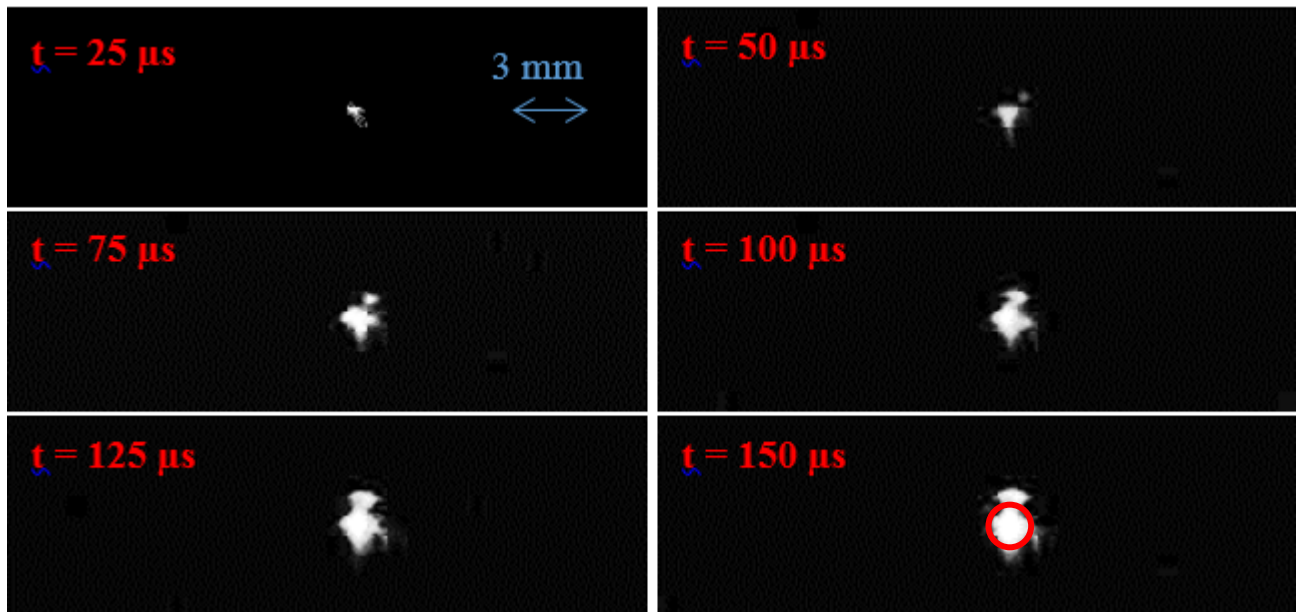


Figure 4.26 : Nucléation de l'acétone (surface S_{NRI})

Le halo n'est pas sphérique : cela est dû à la taille de la bulle (pas très grande devant celle du pixel) à la profondeur de champ du système de vision (plus grande que la taille de la bulle), aux reflets de la lumière sur l'interface et aux variations d'indices autour de la bulle liées aux mouvements convectifs intenses à cette surchauffe. L'incertitude sur le diamètre de la bulle est donc très grande, difficile à évaluer. Une tentative pour déterminer la taille de la bulle a cependant été réalisée. Cela consiste à approcher au mieux la forme du halo à celui d'une forme sphérique (voir cercle rouge sur la figure 4.26 $\Delta T = 150 \mu s$). Malgré l'incertitude élevée, la courbe donnant le diamètre en fonction du temps apparaît linéaire. Le coefficient directeur de la droite de régression permet d'estimer la vitesse de croissance de la bulle aux tous premiers instants. A cette surchauffe, elle est égale à 10 m/s. Cette vitesse est largement inférieure à la vitesse du son dans les gaz (≈ 300 m/s) et les liquides (≈ 1500 m/s). Cela permet de supposer que la surpression générée par la croissance de la bulle et détectée au déclenchement par le capteur de pression est uniforme à chaque instant dans le fluide. L'extrapolation de la droite permet aussi d'estimer l'origine du déclenchement, sur la figure 4.27 elle se situe autour de $t = -16 \mu s$.

4.3. Conclusion

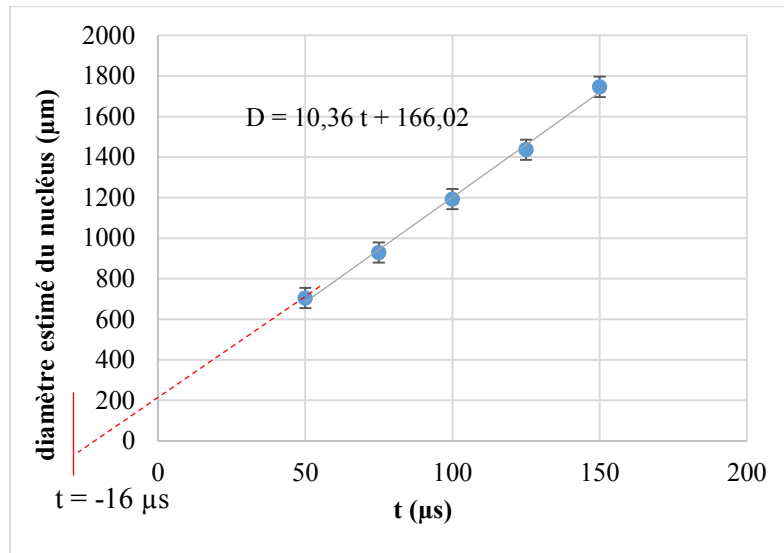


Figure 4.27 : Estimation du diamètre du nucléus en fonction du temps en début de croissance (surface S_{NR1})

4.3. Conclusion

Une étude expérimentale de l'ébullition nucléée a été réalisée à la pression de 1 bar avec de l'acétone à saturation sur des surfaces planes polies en aluminium. Trois types de surfaces planes en aluminium ont été testés : les surfaces ultra lisses ($RMS < 60$ nm) sans défauts, les surfaces lisses ($60 < RMS < 400$ nm) avec défauts et les surfaces rugueuses ($RMS > 400$ nm). Les courbes d'ébullition et les modes d'ébullition diffèrent pour les 3 types de surface.

Les surfaces ultra-lisses sans défauts nécessitent une surchauffe de paroi très élevée pour amorcer l'ébullition (70 à 90 K). Cela est à l'origine de l'apparition d'un phénomène d'hystérésis très prononcé. L'apparition de l'ébullition est explosive, une grosse masse de vapeur se forme et envahit très rapidement la surface. Cette masse de vapeur active un grand nombre de sites. Après détachement, la masse de vapeur laisse place à une multitude de petites bulles qui parsèment de façon homogène la surface. A la transition « convection naturelle – ébullition » le refroidissement de la surface est important (50 à 60 K), et les échanges s'améliorent nettement. A flux décroissant les petites bulles persistent jusqu'à des surchauffes faibles, la densité de bulles demeure élevée et les bulles sont isolées (pas de coalescence). A ces surchauffes basses, l'épaisseur de la couche de liquide surchauffé située au-dessus de la surface est nécessairement très faible, mais cette couche couvre sans doute les plus petites bulles formées par les plus petits sites, ce qui permet de les faire croître et donc de poursuivre l'ébullition.

Dans le cas de surface rugueuse, la surchauffe de l'apparition est plus faible (15 à 30 K). L'ébullition n'est pas explosive. Comme la transition n'est pas brutale, la surchauffe de la paroi ne diminue pas lors de l'apparition de l'ébullition, mais les échanges thermiques s'accroissent (la pente de la courbe est plus grande). Aucun phénomène d'hystérésis n'apparaît donc. Au déclenchement, quelques bulles se forment, le plus souvent une seule. Le diamètre de détachement de cette bulle reste faible ($\approx 0,7$ à 1 mm) et il est similaire à celui des autres bulles successives apparaissant sur le même site. La première bulle ne s'étend donc pas sur la surface donc elle n'active pas, par contamination, les multiples autres sites présents sur la surface. Bien

au contraire, sous son influence, les lignes de flux thermiques convergent sous ce site. Ceci a deux effets : une intensification de l'ébullition à proximité immédiat du site activé sur une surface de petit diamètre, et en contrepartie une densité de flux plus faible autour de cette surface. D'où la formation, à faible flux, de petits îlots d'ébullition bien isolés les uns des autres et apparaissant autour de sites favorables, lorsque le flux de chaleur augmente. A bas flux, l'ébullition s'effectue sous la forme de bulles isolées. A haut flux, donc pour une surchauffe de paroi plus grande, la densité de bulles augmente et les bulles coalescent nécessairement.

Le comportement de la surface lisse avec des défauts est intermédiaire entre ces deux types de surface. Trois types de déclenchement ont été observés. On obtient soit une nucléation explosive avec la formation d'une grosse bulle initiale couvrant toute la surface et caractérisée par une surchauffe de paroi élevée mais pas aussi haute qu'avec une surface ultra-lisse, soit une nucléation similaire à celle d'une surface rugueuse avec la formation initiale de petites bulles, soit une nucléation intermédiaire avec une grosse bulle initiale couvrant une partie de la surface. L'examen des histogrammes de la répartition des « pics » et des « creux » présents sur la surface, semble montrer que ce n'est pas l'état global de la surface (traduit par les nombreux paramètres globaux comme le RMS) qui gouvernent le mode d'ébullition, mais surtout la présence, çà et là, de quelques défauts particuliers, favorables au déclenchement de l'ébullition à certaines surchauffes. La connaissance de la géométrie exacte de ces défauts est donc cruciale pour une analyse fine des phénomènes. Cependant, cette géométrie n'a pu être déterminée avec nos moyens de mesure. Dans cette thèse, ces particularités, ont été appelées « défauts » car elles ne nous ont pas permis d'obtenir les surfaces homogènes initialement désirées pour faire une étude systématique en fonction d'un état de surface contrôlé. Mais concernant le phénomène de l'ébullition, ces particularités géométriques ne sont en aucun cas des défauts, car ils permettent de contrôler les échanges thermiques. De cette étude, il ressort qu'une surface possédant des rugosités de taille non nanométriques permet d'éviter des surchauffes importantes au déclenchement. En contrepartie, des surfaces ultra-lisses permettent, elles, d'obtenir à faible flux la persistance de très petites bulles et donc des échanges thermiques efficaces. L'état de surface doit donc être conçu en fonction du point d'utilisation nominale de l'échangeur. De façon générale, une surface efficace devra pouvoir générer une multitude de petites bulles afin d'assurer des échanges thermiques efficaces aussi bien à bas niveau de flux et à haut niveau de flux, à condition qu'elles soient suffisamment éloignées les unes des autres afin d'éviter les phénomènes de coalescence. Mais quelques sites de plus grand diamètre, devront être aussi être présents sur la surface afin d'éviter l'inconvénient de surchauffe trop importantes au déclenchement.

Un autre degré de liberté, pour obtenir les caractéristiques favorables de la surface et de jouer sur la mouillabilité du liquide sur la surface. Cependant, notre choix d'utiliser de l'aluminium comme surface solide (matériel utilisé par notre partenaire industriel) et de l'acétone afin d'éviter les délicats problèmes d'air dissout, ne nous a pas permis de mener à bien cette étude. L'acétone mouille de façon quasi-parfaite toutes les surfaces avec les revêtements que nous avons testés.

CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE

Dans l'espoir de détecter les premiers instants de la formation du premier noyau de vapeur lors du déclenchement de l'ébullition, nous avons testé une technique basée sur la formation des plasmons de surface. Cette technique largement utilisée à l'heure actuelle, dans les applications (microscopie, codage, guidage) à l'échelle nanométrique, n'a pas encore été utilisée pour l'étude de la nucléation. Pour mener à bien ce travail, nous avons bénéficié de l'expérience du laboratoire Hubert Curien dans ce domaine.

Du fait de la vitesse extrêmement rapide de la croissance des bulles, cette méthode n'a pas pu donner les résultats espérés. Cependant cette expérience n'a pas été négative. Bien au contraire, elle ouvre de nombreuses perspectives de recherche.

Tout d'abord, nous avons pu constater les qualités remarquables de cette technique. Elle permet de mesurer, de façon non intrusive et très sensible, les températures très localisées (échelle nanométrique !) sur une paroi métallique. Elle est capable de détecter la présence d'éléments de taille nanométrique. Aussi, nous l'avons testée sur des phénomènes plus lents que l'ébullition : la condensation et l'évaporation. Il est à noter que ce travail, réalisé à la fin de cette thèse, reste exploratoire et nécessitera des développements ultérieurs pour mieux en apprécier la portée.

5.1. Introduction sur les plasmons de surface

Les plasmons de surfaces correspondent à une oscillation collective des électrons libres à la surface d'un métal en contact avec un milieu diélectrique sous l'effet d'une excitation électromagnétique de haute fréquence, 10^{14} Hz, ce qui correspond à la lumière visible. Il se développe le long de la surface, dans le métal et dans le diélectrique une onde évanescente qui se propage le long de la surface. L'excitation est localisée près de la surface d'un métal. L'amplitude de l'onde évanescente décroît très rapidement (de façon exponentielle) à partir de la surface. L'épaisseur de peau (épaisseur pour laquelle les amplitudes des champs électrique $\vec{E}$ et magnétique $\vec{B}$ sont atténuées à environ 2/3 de leur valeur à la surface) est de l'ordre de 50 nm pour un métal et de 200 nm pour un fluide.

Les plasmons de surface sont des modes de vibration polarisés transverses magnétiques (TM), c'est-à-dire que le champ magnétique évanescent associé à ces plasmons est normal au plan d'incidence. Pour pouvoir exciter les modes plasmons, la direction du champ électrique de l'onde lumineuse incidente excitatrice doit être perpendiculaire à la ligne du réseau, l'onde incidente doit donc être, elle aussi, transverse magnétique (TM). Sur une surface métallique plane il n'est pas possible d'exciter les modes plasmon de surfaces. Dans ce cas, les plasmons de surface n'absorbent pas les photons incidents. Le rôle d'un réseau est de permettre le couplage des plasmons de surfaces aux photons incidents. Dans le cas d'un plasmon de surface

généralisé à l'aide d'une structure à réseau, la puissance diffractée et réfléchiée selon une direction donnée se trouve atténuée. Le signal recueilli présente alors, pour une certaine gamme de longueurs d'ondes situées dans la lumière visible, un pic d'anti-résonance. Le formalisme mathématique classique décrivant les plasmons de surface repose sur les équations de Maxwell.

Historiquement, les plasmons de surface ont été considérés pour la première fois par Sommerfeld en 1899 puis par Zenneck en 1907 et la première observation des plasmons de surface réalisée par Robert W. Wood (1902) a été faite lors de mesures de réflectivité sur des réseaux métalliques. Depuis, le domaine des plasmons de surface s'est fortement développé. A la fin des années 1970, ils furent employés pour la caractérisation des films minces (Pockrand et Swalen, 1978) et pour la spectroscopie (Fleischmann et al., 1974). La grande sensibilité des plasmons de surface à la structure des interfaces permet notamment leur utilisation comme capteurs chimiques (Nylander et al., 1982 ; Liedberg et al., 1983) et biologiques (Homola, 2003 ; Lakowicz, 2006 ; Masson et al., 2010). Les plasmons de surface sont exploités dans de nombreux autres dispositifs, où ils jouent un rôle intermédiaire afin d'améliorer leurs performances, tels que les cellules photovoltaïques (Ferry et al., 2008 ; Atwater et Polman, 2010). Etant très sensibles au milieu extérieur, les plasmons de surface sont exploités en réflectométrie. La faible longueur d'onde de propagation des plasmons a permis d'entrevoir la réalisation de nano-émetteurs (Lethiec, 2014), de circuits de taille très réduites (P. Berini, 2000). Très récemment, les travaux de Sauvage-Vincent (2013) ont porté sur la transmission plasmonique résonnante appliquée à un composant de sécurité optique.

D'un point de vue fondamental, la plasmonique a permis d'étudier le comportement de la lumière à l'échelle nanométrique. L'intense activité concernant la plasmonique a été rendue possible grâce au développement des techniques de nano-fabrication (Holmgaard et al., 2009) et les techniques de microscopie en champ proche (Bachelot et al., 1995).

Les ondes plasmons sont très confinées à la surface des métaux et dans certaines conditions, ces ondes se couplent avec des ondes évanescences elles-mêmes très localisées (sur une épaisseur d'une centaine de nanomètre environ) à la surface des diélectriques (liquide ou vapeur) en contact avec le métal. La grande sensibilité de ces ondes permet de détecter des variations très locales d'indices de réfraction induites, par exemple, par l'apparition de bulles de vapeur de taille nanométriques dans un liquide, ou la formation de nano-gouttes lors de la condensation. C'est afin de détecter de tels nano-germes (bulles ou gouttes) que nous avons testé cette technique.

5.2. Eléments théoriques sur les plasmons de surface

Nous donnons ci-dessous les éléments de base permettant de présenter le principe des plasmons. Afin de ne pas alourdir la présentation, des développements complémentaires seront donnés en annexe.

5.2.1. Configuration permettant d'exciter les plasmons de surface par un réseau

La configuration physique permettant d'exciter par un réseau un plasmon de surface est résumée sur la figure 5.1. L'onde incidente doit être polarisée et être transverse magnétique, c'est-à-dire que le champ magnétique doit être dans un plan parallèle à la surface du réseau. La configuration transverse électrique ne permet pas de coupler les photons de l'onde incidente aux plasmons (voir annexe A2). D'autre part, l'orientation du champ magnétique dans ce plan

5.2. Eléments théoriques sur les plasmons de surface

est primordiale dans le cas d'un réseau unidimensionnel. Les plans d'onde de l'onde incidente doivent être parallèles à la ligne d'invariance du réseau afin d'éviter la diffraction conique (figure 5.2). Pour cela, le champ magnétique doit être orienté selon la ligne d'invariance du réseau. Dans cette configuration, le système est monodimensionnel (invariant par translation selon l'axe y). Les ordres de diffraction sont alors alignés selon une droite. De plus, tous les « plans d'incidences locaux » sont parallèles au plan d'incidence (figure 5.2 b).

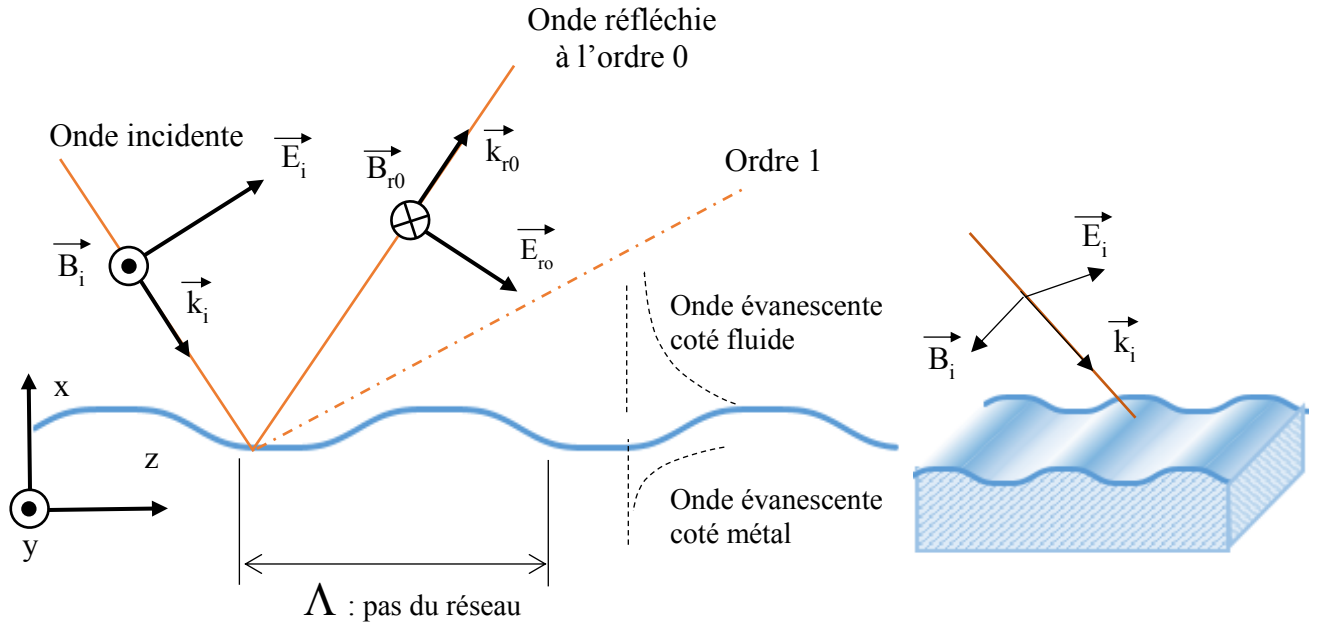


Figure 5.1 : Configuration physique de l'excitation d'un plasmon sur un réseau 1D

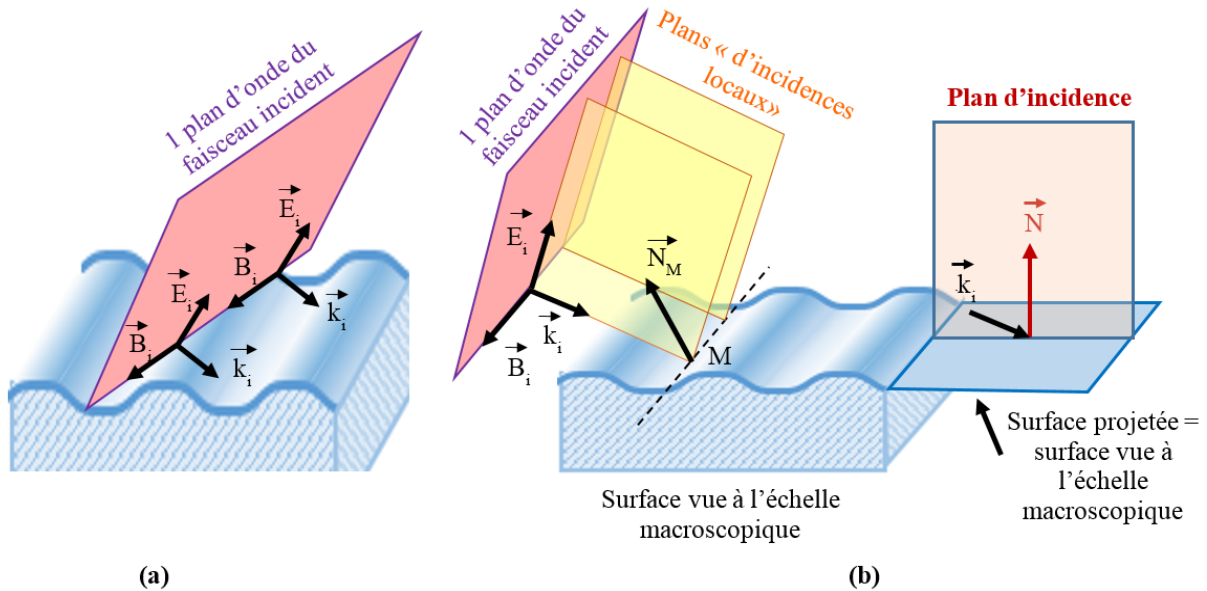


Figure 5.2 : Orientation du faisceau. (a) conduisant à la diffraction conique (b) donnant une diffraction linéaire

5.2.2. Modèle de Drude-Lorentz (ou Drude-Sommerfeld)

Etant des oscillations d'électrons libres, les ondes de plasmons de surface ne peuvent être générées qu'à l'interface entre un métal et un diélectrique (air, verre, liquide, etc.). Les plasmons de surface possèdent des propriétés de particules, incluant donc des énergies et moments spécifiques, et sont donc rattachés à la mécanique quantique. Cependant, pour des milieux dont les dimensions sont supérieures à 10 nm, l'approche classique peut être utilisée de manière satisfaisante. Les paramètres macroscopiques (permittivité diélectrique ϵ , etc.) permettent alors de décrire complètement l'interaction d'une onde électromagnétique et d'un milieu. Le modèle de Drude-Lorentz ci-dessous décrit la permittivité diélectrique ϵ des métaux non magnétiques et permet d'analyser le comportement du métal sous l'effet d'un champ électromagnétique.

Le modèle classique de Drude, malgré sa simplicité, permet de rendre compte d'un certain nombre de propriétés optiques des métaux en considérant que leurs électrons uniques de la couche de valence sont faiblement liés et se comportent comme un gaz d'électrons libres. Pour les métaux, il est valide pour des énergies inférieures à une limite liée aux structures de bandes. Au-delà de cette limite, des transitions entre la bande de valence et la bande de conduction rendent le modèle de l'électron libre très éloigné du comportement réel du métal.

Dans ce modèle, nous considérons l'électron comme une particule ponctuelle classique. Sous l'effet d'un champ électromagnétique $(\vec{E}, \vec{B})$ l'électron libre subit, au sein d'un milieu, la force électromagnétique de Lorentz, une force de frottement proportionnelle à sa vitesse causée par son interaction électromagnétique avec son environnement, et une force de rappel provoquée par l'interaction avec les noyaux, tendant à le ramener à une position d'équilibre. Dans le cas d'un très bon conducteur (tel qu'un métal), la force de rappel agissant sur un électron de conduction (électron libre) est négligeable. Comme à ces vitesses, la composante magnétique de la force de Lorentz est totalement négligeable, l'application du principe fondamental du dynamique appliqué à cet électron libre et permettant de déterminer le déplacement $\vec{u}$ de l'électron, se réduit à :

$$\frac{d^2\vec{u}}{dt^2} = \underbrace{-e\vec{E}}_{\text{composante électrique de la force de Lorentz}} - \underbrace{\frac{m_e}{\tau} \frac{d\vec{u}}{dt}}_{\text{Force de Frottement}} \quad (5.1)$$

Dans cette expression, m_e est sa masse et $(-e)$ est sa charge. E est le champ électrique résultant, somme du champ électrique appliqué et du champ électrique créé par le mouvement des charges.

La grandeur τ est un temps caractéristique représentant la durée du libre parcours moyen de l'électron. Il est typiquement de l'ordre de 10^{-14} s.

Cette équation nous permet d'étudier le mouvement de l'électron libre sous l'effet d'une excitation harmonique de pulsation ω de la forme $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \cos(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})$ que l'on écrit en notation complexe sous la forme :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{i\omega t} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (5.2)$$

i étant le nombre imaginaire pur.

5.2. Éléments théoriques sur les plasmons de surface

En régime permanent, le mouvement de l'électron est aussi sinusoïdal, de même pulsation ω que l'excitation électrique, mais avec un déphasage φ par rapport à celle-ci :

$$\underline{\vec{u}}(\vec{r}, t) = \underline{\vec{U}}_0 e^{i\omega t} e^{-i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (5.3)$$

avec l'amplitude complexe $\underline{U}_0 = U_0 e^{i\varphi}$.

En insérant ces quantités complexes dans l'équation du mouvement (5.1), on obtient la relation entre l'amplitude complexe $\underline{U}_0$ du mouvement, et l'amplitude E_0 du champ électrique appliqué :

$$\underline{U}_0(\omega) = U_0(\omega) e^{i\varphi} = \frac{-e/m}{\omega^2 + i\omega\gamma} E_0 \quad \text{avec } \gamma = 1/\tau \quad (5.4)$$

L'amplitude et le déphasage dépendent donc de la pulsation ω . Finalement :

$$\underline{\vec{u}}(\vec{r}, t) = \frac{-e/m}{\omega^2 + i\omega\gamma} \underline{\vec{E}}(\vec{r}, t) \quad (5.5)$$

A l'échelle macroscopique, on considère un élément de volume d'un nuage d'électrons libres de densité volumique n , comme une seule particule de charge $(-ne)$, de masse nm , vérifiant une équation similaire à celle de la particule seule. Pour des fréquences supérieures à 10^{10} Hz (les fréquences des ondes électromagnétiques lumineuses sont de l'ordre de 10^{14} Hz), l'électron libre oscille autour d'un atome, le milieu métallique peut alors être traité comme un milieu diélectrique. Le vecteur déplacement associé à ce nuage électronique permet de définir le vecteur polarisation $\vec{P}$:

$$\vec{P} = n(-e) \vec{u} \quad (5.6)$$

Dans le cas des milieux homogènes, linéaires et isotropes, le vecteur polarisation est proportionnel au champ électrique extérieur :

$$\underline{\vec{P}} = \epsilon_0 (\underline{\epsilon_r}(\omega) - 1) \underline{\vec{E}} \quad (5.7)$$

Dans cette expression, $\epsilon_0 = 8,85 \text{ F m}^{-1}$ est la permittivité diélectrique du vide et $\underline{\epsilon_r}(\omega)$ est la constante diélectrique du métal ou permittivité diélectrique relative. Cette constante dépend de la pulsation ω et elle est complexe, ce qui traduit un déphasage entre le vecteur polarisation (ou le mouvement des électrons) et le champ électrique.

La combinaison des relations (5.5), (5.6) et (5.7) permet de déduire l'expression de $\underline{\epsilon_r}(\omega)$:

$$\underline{\epsilon_r}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (5.8)$$

$$\underline{\epsilon_r}(\omega) = \epsilon_r'(\omega) + i\epsilon_r''(\omega) \quad (5.9)$$

Les parties réelles et complexes de la permittivité diélectrique relative d'un métal sont donc :

$$\varepsilon_r'(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad (5.10)$$

$$\varepsilon_r''(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega (\omega^2 + \gamma^2)} \quad (5.11)$$

avec $\omega_p^2 = \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m_e}$ (appelée pulsation plasma).

Dans le cas d'un métal ω_p est de l'ordre de 10^{16} Hz (par exemple pour l'or, $\omega_p = 1,4 \cdot 10^{15}$ s⁻¹). Il en résulte que pour un métal, aux valeurs des pulsations correspondant à la lumière visible, on a $\varepsilon_r' < 0$. Ce dernier résultat est très important : il permet d'expliquer pourquoi des ondes évanescentes (une coté diélectrique, une coté métal) peuvent se développer à l'interface d'un couple métal/diélectrique (voir annexe A2).

La figure 5.3 montrent la variation de la permittivité diélectrique relative expérimentale (Hastanin, 2009) de l'aluminium, en fonction de la longueur d'onde dans le visible ($400 \text{ nm} < \lambda < 700 \text{ nm}$). On constate que l'on a bien : $\varepsilon_r' < 0$ et $|\varepsilon_r'| > |\varepsilon_r''|$

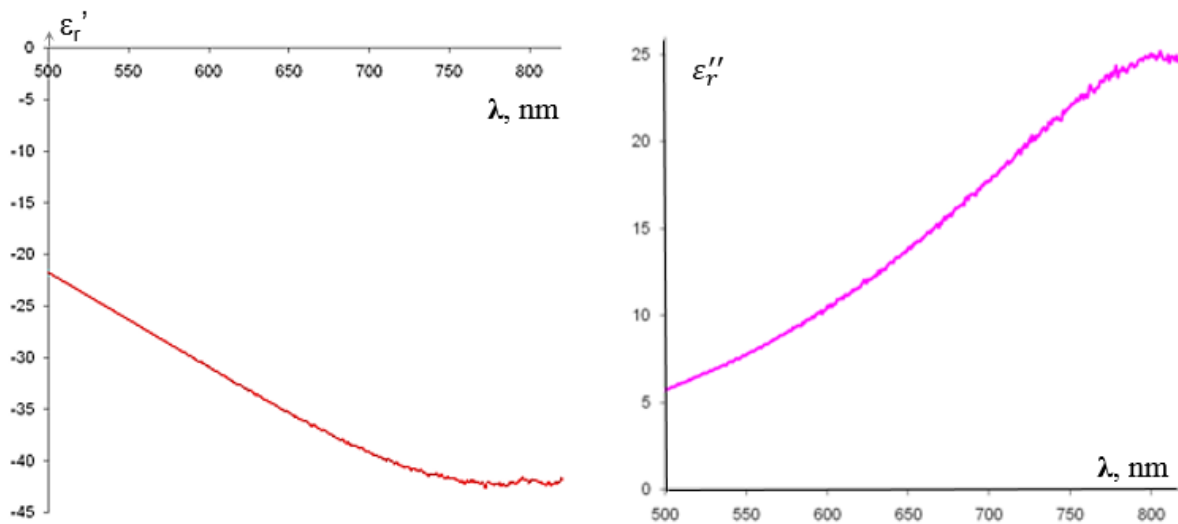


Figure 5.3 : Permittivité diélectrique relative de l'aluminium déposé par pulvérisation ionique (Hastanin, 2009)

5.2.3. Relations de dispersion

Lorsqu'un plasmon est excité, il se développe de part et d'autre de l'interface (figure 5.4) une onde évanescente. Une onde évanescente est une onde plane non uniforme dont l'amplitude décroît exponentiellement en s'éloignant de l'interface. De plus, si le milieu dans lequel se propage l'onde est un milieu absorbant, l'amplitude de l'onde décroît dans la direction de propagation car l'onde cède de l'énergie au milieu. Par exemple, sous forme complexe une onde harmonique évanescente évoluant dans un milieu absorbant, s'exprimera sous la forme simplifiée et approchée, suivante :

5.2. Eléments théoriques sur les plasmons de surface

$$\vec{E}(x, z, t) = \vec{E}_0 \underbrace{e^{-\alpha x}}_{\substack{\text{évanescence} \\ \text{suivant } x \\ \text{(diminution} \\ \text{de l'amplitude en} \\ \text{s'éloignant de} \\ \text{l'interface} \\ \text{ici } \alpha > 0 \text{ si } x > 0)}} \underbrace{e^{-\beta z}}_{\substack{\text{atténuation} \\ \text{lors de la propagation} \\ \text{suivant } z \\ \text{(liée aux pertes} \\ \text{énergétiques :} \\ \text{effet Joule dans} \\ \text{conducteur)}}} \exp[i(\underbrace{k'_z z}_{\substack{\text{propagation} \\ \text{suivant } z}} - \omega t)] \quad (5.12)$$

Ou sous forme équivalente,

$$\vec{E}(x, z, t) = \vec{E}_0 \exp^{i((k'_z + i k''_z) z + i k''_x x - \omega t)} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} k''_z = \beta \\ k''_x = \alpha \end{cases} \quad (5.13)$$

Expression qui s'écrit aussi :

$$\vec{E}(x, z, t) = \vec{E}_0 \exp^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (5.14)$$

Avec $\vec{r} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix}$ est le vecteur position

$\vec{k} = i k''_x \vec{u}_x + (k'_z + i k''_z) \vec{u}_z$ est un vecteur d'onde complexe

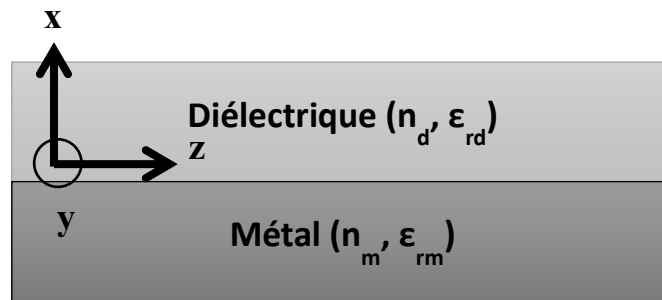


Figure 5.4 : Interface métal-diélectrique

Dans cette approche, le vecteur d'onde $\vec{k}$ peut donc être composé d'une partie réelle et d'une partie complexe. La relation de dispersion est la relation entre la partie réelle k' du vecteur d'onde et la pulsation ω .

La partie réelle k'_z du vecteur d'onde $\vec{k}$ traduit la propagation de l'onde. Lorsque le rapport de k'_z / ω est constant, toutes les composante fréquentielles de l'onde se propagent à la même vitesse, le milieu est dit non dispersif et l'onde ne se déforme pas. Le rapport ω / k'_z représente alors la vitesse de propagation de l'onde. Lorsque ce rapport est une fonction $f(\omega)$ de la pulsation, le milieu est dispersif. La vitesse de chaque composante est différente égale à $f(\omega)$, l'onde se déforme donc au cours de sa propagation.

CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE

La partie imaginaire k_z'' du vecteur d'onde traduit elle l'énergie dissipée dans les milieux. Si cette partie imaginaire dépend de ω , cela signifie que les pertes varient selon la pulsation.

Les composantes du vecteur d'onde, sont reliées à la vitesse de propagation de l'onde dans le milieu et/ou au phénomène d'atténuation dû aux échanges énergétiques avec les milieux. Elles sont nécessairement liées aux propriétés des milieux dans lesquels l'onde se propage et interagit. On établit alors les relations suivantes (voir annexes A2 et A3)

$$\underline{k_z^2} = \frac{\underline{\varepsilon_{rd}} \underline{\varepsilon_{rm}}}{\underline{\varepsilon_{rd}} + \underline{\varepsilon_{rm}}} \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \quad (5.15)$$

$$k_z' \approx \sqrt{\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon_{rm}'}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon_{rm}'}} \frac{\omega}{c} \quad (5.16)$$

$$k_z'' \approx \sqrt{\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon_{rm}'}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon_{rm}'}} \frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon_{rm}''}{2 \varepsilon_{rm}' (\varepsilon_{rd} + \varepsilon_{rm}')} \frac{\omega}{c} = \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon_{rm}'}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon_{rm}'} \right)^{3/2} \frac{\varepsilon_{rm}''}{2 \varepsilon_{rm}'^2} \frac{\omega}{c} \quad (5.17)$$

Dans ces expressions, le symbole $\underline{\quad}$ sous la grandeur indique une grandeur complexe. L'indice m signifie métal, l'indice d signifie diélectrique.

La perméabilité diélectrique relative (ou constante diélectrique) du métal comporte une partie réelle et une partie imaginaire pure : $\underline{\varepsilon_{rm}} = \varepsilon_{rm}' + i \varepsilon_{rm}''$.

La partie imaginaire de $\underline{\varepsilon_{rd}}$ sera négligée devant sa partie réelle. Toutes ces grandeurs dépendent de la fréquence.

L'onde évanescence associée au plasmon est caractérisée par deux grandeurs géométriques : sa profondeur de pénétration dans les milieux ($= 1/\alpha$ dans la relation 5.12) et sa longueur de propagation ($= 1/(2\beta)$ dans 5.12).

La Longueur de pénétration $L_{SP} = \frac{1}{2 k_z''}$ est définie comme la distance parcourue par l'onde évanescence pour perdre 73 % de la puissance (proportionnelle à l'amplitude au carré du champ électrique) qu'elle transporte. Elle détermine donc la résolution spatiale de l'onde évanescence. Elle s'accroît avec la longueur d'onde. Dans le visible ($400 \text{ nm} < \lambda_0 < 800 \text{ nm}$) et le proche infrarouge, L_{SP} varie entre $6 \mu\text{m}$ et $14 \mu\text{m}$ pour le couple aluminium/air.

La profondeur de pénétration x_p est définie comme la distance à l'interface pour laquelle l'amplitude de l'onde est réduite de 73 %. Elle est plus grande dans les diélectriques que dans les métaux. Par exemple, pour une longueur d'onde de 850 nm sur une interface eau-Or, la profondeur de peau dans l'or est 24 nm et elle est 400 nm dans l'eau (Sauvage-Vincent, 2013).

$$x_{pm} \approx \frac{\lambda}{2\pi} \left(\frac{\varepsilon_d + \varepsilon_m'}{\varepsilon_m'^2} \right)^{0,5} \quad (5.18)$$

$$x_{pd} \approx \frac{\lambda}{2\pi} \left(\frac{\varepsilon_d + \varepsilon_m'}{\varepsilon_d^2} \right)^{0,5} \quad (5.19)$$

5.2. Eléments théoriques sur les plasmons de surface

5.2.4. Couplage par réseaux de diffraction

L'un des moyens pour générer des plasmons de surface consiste à utiliser un réseau de diffraction. Une onde lumineuse incidente transverse magnétique (TM) éclaire un réseau de période spatiale Λ et de profondeur de gravure h . La diffraction donne naissance à un ensemble d'ordres d'interférences.

Avant d'aborder le problème du couplage avec les plasmons, rappelons quelques notions de base sur le phénomène de diffraction. La diffraction correspond à une modification de la répartition l'énergie transportée par une onde après sa rencontre avec un obstacle. Dans le cas d'une onde plane incidente monochromatique et uniforme de longueur d'onde dans le vide λ_0 , rencontrant un réseau de réflexion 1D périodique, la puissance réfléchie est maximale selon certaines directions particulières caractérisées par un ordre d'interférence m entier. Ces ordres donnent donc un signal aisément mesurable. En absence de couplage avec les plasmons, le maximum de la puissance réfléchie correspond à l'ordre 0. Une chute significative du pouvoir réflecteur selon cet ordre (ou d'autres ordres entiers) révélera donc le couplage de l'onde avec le plasmon. La puissance manquante étant, en effet, consommée par effet joule dans le métal par l'oscillation des électrons dans le réseau métallique.

Considérons donc un réseau monodimensionnel périodique, éclairé par une onde plane sous un angle d'incidence θ . Soit deux rayons incidents (1) et (2) particuliers de ce faisceau éclairant deux points A et C du réseau et distants précisément de la période spatiale Λ (figure 5.5). Sur ce schéma, le faisceau est orienté de telle sorte que le plan d'incidence soit perpendiculaire à la ligne d'invariance du réseau. Après rencontre du réseau la réflexion n'est pas spéculaire, elle s'effectue selon toutes les directions. Certaines directions correspondent à des puissances réfléchies plus élevées que d'autres. On considère donc une direction de réflexion particulière caractérisée par l'angle β (β peut être compris entre $-\pi/2$ et $+\pi/2$). Après réflexion selon cet angle, les plans d'ondes associés à ces deux rayons se trouvent déphasés, car les rayons associés ont parcouru des distances différentes. L'ordre d'interférence m compare la différence de trajet géométrique entre ces deux rayons (1') et (2') à la longueur d'onde λ de la lumière dans le milieu. On a donc (voir figure 5.5) :

$$m = (d_1 - d_2)/\lambda \quad (5.20)$$

Comme la longueur λ dépend du milieu traversé, on préfère choisir comme référence la longueur d'onde dans le vide $\lambda_0 = \lambda/n_d$ (où n_d est l'indice optique du milieu diélectrique considéré). Par définition, l'ordre d'interférence est alors égal au rapport de la différence de chemin optique δ sur la longueur d'onde λ_0 .

$$m = \delta/\lambda_0 = n_d (d_1 - d_2)/\lambda_0 \quad (5.21)$$

L'ordre d'interférence m (nombre réel) correspondant à la figure 5.5 est donc :

$$m = \frac{\delta}{\lambda_0} = \frac{n_d \Lambda (\sin\theta_i - \sin\beta)}{\lambda_0} \quad (5.22)$$

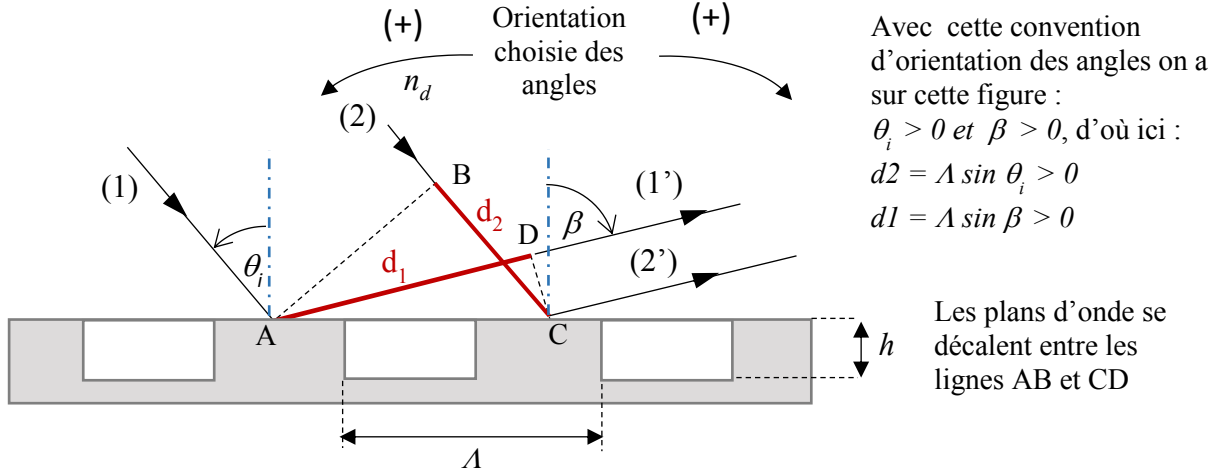


Figure 5.5 : Différence de chemin optique entre 2 rayons incidents distants, sur le réseau, de la périodicité spatiale Λ et diffractés selon la direction définie par l'angle β

D'après (5.22), l'angle de diffraction β associé à l'ordre m , s'exprime en fonction de l'ordre d'interférence m sous la forme :

$$\sin \beta_p = \frac{m \lambda_0}{n_d \Lambda} + \sin \theta_i \quad (5.23)$$

Le nombre d'ordres m entiers que l'on peut obtenir est limité, du fait que le second membre doit rester dans l'intervalle de valeurs $[-1, 1]$. Ainsi, pour un réseau de période spatiale $\Lambda = 760$ nm, une longueur d'onde λ_0 égale à 600 nm (couleur orange), un angle d'incidence égal à 30° et un fluide d'indice optique $n_d = 1,36$, seuls 3 ordres d'interférences p entiers peuvent être réalisés : $m = 0$, -1 et -2 . A ces 3 valeurs de m correspondent respectivement 3 valeurs de β égales respectivement à $+30^\circ$, $-4,6^\circ$ et $-41,3^\circ$ (figure 5.6). Pour une longueur d'onde de 800 nm, on obtient 2 valeurs entières de m vérifiant la condition : $m = 0$ ($+30^\circ$) et $m = -1$ ($-15,9^\circ$). Pour une longueur d'onde de 400 nm on obtient 5 ordres entiers : $m = 0$ ($+30^\circ$), $m = -1$ ($+6,49^\circ$), $m = -2$ ($-15,9^\circ$), $m = -3$ ($-41,3^\circ$) et $m = +1$ ($+62,49^\circ$).

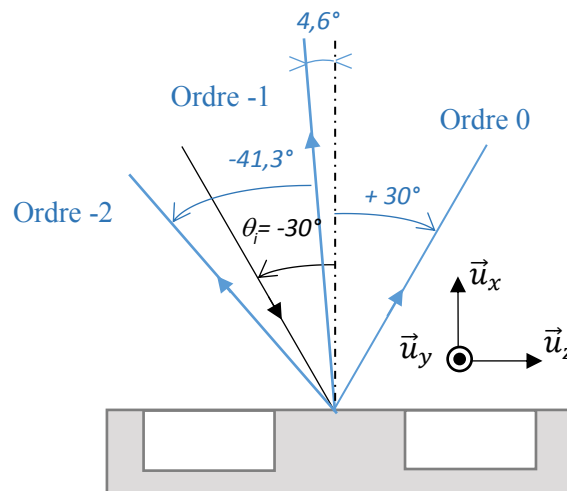


Figure 5.6 : Ordres de diffraction entiers possibles pour un réseau en réflexion avec $\lambda_0 = 600$ nm, $\Lambda = 760$ nm et $\theta_i = 30^\circ$.

5.2. Éléments théoriques sur les plasmons de surface

L'ordre de diffraction utilisée pour cette étude est l'ordre 0 car en absence de couplage avec le plasmon, la puissance diffractée est maximale selon cette direction.

La relation (5.23) permet d'écrire :

$$\underbrace{\frac{2\pi}{\lambda_0} n_d \sin \beta_m}_{\substack{\text{composante suivant} \\ z'z \text{ du vecteur d'onde} \\ \vec{k}_p \text{ associé à l'onde} \\ \text{réfractée à l'ordre } m}} = m \frac{2\pi}{\Lambda} + \underbrace{\frac{2\pi}{\lambda_0} n_d \sin \theta_i}_{\substack{\text{composante suivant} \\ z'z \text{ du vecteur d'onde} \\ \text{incidente } \vec{k}_i}} \quad (5.24)$$

On définit alors un vecteur $\vec{G} = \frac{2\pi}{\Lambda} \vec{u}_z$ (figure 5.7) associé au réseau de diffraction. Ce vecteur est situé dans le plan du réseau et est perpendiculaires aux « franges » du réseau. Il est donc dans la même direction que les projections sur le réseau des vecteurs d'ondes $\vec{k}_i$ et $\vec{k}_r$. La relation (5.24) peut alors s'écrire :

$$k_{mz} \vec{u}_z = m G \vec{u}_z + k_{iz} \vec{u}_z \quad (5.25)$$

L'excitation d'un plasmon de surface n'est possible que si la composante suivant $\vec{u}_z$ du vecteur d'onde $\vec{k}_m$ de l'onde générée par l'onde excitatrice (onde incidente) est égale à celle de l'onde associée au plasmon. Dans le cas d'une surface métallique lisse, cette situation n'est pas possible du fait de la réflexion spéculaire : la composante suivant $\vec{u}_z$ de l'onde réfléchie est égale à celle de l'onde incidente, et elle reste toujours inférieure à celle du plasmon, même en incidence rasante. L'utilisation d'un réseau 1D périodique permet d'ajouter un vecteur supplémentaire $m G \vec{u}_z$ et dans ce cas, le couplage est possible. Il est donc réalisé lorsque la condition suivante est vérifiée :

$$k_{mz} \vec{u}_z = k_{SP} \vec{u}_z \quad (5.26)$$

Où $\vec{k}_{SP}$ est le vecteur d'onde associé au plasmon de surface.

Dans le visible cette condition pour être réalisée. Il en résulte, pour cette longueur d'onde, une absorption d'énergie.

La figure 5.7 représente, en fonction de l'angle β et pour une longueur d'onde donnée, le rapport « puissance réfracté sur la puissance incidente », dans le cas particulier d'un réseau en réflexion très simplifié et sans aucun phénomène de plasmon (réseau non métallique) éclairé en incidence normale : $\theta_i = 0$ (d'où ici la répartition symétrique de la puissance autour de l'angle $\beta = 0$). Cette figure montre que la majorité de la puissance se trouve concentrée selon les directions de réflexion correspondant à des ordres entiers.

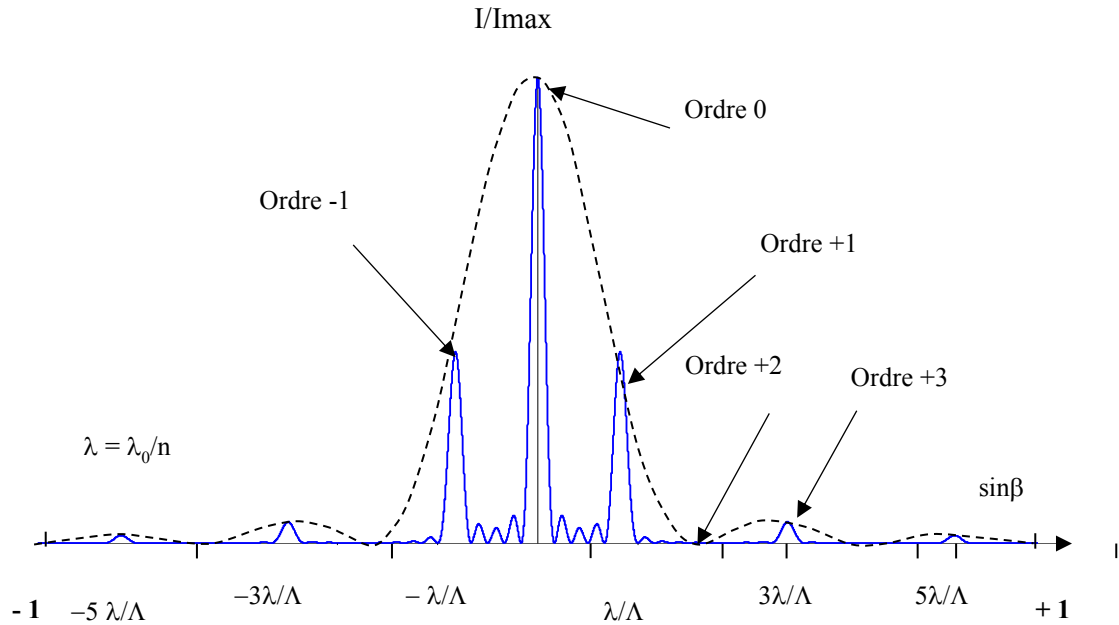


Figure 5.7 : Exemple d'un réseau par réflexion éclairé en incidence normale et sans effet « plasmon ». Eclairement (W/m^2) normalisé reçue par un écran en fonction de l'angle d'observation.

Dans le cas où une longueur d'onde correspondant à un ordre d'interférence m entier, est diffracté en incidence rasante ($\beta \rightarrow \pi/2$) et vérifie la relation (5.26) une forte énergie, correspondant à cette longueur d'onde sera absorbée. Il en résultera, un pic d'anti-résonance très visible sur le signal donné par le spectromètre.

Comme l'ordre $m = 0$ ne permet pas d'exciter le plasmon du fait que le terme supplémentaire $m G$ apparaissant dans la relation (5.25) est nul, l'ordre le plus intéressant à considérer (si le terme supplémentaire est suffisant) est l'ordre $m = 1$, car il transporte la puissance la plus élevée après l'ordre 0.

En ce qui concerne l'observation, il est judicieux de la réaliser selon la direction définie par l'ordre $m = 0$, car selon cette direction (voir relation 5.24) toutes les longueurs d'onde λ_0 ont le même angle de diffraction (β_0 ne dépend pas de λ_0 et est égal à θ_i). On récupère donc, pour cette direction précise, le pic du maximum d'intensité pour toutes longueurs d'onde sauf pour celles qui auront cédées leur énergie au plasmon.

5.2.5. Détermination de la longueur d'onde correspondant à une absorption maximale

Les considérations précédentes montrent que le maximum d'absorption est obtenu pour une longueur d'onde diffractée en incidence rasante associée à un ordre de diffraction m entier non nul, positif (avec nos choix d'orientation des angles) et le plus faible possible. L'expérience montre que, dans le visible, l'ordre $m = 1$ est suffisant. Dans ce qui suit, nous allons donc déterminer, en fonction de l'angle d'incidence θ_i , la longueur d'onde la plus absorbée par le phénomène de plasmon.

Dans le cas d'une incidence rasante pour la longueur d'onde particulière λ_0 , $\sin(\beta) = 1$. Si d'autre part, l'ordre m est égal à 1 pour cette longueur d'onde, l'équation 5.23 donne :

5.2. Éléments théoriques sur les plasmons de surface

$$\lambda_0 = n_d \Lambda (1 - \sin\theta_i) \quad (5.27)$$

Il est à noter que l'indice n_d dépend de la température et dans une moindre mesure de la fréquence dans le visible (pour un fluide comme l'acétone). Comme $n_d \approx 1$ pour la phase vapeur et $n_d \approx 1,36$ pour l'acétone liquide à la température de 20°C, la longueur d'onde correspondant au pic d'absorption correspondant au liquide est 1,36 fois plus élevée que celle correspondant à la vapeur sèche ou à l'air.

Une autre méthode pour obtenir la longueur d'onde λ_0 convenable est d'utiliser les résultats théoriques établis pour les plasmons. Selon la relation (5.24), le plasmon est excité si le vecteur de propagation $\vec{k}_{SPZ}$ associé à l'onde de plasmon correspond à la composante suivant $\vec{u}_z$ du vecteur d'onde associé à l'ordre de diffraction $k_{mz}\vec{u}_z$. La combinaison des équations (5.25) et (5.26), permet d'obtenir, à l'ordre $m = 1$, le résultat suivant :

$$k_{SPZ} = \frac{2\pi}{\Lambda} + \frac{2\pi}{\lambda_0} n_d \sin\theta_i \quad (5.28)$$

Selon les éléments théoriques sur les plasmon, en négligeant la partie complexe de la permittivité du métal devant sa partie réelle ($|\epsilon_{rm}''| \ll |\epsilon_{rm}'|$), on a :

$$k_{SPZ} \approx \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_{rd} \epsilon_{rm}'}{\epsilon_{rd} + \epsilon_{rm}'} \right)^{0,5} = \frac{2\pi}{\lambda_0} \left(\frac{\epsilon_{rd} \epsilon_{rm}'}{\epsilon_{rd} + \epsilon_{rm}'} \right)^{0,5} \quad (5.29)$$

En combinant (5.28) et (5.29), on trouve :

$$\lambda_0 \approx n_d \Lambda \left(\frac{1}{n_d} \left(\frac{\epsilon_{rd} \epsilon_{rm}'}{\epsilon_{rd} + \epsilon_{rm}'} \right)^{0,5} - \sin\theta_i \right) \quad (5.30)$$

Compte tenu de l'approximation, la relation (5.30) est bien proche de la relation (5.27) puisque dans un métal et dans le domaine du visible, la valeur absolue de la constante diélectrique réelle $|\epsilon_{rm}'|$ est bien plus faible de celle d'un fluide ϵ_{rd} . On a alors :

$$\left(\frac{\epsilon_{rd} \epsilon_{rm}'}{\epsilon_{rd} + \epsilon_{rm}'} \right)^{0,5} \approx (\epsilon_{rd})^{0,5} = n_d$$

La longueur d'onde correspondant à l'ordre $m = 1$, déterminée à l'aide des relations (5.27) et (5.30) est tracée pour différents angles d'incidences θ_i sur la figure 5.8, dans le cas de l'acétone liquide ($n_d \approx 1,36$) et de l'air ou la vapeur d'acétone ($n_d \approx 1$) en contact avec l'aluminium. Le pas Λ du réseau est pris ici égal à 760 nm, comme dans les échantillons réalisés. Dans le cas d'un gaz, les deux relations donnent des résultats quasi-identiques ; dans le cas de l'acétone liquide, l'accord est moins satisfaisant et il diminue pour les longueurs d'onde les plus basses. Cependant l'accord reste bon et les deux relations peuvent être utilisées pour prédire la longueur d'onde absorbée. La relation (5.27) semble plus commode car elle ne nécessite pas de connaître la constante diélectrique réelle du métal.

En ce qui concerne l'acétone liquide, la longueur d'onde λ_0 correspondant à l'absorption maximale est comprise entre 400 nm et 700 nm. Ce domaine de longueur d'onde se situe bien

CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE

dans la largeur de bande commune d'émission de la lampe et de détection du spectromètre (entre 360 nm et 1000 nm). D'autre part, ces longueurs d'ondes correspondent à un angle d'incidence compris entre 15° et 35°. Les dimensions de notre maquette nous interdisent des angles supérieurs à 55°, le rayon réfracté à l'ordre 0 doit en effet pouvoir ressortir de l'enceinte. L'encombrement du système émission-détection rend difficile l'utilisation d'angles inférieurs à 10°. Notre dispositif est donc bien dimensionné pour cette étude.

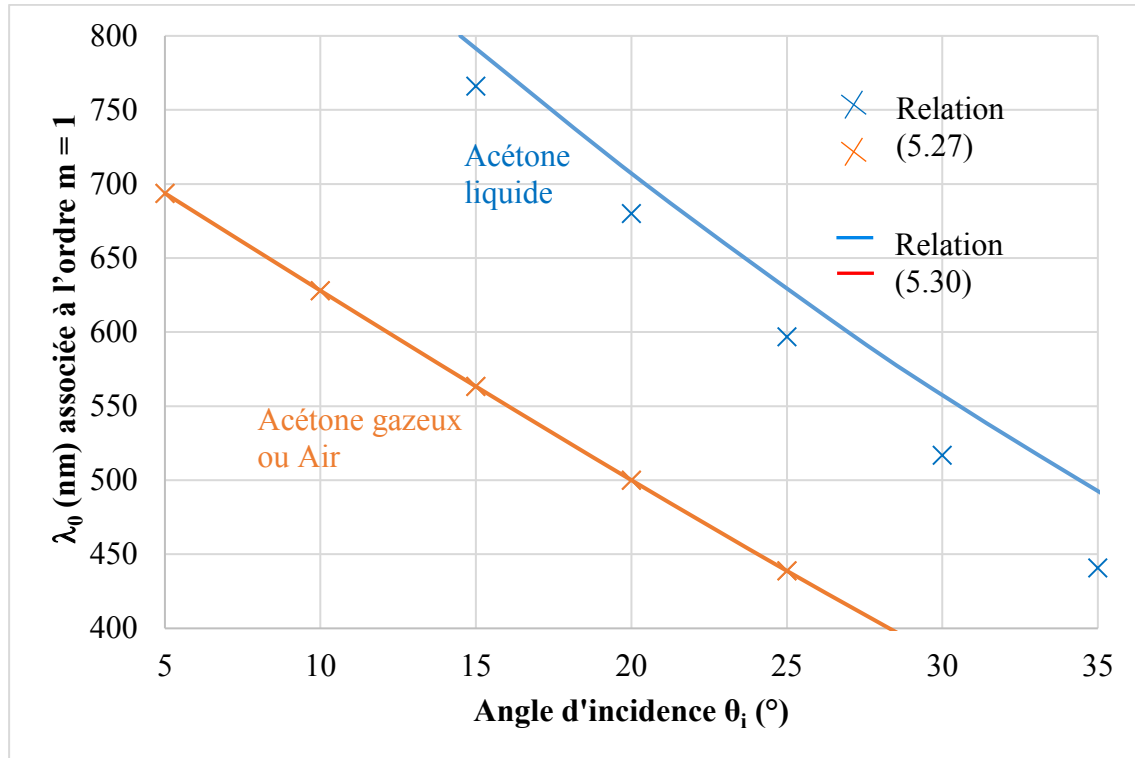


Figure 5.8 : Evolution du pic d'absorption du plasmon en fonction de l'angle d'incidence pour l'interface aluminium/acétone et aluminium/gaz

5.2.6. Effet de la période du réseau métallique et de l'indice de réfraction du milieu

Dans le but d'étudier l'effet de la période du réseau de diffraction sur la réponse plasmonique, une onde incidente avec un angle d'incidence est imposée sur l'interface aluminium/acétone. Dans les cas $\theta_i = 15^\circ$, 25° et 30° , l'équation (5.30) permet de trouver les résultats présentés sur la figure 5.9. Pour obtenir une réponse plasmonique dans le domaine visible en fonction de différents angles utilisés (figure 5.9), une période entre 700 nm et 800 nm est idéale.

5.2. Eléments théoriques sur les plasmons de surface

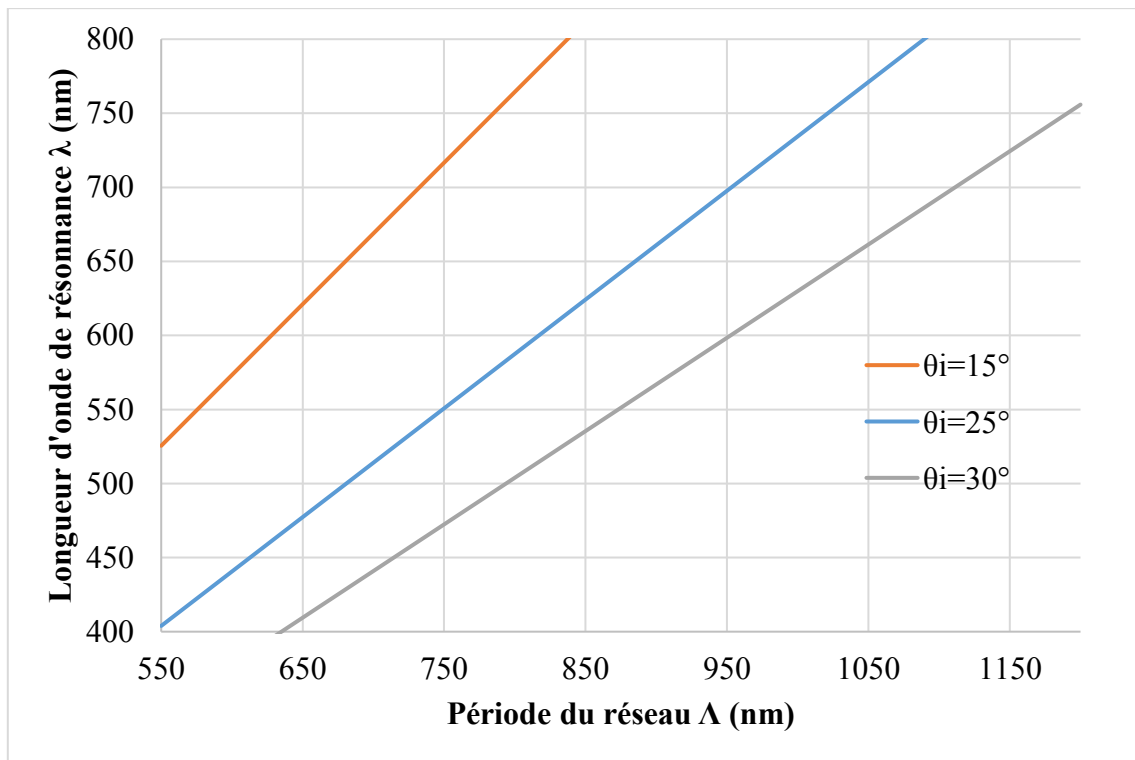


Figure 5.9 : Evolution de la longueur d'onde du pic plasmon en fonction de la période du réseau de diffraction

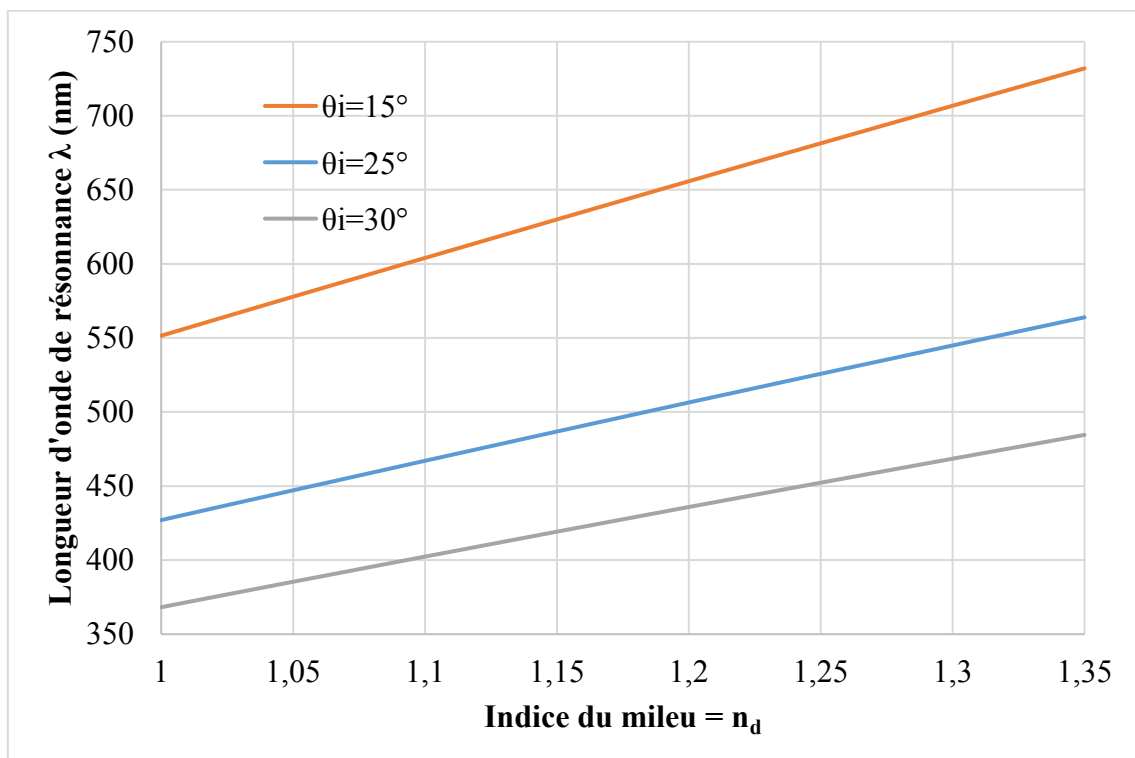


Figure 5.10 : Evolution de la longueur d'onde du pic plasmon en fonction de l'indice de milieu diélectrique

La réponse plasmonique est liée fortement à la permittivité du milieu diélectrique sur la couche plasmonique. Le changement d'indice du milieu diélectrique (acétone) de l'état liquide ($n = 1,35$) à l'état vapeur ($n = 1$) conduit à un changement de permittivité diélectrique ($n^2 = \epsilon_d$). La figure 5.10 montre le déplacement de la position de la longueur d'onde de résonnance en fonction de l'indice du milieu. Une augmentation de l'indice du milieu donne une variation positive de la longueur d'onde de résonnance plasmonique.

5.2.7. Propriétés géométriques des plasmons de surface

Les caractéristiques « géométriques » des plasmons de surface (distance de propagation L_{SP} , profondeur d'atténuation x_p) sont calculées à partir des relations théoriques établies en paragraphe 5.2.3. La figure 5.11 présente, en fonction de la longueur d'onde incidente, l'évolution de la profondeur de pénétration x et la longueur de propagation L_{SP} des ondes évanescentes associées au plasmon de surface pour les interfaces aluminium/acétone et aluminium/air. Il est à noter que la permittivité diélectrique de l'acétone liquide varie en fonction de la longueur d'onde (figure 5.3). Le concept de milieu semi infini est valable dans notre cas, car la couche d'aluminium déposée est largement supérieure (cinq fois plus) que la profondeur de pénétration de l'onde évanescente dans le métal.

Sur la figure 5.11, x_{pair} , x_{pd} et x_{pm} représentent respectivement les hauteurs d'atténuation (épaisseur de peau ou profondeurs d'atténuation) des ondes évanescentes générées par le plasmon de surface, coté air ou gaz, coté acétone liquide ou coté métal. Le symbole L_{SP} correspond à la distance de propagation des ondes évanescentes pour les couples « aluminium/acétone liquide » ou « aluminium/air ». L'atténuation caractérisée par L_{SP} correspond à des pertes d'énergie (effet Joule dans le métal), elle est donc reliée à la chute de la puissance réfléchie associée à la longueur d'onde impliquée dans l'excitation du plasmon. La figure 5.11 montre que la longueur de propagation est très courte, de l'ordre du micromètre (environ une dizaine de longueurs d'onde seulement), ce qui dénote une atténuation forte. Ce phénomène d'absorption de l'énergie devrait donc être nettement apparent sur le signal recueilli par le spectromètre. En ce qui concerne la profondeur de pénétration x des ondes évanescentes elle est encore plus faible, quelques centaines de nanomètres dans les fluides, 15 à 20 nm dans le métal. Ce qui signifie que le système devrait être sensible à la présence de noyaux de tailles nanométriques. La hauteur d'atténuation x_{pd} dans l'acétone liquide varie entre 190 et 440 nm. La hauteur d'atténuation x_{pair} dans l'air ou dans la vapeur est 1,8 fois plus élevée que celle dans l'acétone liquide.

Dans un système plasmonique réel la longueur de propagation de plasmons superficiels est inférieure à la valeur calculée théoriquement. En effet, les pertes d'énergie induites par les défauts, la rugosité de surfaces, des impuretés présentées dans un multicouche réel sont supposées infiniment petites. D'autre part, les éléments de théorie présentés plus hauts sont des éléments très simplifiés. Ils conduisent à des expressions analytiques et ils permettent de saisir les phénomènes de base associés aux plasmon. Mais, ces éléments ne tiennent pas compte de la géométrie du réseau : forme (sinusoïdal, triangulaire, carré, etc.), profondeur des gravures, etc. L'unique paramètre géométrique qui l'on a considéré est la période spatiale Λ du réseau. Or il est clair qu'à l'échelle de la longueur et plus encore des plasmons (épaisseur de pénétration dans le métal), ces caractéristiques géométriques peuvent avoir une influence loin d'être négligeable.

5.2. Éléments théoriques sur les plasmons de surface

Dans le paragraphe suivant, l'influence de ces paramètres géométrique a été simulée, dans un but de dimensionnement du réseau, par logiciel dédié au couplage d'un plasmon par un réseau.

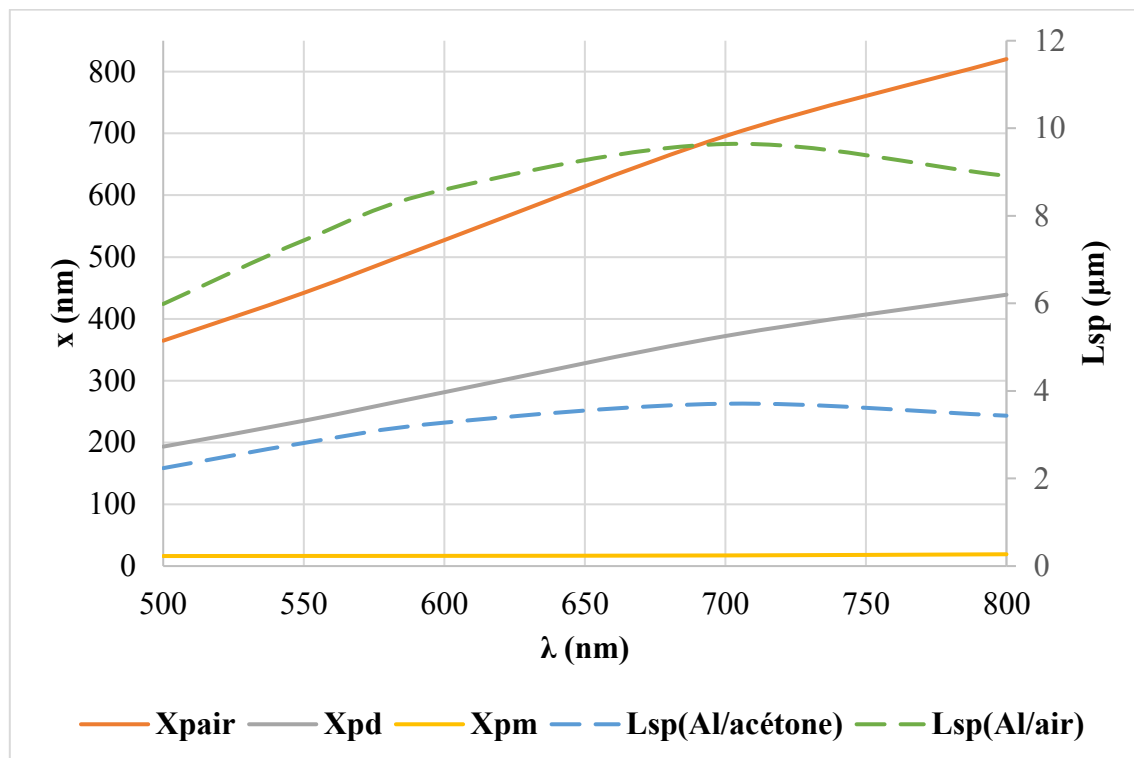


Figure 5.11 : Propriétés géométriques de plasmon de surface (interface Al/acétone)

5.2.8. Simulation de réponse plasmonique par C-méthode

Dans ce paragraphe, la simulation a été réalisée par notre partenaire LHC. Le logiciel MC GRATING est utilisé pour déterminer les caractéristiques du réseau permettant d'obtenir un signal optimal. Dans notre cas, la méthode de Chandezon ou C-méthode (Chandezon et al. 1980) est utilisée (Li, 1994). Les paramètres d'entrée sont le type de profil du réseau (sinusoïdal), la période spatiale et la profondeur de réseau, l'indice optique du fluide en contact avec le métal, l'indice optique de l'aluminium, la direction de polarisation du champ électrique incident par rapport à la ligne du réseau. Cette donnée est primordiale puisque le réseau utilisé dans ce travail est unidimensionnel, le champ électrique doit être orienté de façon à éviter la diffraction conique.

La figure 5.12 présente, en fonction de la hauteur h de la gravure, le pic d'absorption obtenu pour un réseau de forme sinusoïdale et de période spatiale 760 nm en contact avec l'acétone liquide à 20 °C ($n_d = 1,36$). Dans cette simulation, l'angle d'incidence θ_i est égal à 23°. On constate que le pic d'absorption correspond à $\lambda_0 = 650$ nm, ce qui est parfaitement en accord avec les résultats théoriques présentés sur la figure 5.10. La figure 5.12 montre que la position du pic est très peu sensible à la hauteur de la gravure, mais que l'absorption dépend de façon forte de cette hauteur. Ainsi le pouvoir réflecteur (puissance réfléchiée sur la puissance incidente) est nul pour $\lambda_0 = 650$ nm lorsque $h = 80$ nm. Il est égal à 0,35 pour $h = 40$ nm. On constate également que la finesse du pic diminue lorsque la profondeur des gravures s'accroît. Dans notre cas, une gravure de profondeur comprise entre 60 et 80 nm est donc le meilleur

choix. Le procédé de gravure mis au point par notre partenaire LHC a permis de réaliser des gravures sensiblement sinusoïdales de profondeur $h = 55$ nm. L'optimisation a donc été atteinte.

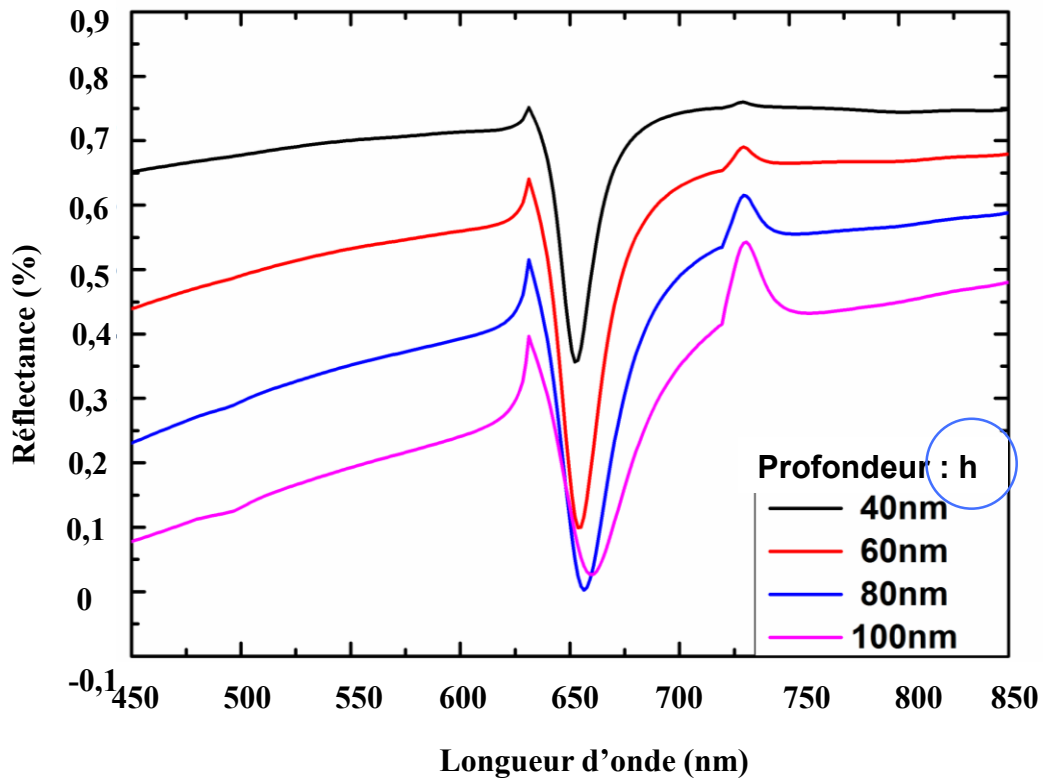


Figure 5.12 : Optimisation de la hauteur h de la gravure

La figure 5.13, présente l'influence d'une très fine couche de vapeur (indice de réfraction $n = 1$) d'épaisseur e insérée entre l'acétone liquide ($n = 1,36$) et le métal. L'angle d'incidence est égal à 22° . On note une très forte sensibilité du système à la présence de la vapeur. En absence de vapeur, le pic d'absorption correspond à $\lambda_0 = 670$ nm. Pour une épaisseur de vapeur $e = 10$ nm, le pic d'absorption correspond à $\lambda_0 = 650$ nm. Ce déplacement est très facilement détectable par un spectromètre classique. Pour des épaisseurs e trop faibles, le modèle mécanique classique n'est sans doute plus valable pour décrire la phase vapeur. Lorsque l'épaisseur e augmente, le pic se déplace donc vers les faibles longueurs. Cependant le pouvoir réflecteur diminue fortement. Pour $e = 30$ nm le pic est très peu marqué. Cela peut s'expliquer par la décroissance de l'amplitude de l'onde évanescente associée au plasmon.

5.3. Indice de réfraction de l'acétone

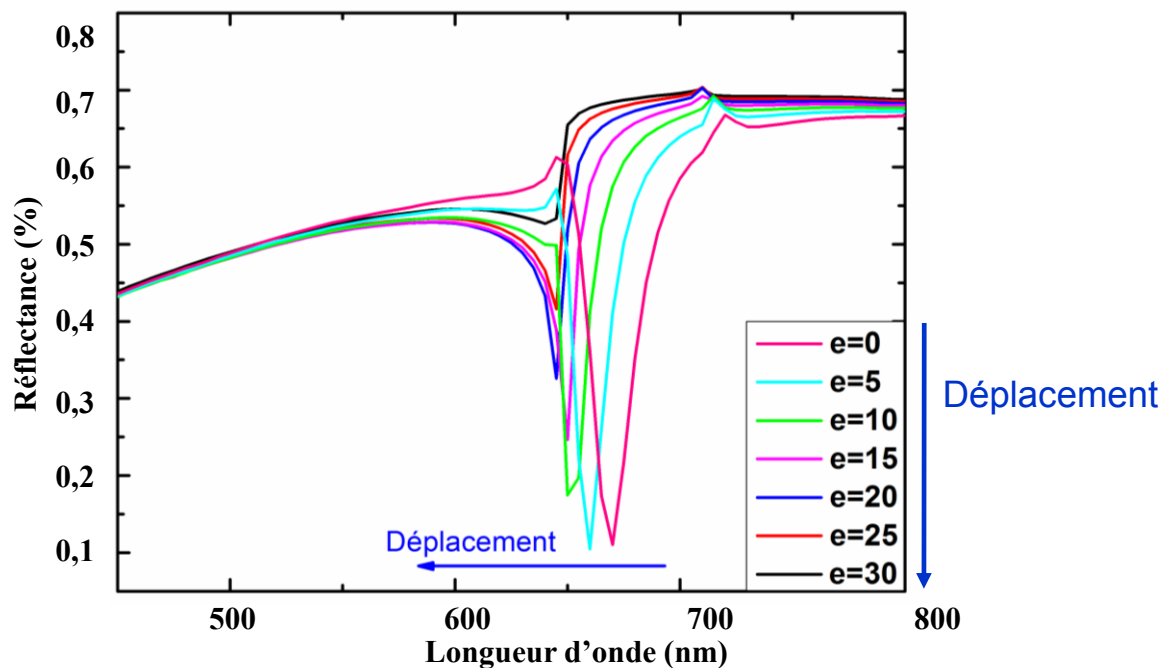


Figure 5.13: Evolution de la réponse plasmonique durant la formation d'une couche de vapeur

5.3. Indice de réfraction de l'acétone

La mesure expérimentale de la variation $n(T)$ de l'indice de réfraction de l'acétone en fonction de la température a été réalisée par notre partenaire du laboratoire Hubert Curien à l'aide d'un réfractomètre (figure 5. 14). La mesure a été limitée à l'intervalle de température 22°C - 43°C, car ce réfractomètre n'a pas été conçu pour des températures plus élevées. Dans cette gamme de température, cette variation est bien décrite par la droite d'interpolation d'équation : $n(T) = n_{20}[1 - \alpha_n (T - 20)]$

Dans cette expression, $n_{20} = 1,3595$ est l'indice à 20 °C, $\alpha_n = 3,98 \cdot 10^{-4} K^{-1}$ et T est la température exprimée en Celsius.

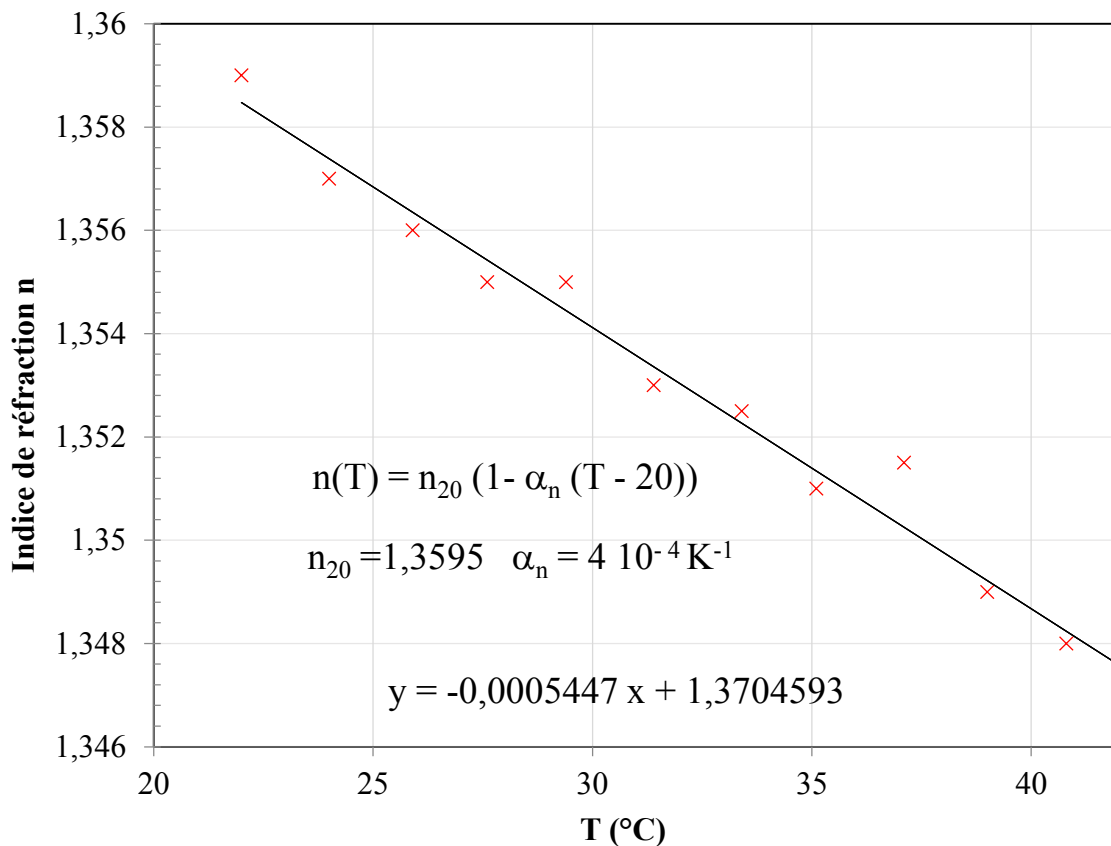


Figure 5.14 : Evolution de l'indice de réfraction de l'acétone en fonction de température

5.4. Mise en place du dispositif pour l'étude du plasmon

Le banc expérimental a été décrit au chapitre 3, paragraphe 3.1.2. Rappelons que le système optique se compose d'un émetteur de lumière blanche, d'un polariseur, d'un détecteur et d'un spectromètre. Le polariseur permet de polariser rectilignement l'onde électromagnétique plane produite par la source de lumière blanche et d'orienter la direction du champ électrique sur le réseau selon la configuration optimale : la direction du champ magnétique doit être parallèle à la surface métallique (onde transverse magnétique), la direction du champ électrique doit être perpendiculaire à la ligne d'invariance du réseau (pour éviter la diffraction conique). Une étude théorique préalable est réalisée afin de déterminer l'angle d'incidence θ_i optimal de l'onde lumineuse sur le réseau.

5.4.1. Réglage de l'angle d'incidence

Le positionnement précis de la source de lumière, pour réaliser cet angle d'incidence θ_i optimal, nécessite de déterminer l'angle d'émission du faisceau θ_{air} dans l'air. Le positionnement précis du récepteur (fibre optique reliée au spectromètre) nécessite de déterminer la position d'émergence du faisceau et son angle d'inclinaison (figure 5.9). Ces paramètres (angle d'inclinaison, déplacement latéral du faisceau) dépendent de la réfraction du faisceau à travers les différents dioptrés plans rencontrés et de l'ordre d'interférence (-1, 0 ou + 1) choisi. Ces angles sont déterminés à l'aide de la loi de Descartes relative à la réfraction. Pour l'ordre de diffraction $m = 0$, l'angle de diffraction θ_{0i} correspond à l'angle d'incidence θ_i .

5.4. Mise en place du dispositif pour l'étude du plasmon

et donc l'angle d'émergence du hublot correspond à l'angle d'émission dans l'air θ_{air} . Le tableau 1 présente les valeurs d'angle incidences θ_i pour différents valeurs des angles d'émission du faisceau θ_{air} dans l'air.

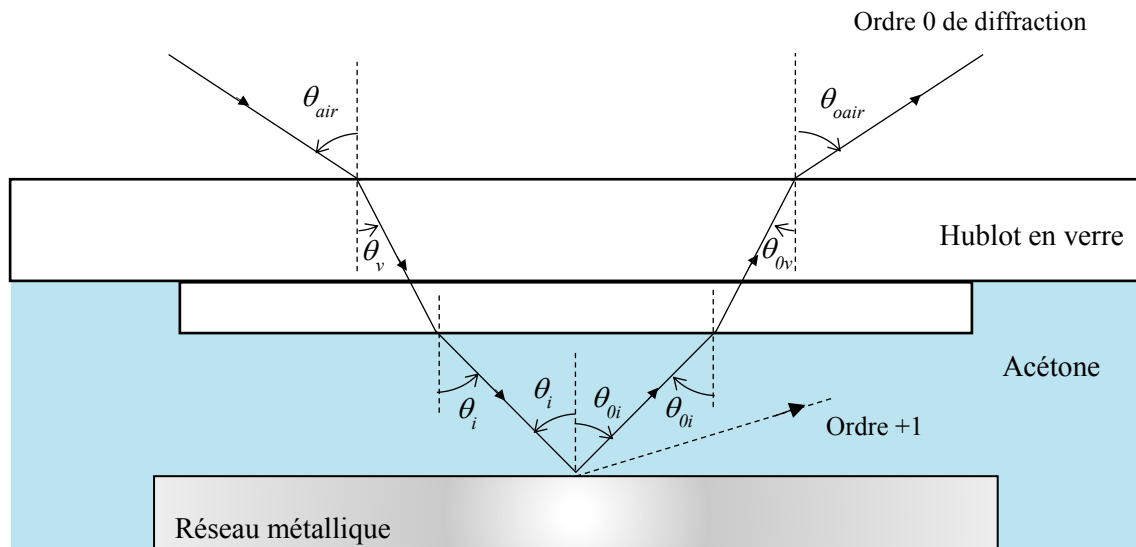


Figure 5.15 : Déviation des rayons lumineux à la traversée des différents dioptries plans et tracé du rayon réfracté correspondant à l'ordre d'interférence nul

$\theta_{air} (^{\circ})$	$\theta_{acétone} (^{\circ})$
20	14,6
25	18,2
30	21,7
35	25,1
40	28,4
45	31,6

Tableau 5.1 : Valeurs des angles d'incidences sur l'interface aluminium/acétone correspondant aux angles d'incidences du faisceau dans l'air

5.4.2. Signal expérimental

La figure 5.16 donne un exemple de signal expérimental recueilli et analysé par le spectromètre. Le faisceau incident est la lumière blanche (longueur d'onde comprise entre 400 et 800 nm). La détermination de la position exacte du pic d'absorption est réalisée automatiquement par le logiciel, en approchant ce pic à l'aide d'une fonction de type gaussienne de la forme (voir figure 5.17) :

$$R = R_{max} - (R_{max} - R_{min}) e^{-2 \left(\frac{\lambda - \lambda_{min}}{\Delta\lambda} \right)^2}$$

La signification des éléments intervenant dans cette gaussienne est précisée sur la figure 5.17.

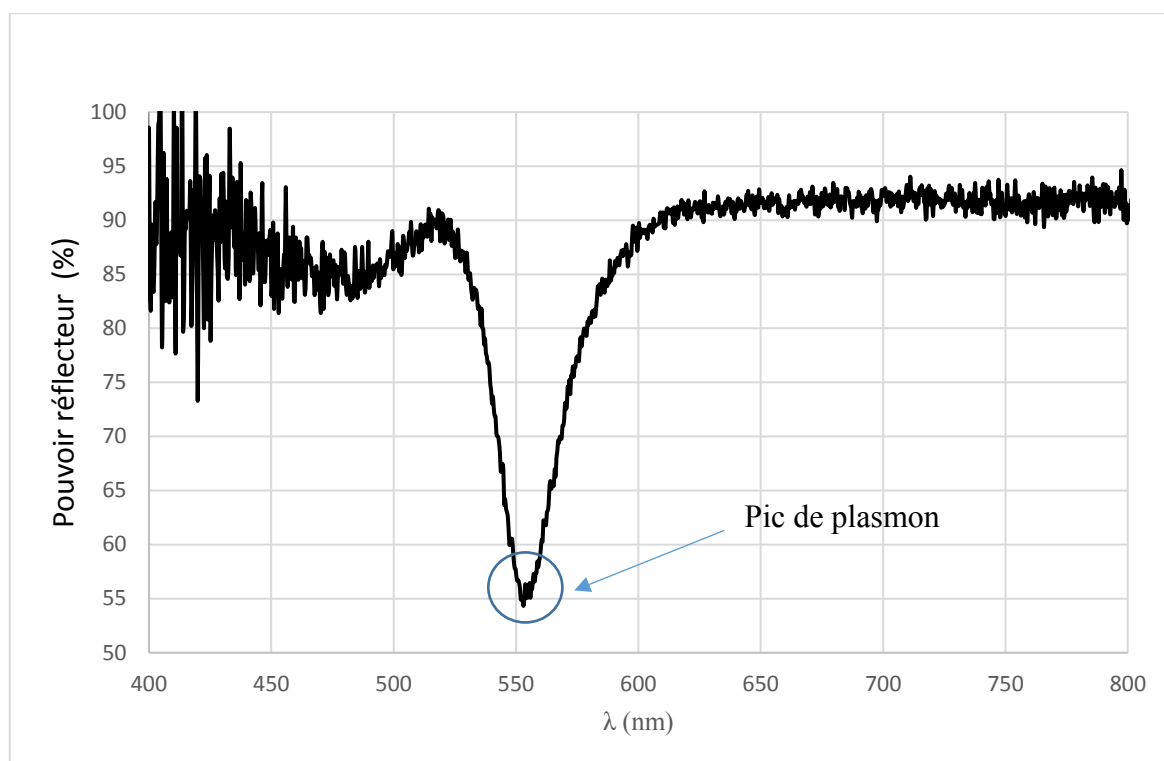


Figure 5.16 : Réponse plasmonique typique (expérimentale)

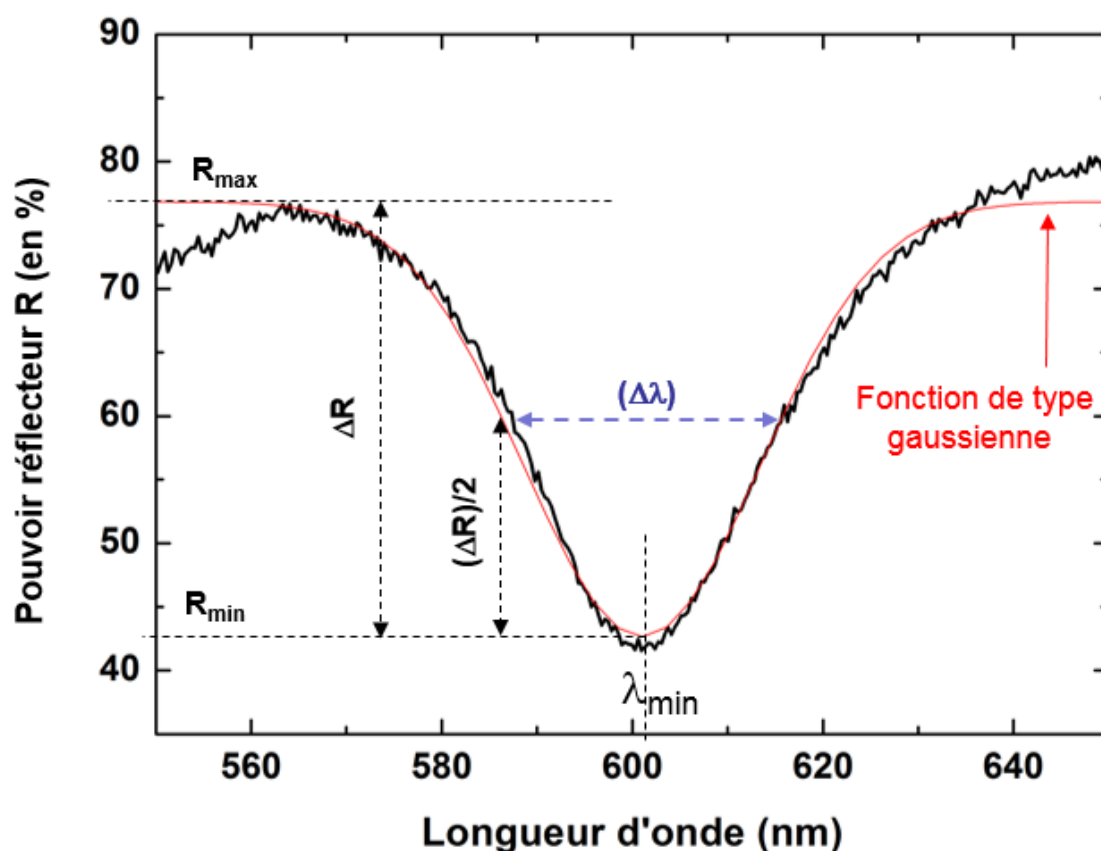


Figure 5.17 : Identification de la longueur d'onde de résonance du pic de plasmon

5.4. Mise en place du dispositif pour l'étude du plasmon

5.4.3. Effet de la température et influence du hublot en verre de l'enceinte

L'indice de réfraction d'un liquide dépendant de la température (voir figure 5.14), la position du pic d'absorption dépend aussi de la température de ce liquide. Le plasmon permet donc de déterminer la température locale du liquide en contact avec la paroi. Mais comme l'onde de plasmon est un phénomène qui couple la paroi métallique au diélectrique, nous devons d'abord mesurer qu'elle est l'influence du métal sur le signal émis. Pour découpler l'effet du métal et du diélectrique il faut utiliser un diélectrique dont l'indice varie peu avec la température. C'est le cas des gaz comme l'air dont l'indice optique reste voisin de 1. La figure 5.18 présente les résultats obtenus avec l'air dans les deux configurations suivantes : enceinte munie d'un hublot en verre, et enceinte ouverte. L'angle d'incidence θ_i est voisin de 20° . Dans les deux cas, la position du pic ne semble pas dépendre de la température, l'écart maximal de 2 nanomètres obtenu sur une plage de températures de 90°C est attribué aux fluctuations expérimentales. La température du métal ne semble donc pas influencer sur la mesure effectuée sur le liquide. De même, le hublot n'exerce aucune influence sur la mesure. Le décalage systématique de 2 nanomètres avec les résultats obtenus sans le hublot est certainement dû à un écart de réglage de l'angle d'incidence. La figure 5.8 montre clairement l'influence de cet angle. Les relations (5.27) ou (5.30) situent la position du pic en fonction de l'angle d'incidence : pour $\theta_i = 20^\circ$ le pic est obtenu pour $\lambda_0 = 500\text{ nm}$, pour $\theta_i = 19^\circ$ le pic correspond à $\lambda_0 = 512\text{ nm}$. Ces écarts sont supérieurs aux décalages lus sur la figure 5.14 bien que notre dispositif ne permet pas d'obtenir une telle précision de réglage.

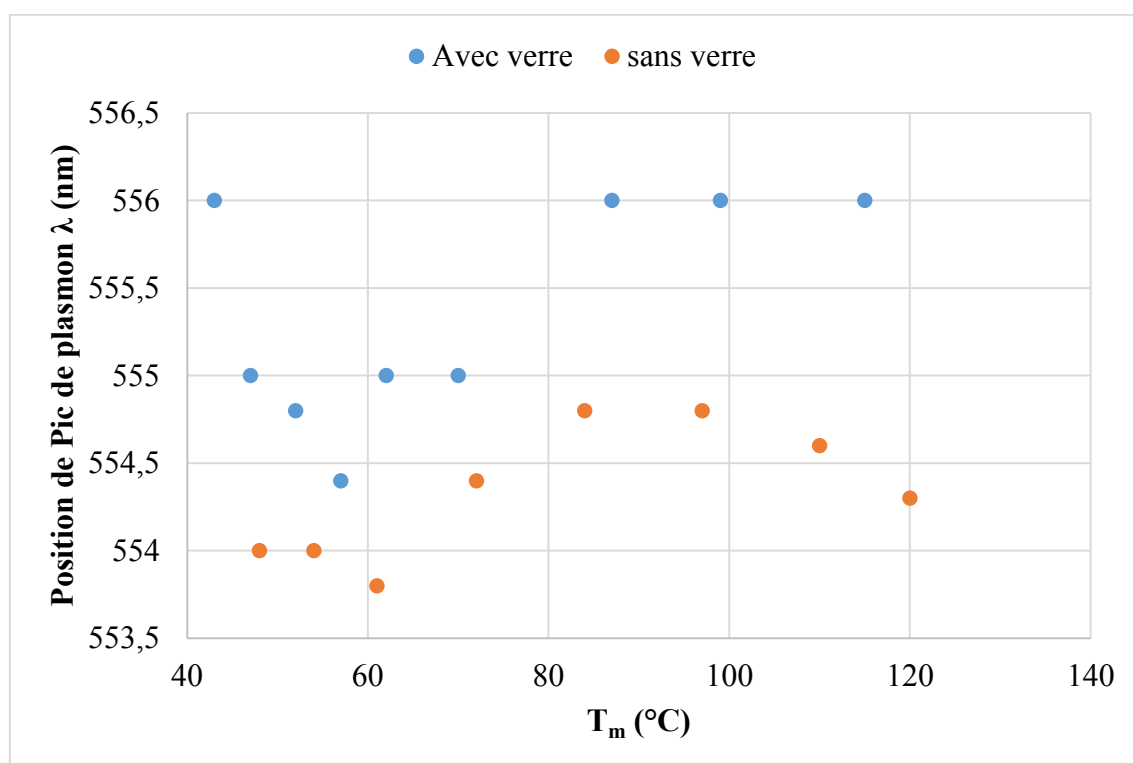


Figure 5.18 : Longueur d'onde de la résonnance plasmon pour l'interface Al/air

Ces vérifications étant réalisées, les mêmes essais ont été effectués avec l'acétone liquide (sans changement de phase). La différence avec les essais précédents est très nette. La courbe est régulière ; la position du pic d'absorption varie linéairement avec la température.

L'écart de longueur d'onde est égal 14 nm pour une différence de température de 35 K. On en conclut que la variation du signal sous l'effet de la température est uniquement due à l'indice optique du liquide. Cela permet donc de mesurer la température de la paroi, connaissant la variation de l'indice en fonction de la température ou inversement de mesurer la variation de l'indice d'un liquide en fonction de la température connaissant de façon précise la température.

La pente $\frac{d\lambda}{dT}$ est égale ici à $-0,387 \text{ nm K}^{-1}$. Ce résultat (figure 5.19) doit être comparé à celui de la droite obtenue avec le réfractomètre (figure 5.14). D'après la relation (5.25) on a : $\frac{d\lambda}{dT} = \Lambda \frac{dn}{dT}$. Les résultats du réfractomètre donnent donc $\frac{d\lambda}{dT} = -0,41 \text{ nm K}^{-1}$. L'écart avec le réfractomètre est égal à 6 %.

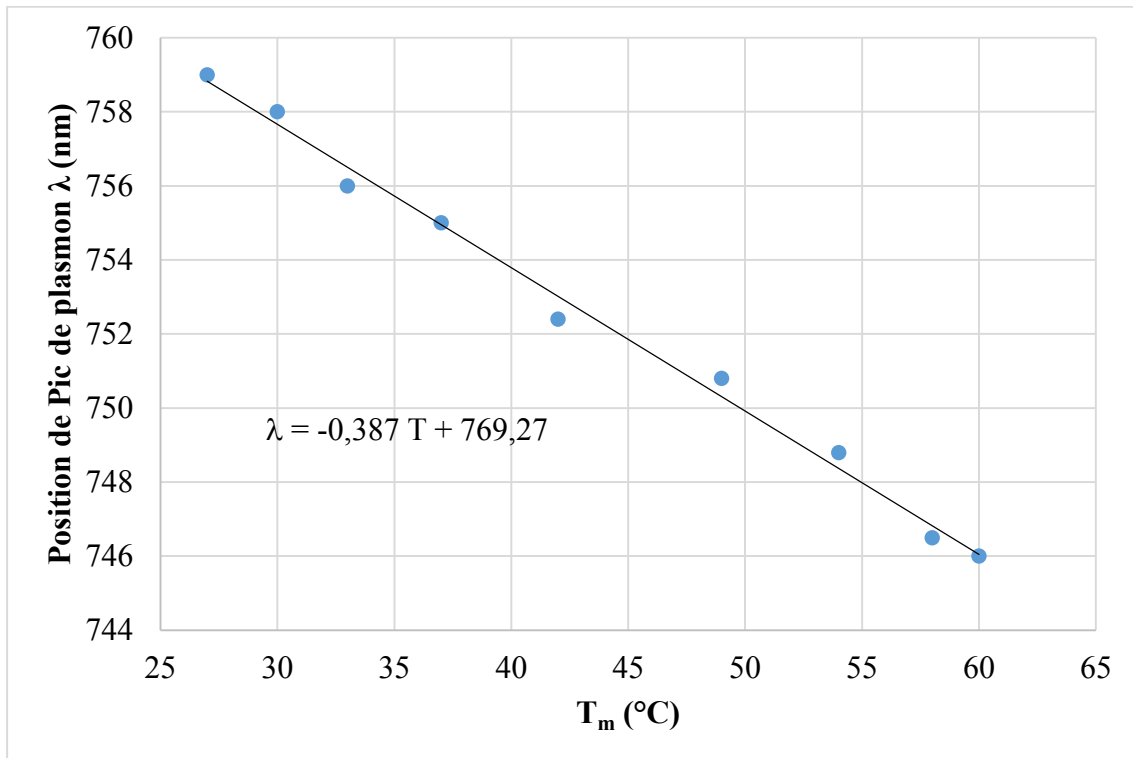


Figure 5.19 : Longueur d'onde de la résonance plasmon pour l'interface Al/acétone

5.5. Détection plasmonique appliquée à la condensation.

Le dispositif est ici testé pour connaître sa réponse au phénomène de condensation. Du fait de sa grande sensibilité, le système doit pouvoir détecter les premières gouttes de liquide ou les films de condensat, d'estimer l'épaisseur moyenne de ces films ou d'évaluer la proportion de liquide et de vapeur en contact avec la surface. Par rapport à l'ébullition, le phénomène est beaucoup moins rapide et bien mieux contrôlable. L'enceinte expérimentale utilisée est la même que celle présentée au chapitre 3 (banc 2, paragraphe 3.1.2) mais elle a été adaptée en incorporant un système de refroidissement sur la paroi métallique de l'enceinte. Il est à noter que ce système n'ayant pas été prévu initialement, le refroidissement de l'échantillon n'est pas très efficace. Le niveau d'acétone liquide dans l'enceinte est maintenu sous la surface de l'échantillon (figure 5.20). Avant d'effectuer les essais, l'échantillon est surchauffé afin d'être considéré comme initialement sec. Un relevé de la position du pic absorbé est alors effectué.

5.5. Détection plasmonique appliquée à la condensation.

5.5.1. Première procédure

Avant d'effectuer les essais, l'échantillon est surchauffé pour être asséché. Un relevé de la position du pic absorbé est alors effectué. Afin d'obtenir la condensation de façon contrôlée, un très léger sous-refroidissement est imposé à l'échantillon durant les essais.

Les essais sont ici effectués avec les échantillons S_{NR2} et S_{NR3} (voir les caractéristiques de surface de ces échantillons au chapitre 2, paragraphe 2.4.3).

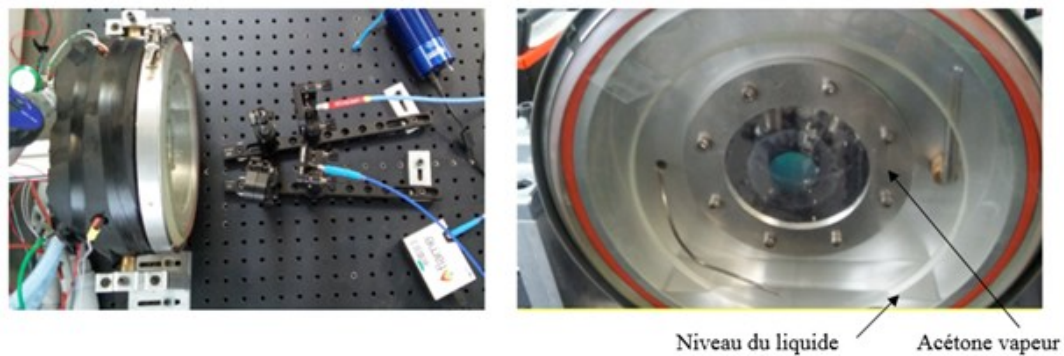


Figure 5.20 : Dispositif expérimental modifié pour l'étude de la condensation

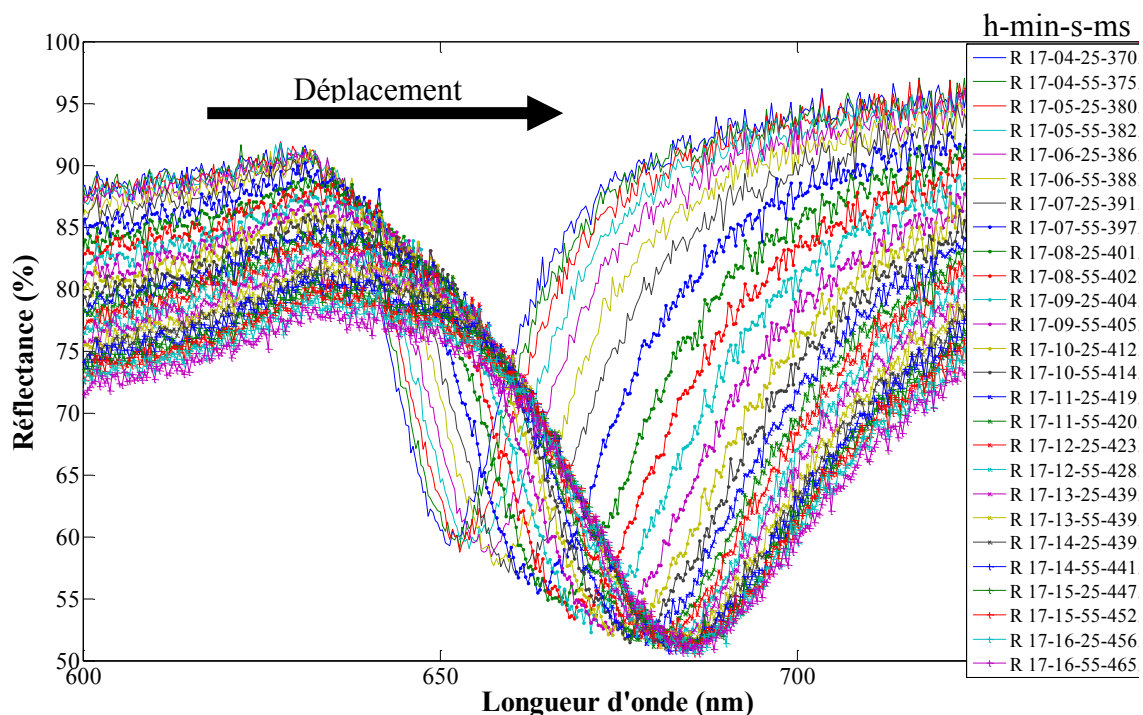


Figure 5.21 : Suivi du déplacement de la longueur d'onde de résonance du plasmon en temps réel lors de la condensation

La figure 5.21 donne un suivi en temps réel des signaux obtenus. Les relevés sont effectués par intervalles réguliers de 30 secondes. Au cours du temps, le pic d'absorption se déplace vers les grandes longueurs d'onde, la hauteur et la largeur du pic s'accroissent.

CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE

Le déplacement du pic de résonance en fonction du temps est représenté sur la figure 5.22. Pour cela, 4 essais ont été réalisés. Les essais E1 et E2 ont été effectués au centre de l'échantillon (position P1), les essais E3 et E4 à la périphérie (position P2) de la zone centrale (avant l'ailette). Les positions P1 et P2 se situent au même niveau horizontal.

Au cours de la condensation, le pic d'absorption se déplace de 40 nm, passant de 645 nm à 685 nm environ. Ce décalage de 40 nm en longueur d'onde ne correspond pas au passage d'une surface totalement sèche à une surface totalement « mouillée ». En effet, d'après la relation (5.25) la valeur du pic d'absorption pour l'acétone liquide doit être environ 1,36 fois plus élevée que pour la vapeur sèche. Un pic d'absorption de 645 nm pour une surface sèche correspond donc à un pic d'absorption égal à 877 nm pour une surface entièrement mouillée. Comme la profondeur de pénétration de l'onde évanescente dans l'acétone liquide est de l'ordre de 400 nm pour ces longueurs d'onde (voir figure 5.11), une surface recouverte d'une épaisseur de liquide de 400-600 nm, peut être considérée comme une surface presque entièrement mouillée. En effet, au-delà de la profondeur de pénétration, l'amplitude de l'onde évanescente devient trop faible et l'onde est peu sensible au milieu qui l'entoure. Avec ces valeurs (645 nm, 877 nm) une formule de proportion, probablement inexacte, permet d'estimer pour 685 nm, un taux de recouvrement en liquide de 18 %.

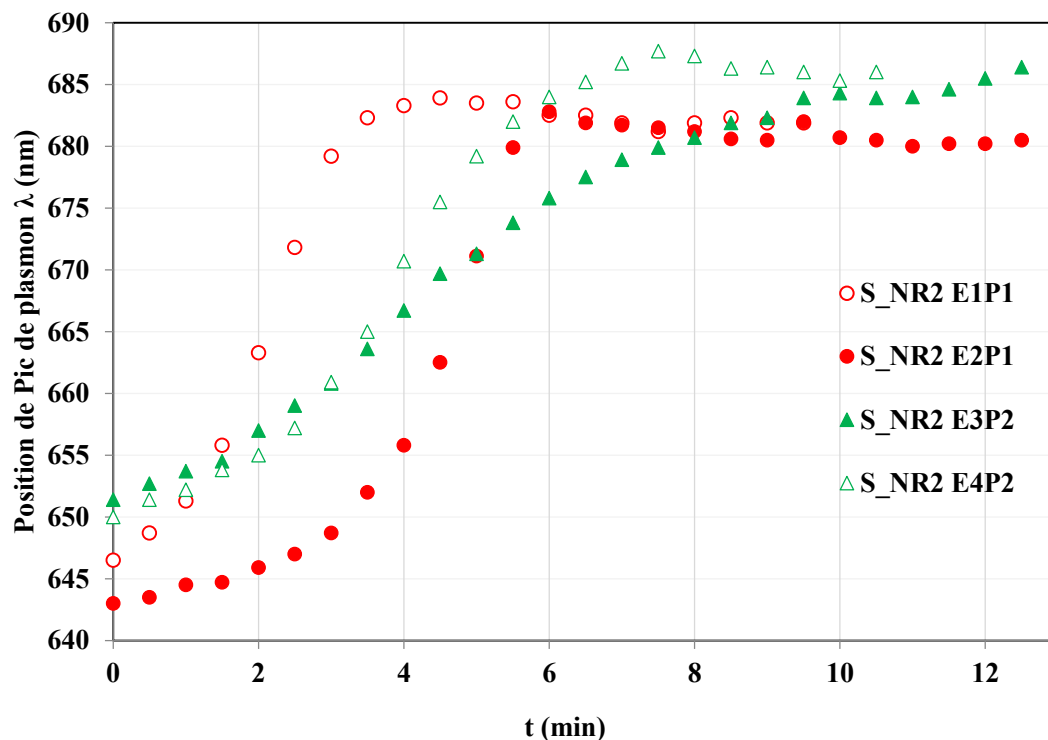


Figure 5.22 : Réponse plasmonique lors de l'apparition de condensation sur la surface

La figure 5.23 donne la réponse plasmonique lors de la condensation de la vapeur d'acétone sur l'échantillon S_{NR3} , pour 5 essais réalisés E1 à E5. Initialement l'échantillon est porté à une surchauffe comprise de 0 à + 4,5°C selon les tests. Pour les 5 essais, la valeur initiale du pic d'absorption a la même valeur, égale à 650 nm. Afin d'assurer la condensation de façon contrôlée, un très léger sous refroidissement est imposé (entre -0,4°C et - 0,6 °C). La valeur finale atteinte est quasiment la même pour les 5 essais, comprise entre 705 et 710 nm.

5.5. Détection plasmonique appliquée à la condensation.

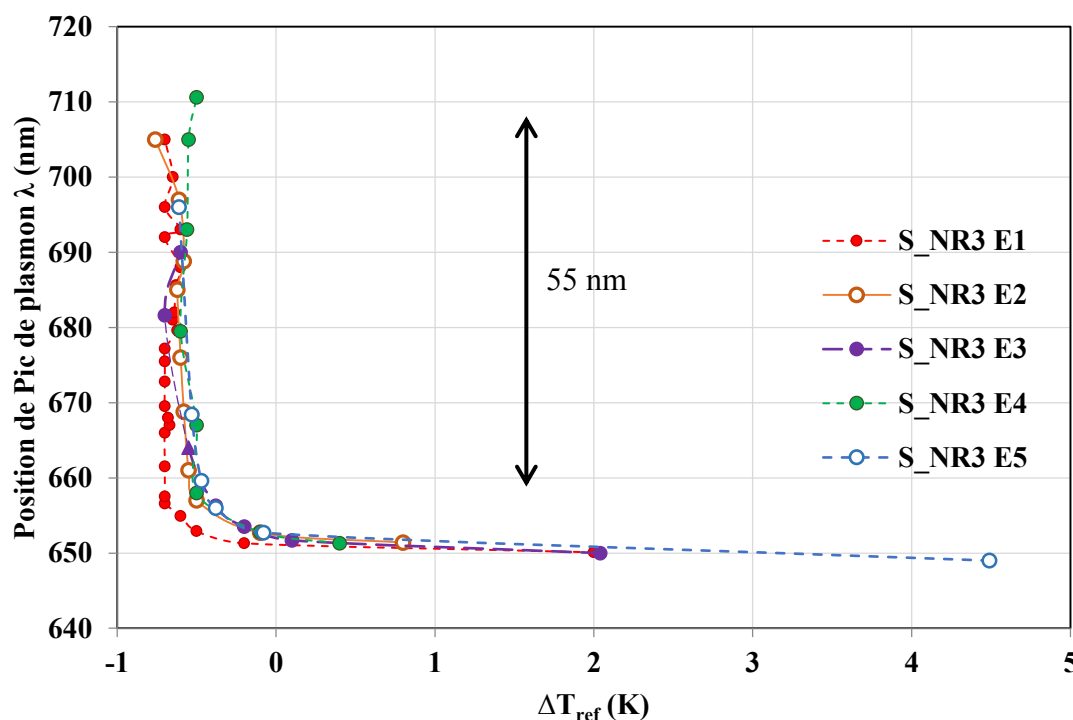


Figure 5.23 : Réponse plasmonique lors de l'apparition de condensation sur la surface S_{NR3}

5.5.2. Seconde procédure

Au lieu de maintenir la vapeur à une température constante et refroidir légèrement la paroi, il est possible de réaliser l'opération inverse, c'est-à-dire réchauffer initialement la vapeur afin qu'elle se condense sur la surface plus froide de l'échantillon. Pour cela, le hublot en verre est réchauffé pendant 3 mn à l'aide d'un pistolet à air chaud réglé sur 80°C. La vapeur d'acétone en contact avec le hublot se réchauffe et condense sur la surface plus froide de l'échantillon. Visuellement, une couche d'acétone liquide apparaît nettement sur cette surface. Plusieurs essais sont effectués, strictement dans les mêmes conditions, afin de vérifier la répétabilité du phénomène.

La figure 5.24 montre les résultats obtenus au cours d'un essai. L'amplitude de déplacement des pics d'absorption est nettement plus élevée (240 nm) que pour la première procédure. Les pics d'absorption se déplacent de 560 nm à 800 nm. Le rapport $800/560 = 1,42$ est proche du rapport des indices acétone liquide/acétone vapeur égal à 1,36. Il est possible que la transition « surface sèche-surface mouillée » soit presque entièrement réalisée.

Afin d'apparaître de manière plus visible, certaines courbes ont été retracées sur cet enregistrement (figure 5.24). En début d'essai, le pic d'absorption est situé à 560 nm (courbe 1), puis le creux d'absorption se décale vers la droite et atteint une valeur de réflectance minimale (courbe 2). Lorsque la condensation se poursuit le pic d'absorption s'élargit de façon nette et s'aplatit. Le creux « coté vapeur » disparaît alors qu'un creux « coté mouillé » apparaît. Durant quelques instants, les deux creux d'absorption coexistent (courbe 3). Cela signifie peut-être que le mouillage n'est pas uniforme, avec certaines zones sèches et d'autres mouillées. A la fin de la condensation, le pic d'absorption « coté mouillé » s'accroît (courbe 4) alors que le pic caractéristique d'une surface sèche a disparu. Ce premier résultat est très prometteur et

mérite d'être analysé plus profondément en lien avec la théorie de la nucléation afin de mieux comprendre ces phénomènes non encore étudiés à l'échelle nanoscopique.

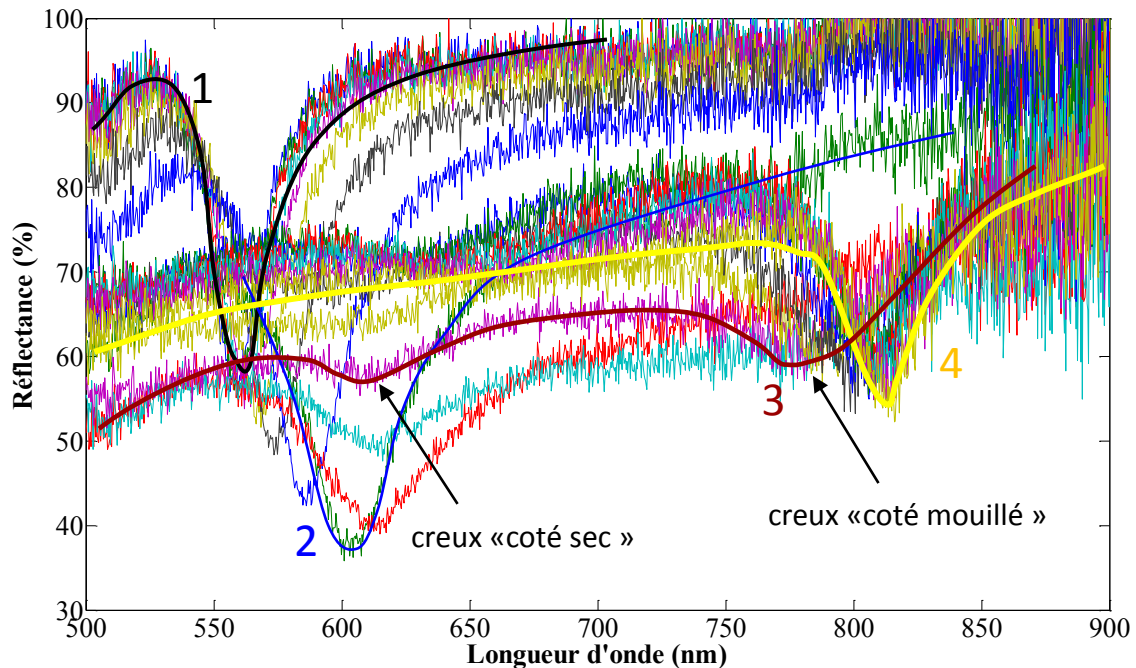


Figure 5.24 : Réponse plasmonique durant la transition de l'état vapeur à l'état liquide

5.6. Détection plasmonique appliquée à l'évaporation

Le dispositif expérimental utilisé pour les tests d'évaporation est le même que pour la condensation. L'enceinte contient une faible quantité d'acétone liquide (25 %). La procédure consiste, tout d'abord, à recouvrir la surface de l'échantillon placé horizontalement d'un film de liquide, puis de basculer cette surface verticalement en tournant l'enceinte de 90°. Le liquide initialement sur la surface s'écoule par gravité et du fait de sa grande mouillabilité sur les métaux, un film de liquide fin adhère à la surface.

Initialement, lorsque la surface de l'échantillon nano-structurée S_{NR2} est sèche, la réponse plasmonique donne un pic d'absorption à 560 nm (état gazeux). Immédiatement après la procédure de mouillage le pic d'absorption passe à 797 nm (état liquide). La réponse reste stable, même après une heure d'attente car un film de liquide très fin adhère à la paroi. Pour faire évaporer ce film de liquide, de l'énergie thermique (10 W/m^2) est fournie à l'échantillon à l'aide de la résistance chauffante placée sous l'échantillon.

L'évolution du signal plasmonique est analogue à celui obtenu pour la condensation avec les mêmes étapes mais en sens inverse (figure 5.25) : déplacement du pic « coté mouillé », élargissement puis atténuation progressive de ce pic, apparition d'un pic coté « échantillon sec » et croissance.

5.7. Détection plasmonique pour l'ébullition nucléée

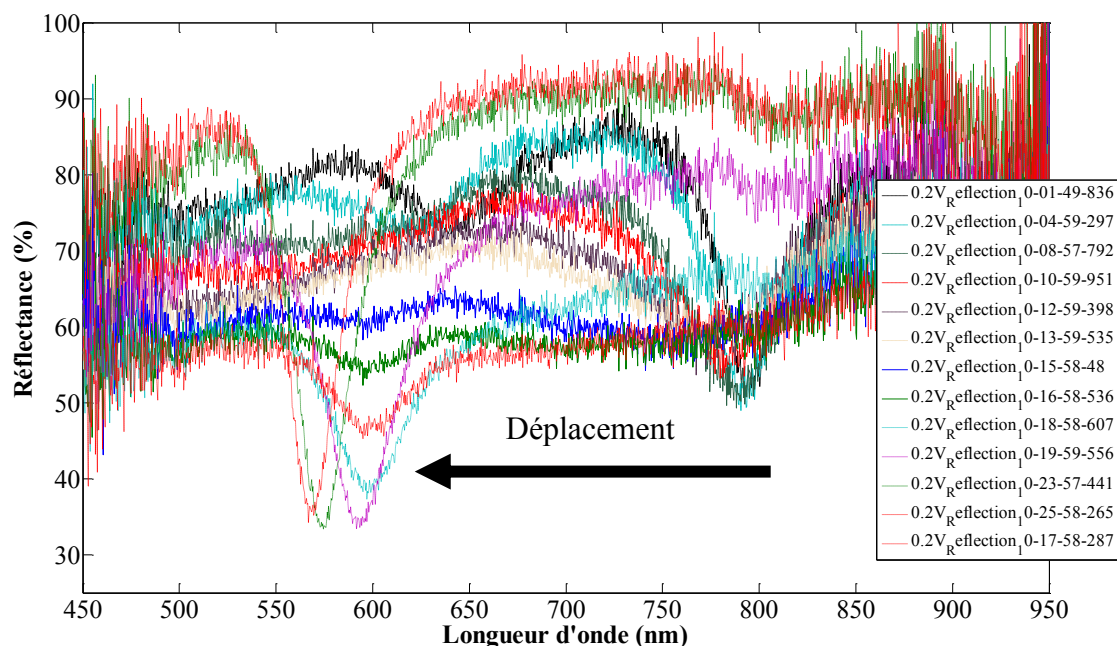


Figure 5.25: Réponse plasmonique durant la transition de l'état liquide à l'état vapeur

5.7. Détection plasmonique pour l'ébullition nucléée

Dans cette partie, nous avons tenté de mettre en évidence l'existence éventuelle de germes de vapeur préexistant sur les parois. Une réponse à cette question peut être donnée par les expériences sur l'ébullition. Les courbes d'ébullition présentent une bonne répétabilité, cependant la surchauffe de déclenchement peut légèrement varier d'un test à un autre. Par exemple, pour la surface initialement ultra-lisse SNR1, gravée ensuite pour obtenir un réseau, la surchauffe de déclenchement peut, suivant les essais, varier de 80 K à 100 K. Le même écart a été obtenu sur cette même surface testée avant la gravure. Les questions que l'on se pose sont alors les suivantes : ces différences de surchauffe sont-elles dues à l'influence de germes de vapeur préexistant dans des nano-sites non détectés par le balayage au microscope, ou sont-elles dues à des instabilités (puisque le liquide surchauffé est dans un état métastable) ? En d'autres termes, la nucléation est-elle ici homogène ou hétérogène ? Les essais précédents montrent que le phénomène mettant en œuvre les plasmons de surface distingue de façon très sensible le liquide et la vapeur. C'est pourquoi nous avons testé cette méthode, pour voir si l'on peut obtenir des informations sur l'état de la surface avant le déclenchement de l'ébullition.

Dans le cas de la nucléation hétérogène, les surchauffes de déclenchement de l'ébullition sont généralement peu élevées, la surchauffe diminue avec l'augmentation de la densité de sites. Cela est dû à l'existence de sites de nucléation (voir chapitre 1) ou plus précisément à la présence de vapeur piégée dans les sites (d'après la théorie classique). Comme la surchauffe semble varier d'un essai à l'autre, la densité de sites renfermant de la vapeur peut différer d'un essai à l'autre. Rappelons d'abord les mécanismes qui ont lieu sur un site lors de l'ébullition. Lorsque la bulle s'élève dans le liquide, juste avant son détachement, un pied se forme sous la bulle du fait de la mouillabilité du liquide sur la paroi (figure 5.26). Une pression capillaire élevée apparaît sur le pied à cause de la grande courbure (les 2 rayons de courbures principaux sont petits) ainsi formée par la déformation de la bulle dont une partie s'élève l'autre est retenue (adhérence) à la paroi. Sous l'effet combiné de l'étirement de la bulle et surtout de la

CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE

pression capillaire qui agit sur l'interface, le diamètre du pied se réduit. Cet effet est amplifié d'autant plus que l'excès de pression dans le liquide (liée à la concavité de l'interface) provoque un changement de phase vapeur / liquide sur le pied. Le pied fini par se rompre, laissant donc un germe de vapeur sur le site. A cause des faibles rayons de courbure se formant sur la face inférieure de la bulle du fait de sa déformation (figure 5.27 b) un phénomène d'oscillations apparaît sur la bulle qui tend à réduire cette courbure et à rendre à la bulle sa forme sphérique. Un phénomène de pression capillaire apparaît également sur le résidu de la bulle (figure 5.27 b) restant sur la surface. Selon Mitrovic (1983), cet excès de pression peut atteindre 4 bars. La vapeur résiduelle peut être partiellement ou complètement liquéfiée à cause de cet excès de pression. Ce mécanisme peut donc modifier la densité de sites contenant de la vapeur, l'accroître si une certaine quantité de vapeur provenant du pied forme un germe résiduel, la diminuer si la vapeur provenant du pied se liquéfie totalement au-dessus de certains sites, ou la rendre inchangée en moyenne si ces deux mécanismes se produisent de façon égale.

Dans notre cas, les surfaces des échantillons observés au microscope avant gravure étaient ultra-lisses. Les gravures, réalisées sur ces échantillons, ne forment probablement pas de sites avec un fluide aussi mouillant du fait de leur rapport d'aspect largeur/profondeur égal à 14 (760/55 nm), ce qui est confirmé par les surchauffes très élevées que l'on obtient au déclenchement. Cependant, il peut rester des sites non détectés au microscope qui peuvent éventuellement expliquer la différence de surchauffe nécessaire pour le déclenchement.



Figure 5.26 : formation du pied lors du détachement d'une bulle dans le cas d'un fluide mouillant (Siedel, 2012)

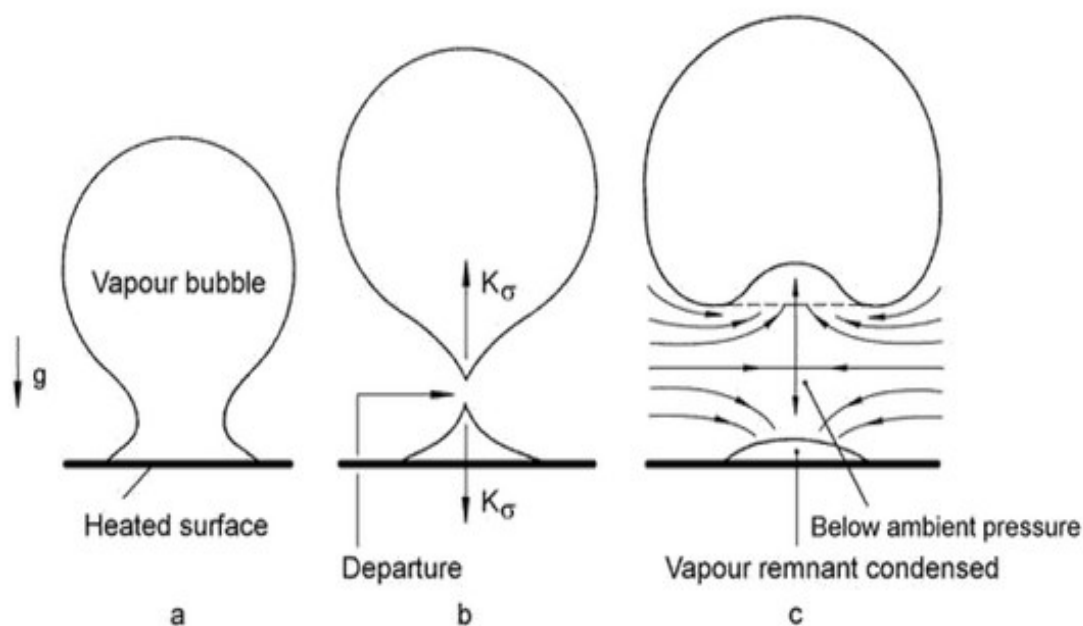


Figure 5.27 : mécanisme de détachement de la bulle pour une bulle adhérent à la paroi (fluide mouillant) (Mitrovic, 1983) ; a) Forme de la bulle avant détachement ; b) Constriction du pied et rupture ; c) Condensation de la vapeur résiduelle et mouvement du liquide

Des tests expérimentaux ont donc été réalisés dans l'objectif de mettre en évidence une modification du nombre éventuels de sites contenant des germes de nucléation.

Dans une première série de tests, des essais en convection naturelle ont été réalisés avec les échantillons gravés, sans déclencher l'ébullition, à flux croissant et décroissant, dans les conditions de saturation (pression = 1 bar, température mesurée dans la phase vapeur = 56 °C). Pour réaliser ces tests un incrément de flux très petit a été réalisé (0,15 W/cm²) afin d'obtenir une courbe de référence. A chaque palier les mesures ont été réalisées après l'obtention de l'équilibre thermique. Les relevés ont été faits à flux croissant et décroissant. On observe une variation linéaire (figure 5.28). Les droites réalisées à flux croissant et décroissant se superposent. La linéarité peut être expliquée par la variation linéaire de l'indice de réfraction du liquide avec la température, comme cela a été montré par les mesures effectuées avec le réfractomètre du laboratoire Hubert Curien (figure 5.14). En effet, la position du pic d'absorption est proportionnelle à l'indice optique du liquide (voir relation 5.27). Cependant des mesures complémentaires doivent être réalisées. D'une part, parce que le réfractomètre n'a pas permis - du fait de sa conception - de réaliser des mesures au-delà de 40 °C, alors que dans nos essais les températures s'échelonnent entre 54 °C et 150 °C. D'autre part, parce que pour les surchauffes les plus élevées il existe sans doute à la paroi un gradient de température non négligeable. Cette décroissance des températures, peut fausser les mesures, même si la distance de mesure avec les plasmons est de l'ordre de 300 à 400 nm du fait de la décroissance rapide de l'onde évanescente. Pour le vérifier, nous avons réalisé des essais complémentaires à température uniforme, à l'aide d'un nouveau dispositif : un hublot « fermé » et pouvant résister à des pressions de 16 bars. Les essais réalisés avec ce hublot seront présentés dans le paragraphe 5.8. Ils donnent des réponses parfaitement identiques, c'est-à-dire que la droite obtenue avec le nouveau dispositif est confondue avec celle apparaissant sur la figure 5.14.

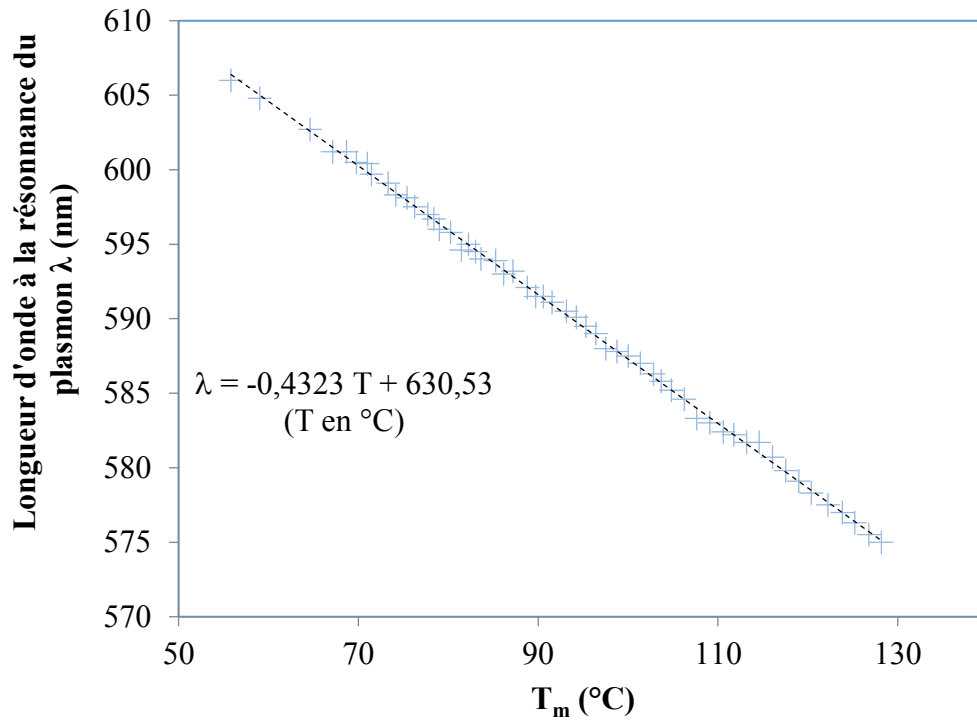


Figure 5.28 : Réponse plasmonique en convection naturelle pour la surface S_{NR2}

La procédure d'écrite ci-dessus fournit une courbe de référence, mais elle ne permet de réaliser plusieurs essais de répétabilité en une seule journée, du fait de la valeur faible de l'échelon de flux choisie. Dans une seconde série de mesure, 5 essais de répétabilité ont été effectués jusqu'au déclenchement de l'ébullition. Pour pouvoir réaliser ces 5 essais sur une journée, un échelon plus important a été imposé. Les mesures sont effectuées uniquement en convection naturelle et à flux croissant. La procédure consiste à accroître le flux jusqu'au déclenchement de l'ébullition. Lorsque l'ébullition apparaît, le flux thermique est progressivement réduit jusqu'à la disparition des bulles (flux quasiment nul). Un délai d'attente est respecté (15 min, 1 h sur certains essais) avant de répéter la même procédure. L'ensemble des résultats obtenus avec ces 5 essais est rassemblé sur la figure 5.29 et est comparé avec la courbe de référence. L'écart maximum de 2 nm n'est pas significatif. D'autre part, ces 5 essais ont été réalisés avec l'échantillon S_{NR3} alors que la référence a été tracée avec l'échantillon S_{NR2} , ce qui met en évidence une très bonne reproductibilité de fabrication de ces 2 échantillons.

5.7. Détection plasmonique pour l'ébullition nucléée

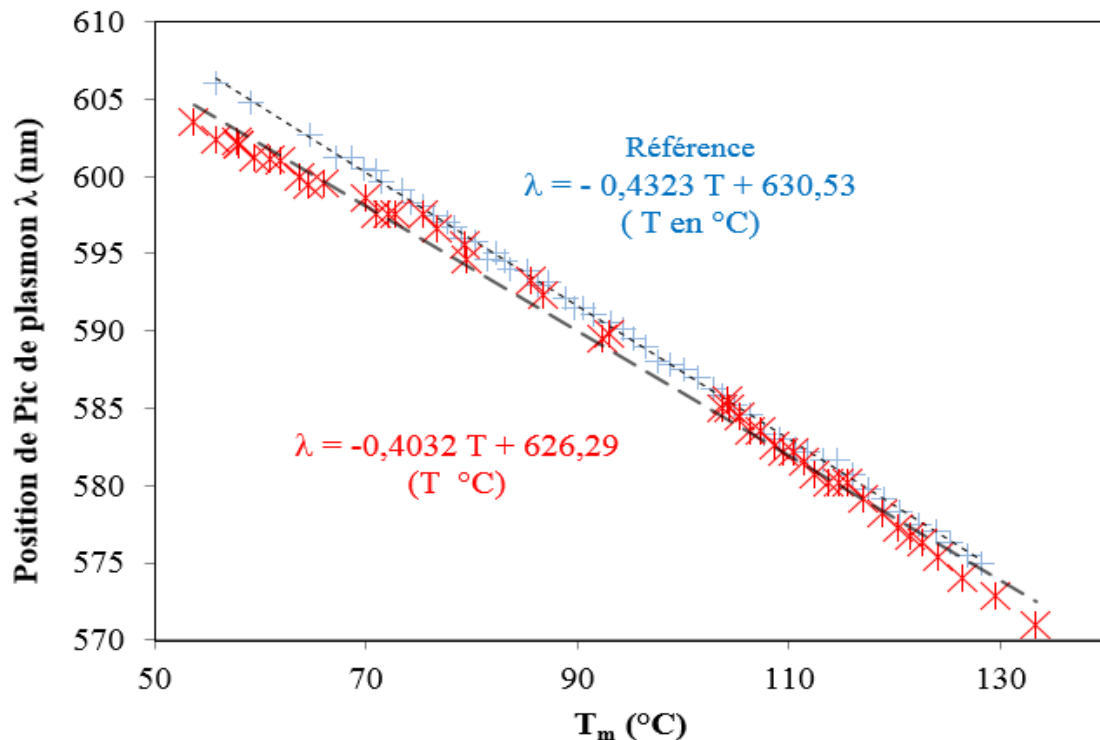


Figure 5.29 : Réponse plasmonique en fonction de la température pour la surface S_{NR3} . Comparaison avec la droite de référence obtenue avec la surface S_{NR2}

Les mesures ont été réalisées, avec le même résultat, au centre de l'échantillon et en périphérie de la zone d'étude.

La mesure des plasmons de surface n'a pu mettre en évidence de variations avant le déclenchement de l'ébullition. Cela signifie, soit qu'il n'y a pas de germes de vapeur sur ces surfaces ultra-lisses ou bien qu'il y en a trop peu pour être détectés (le faisceau lumineux incident a une section de 3 mm de diamètre, il éclaire une surface plus grande du fait de son inclinaison et il donne une valeur moyenne mesurée sur une telle surface), soit que l'ébullition ne change pas de façon significative le nombre de noyaux de vapeur existants. Une surface idéale pour détecter éventuellement des noyaux serait une surface avec beaucoup de défauts formant des sites. De telles surfaces n'ont pas été réalisées durant cette thèse car seules les surfaces les mieux réussies ont été gravées.

L'enregistrement de la réponse plasmonique obtenue juste avant le déclenchement et au moment du déclenchement est donné sur la figure 5.30. Juste avant le déclenchement, les 5 essais donnent des signaux presque confondus. Lors de la nucléation quasiment aucun signal ne parvient au détecteur. Cela est normal : le détecteur ne saisit pas les premiers instants de la croissance du fait que la bulle croît beaucoup plus vite que la durée minimale d'intégration du système (minimum 1 ms pour avoir un signal correct). Du fait de la présence de la bulle, et de la courbure de son interface, le faisceau est dévié et ne parvient pas au capteur.

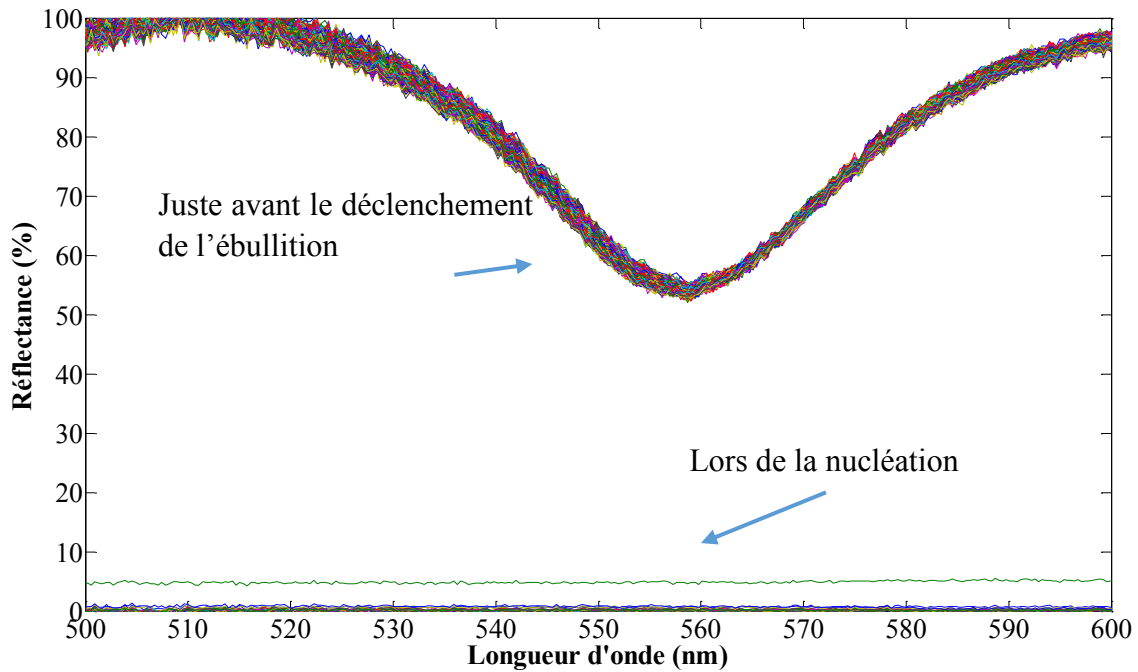


Figure 5.30 : Enregistrement du signal plasmonique au déclenchement de l'ébullition

5.8. Etalonnage de réponse plasmonique

Afin de compléter les mesures réalisées par le réfractomètre à des valeurs de températures plus élevées et de travailler dans des conditions de température isotherme, un troisième dispositif a été utilisé (figure 5.31). Il s'agit d'un hublot fermé pouvant résister à une pression de 16 bars (correspondant à une température de saturation de 180 °C). Ce hublot renferme du liquide en équilibre avec sa vapeur. La vapeur permet d'éviter les surpressions beaucoup trop importantes dues à la dilatation du liquide avec la température. L'enceinte est chauffée de façon uniforme. Aucune résistance chauffante n'est disposée sur l'échantillon, qui est chauffé par l'acétone liquide qui l'entoure sur ces 6 faces. Deux thermocouples permettent de contrôler la température. Les essais sont réalisés à différentes températures de saturation variant de 15 °C à 130 °C.

5.8. Etalonnage de réponse plasmonique

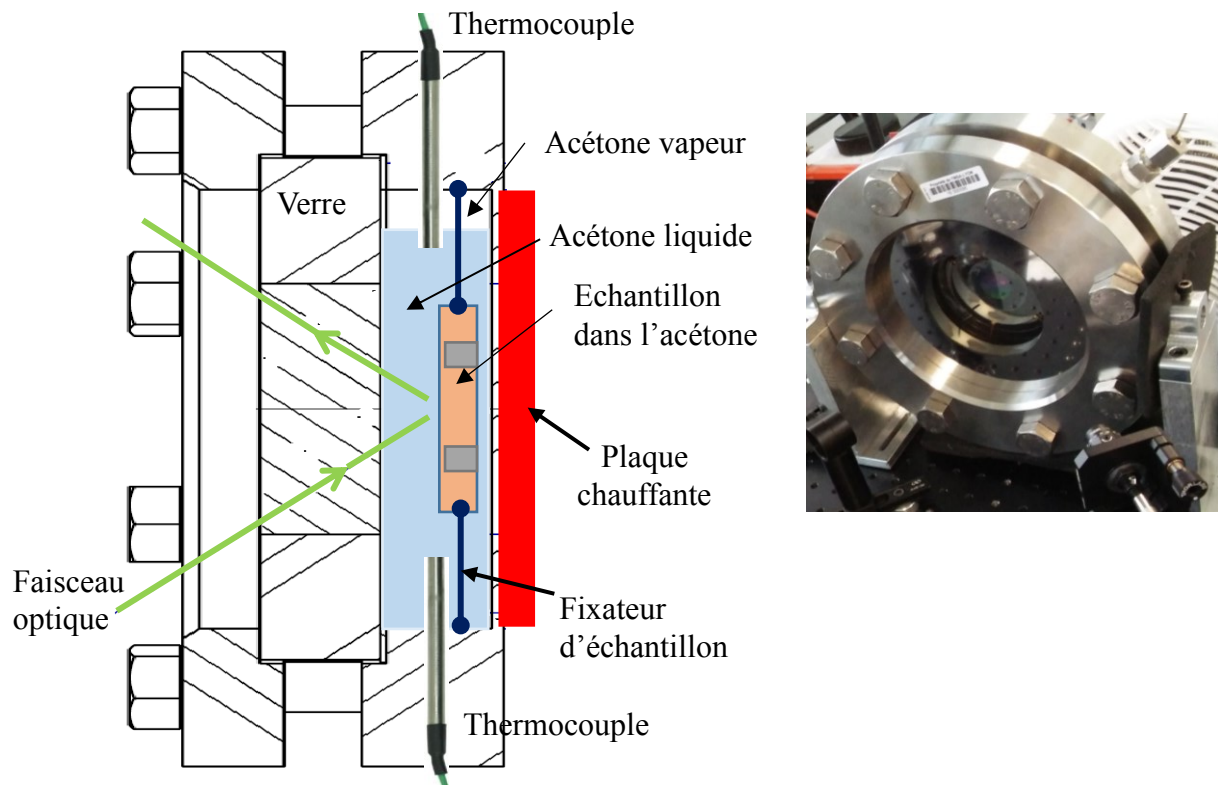


Figure 5.31 : Hublot pour l'étalonnage du plasmon en températures avec l'acétone liquide

La figure 5.32 présente les résultats obtenus à flux croissant (C) et décroissant (D) pour deux angles d'incidence 35° (droites C1 et D1) et 30° (droites C2 et D2). On constate que les droites à flux croissant et décroissant se superposent et qu'à même température le rapport des valeurs données par les deux droites est constant et est égal à 1,1 ainsi que le montre le tableau 5.2.

Température	35 °C	75 °C	115 °C
C2	664	650	635
C1	599	584	568
C2/C1	1,108	1,11	1,117

Tableau 5.2 : Quelques valeurs d'étalonnage correspondant à C1 et C2

Cela peut être vérifié à l'aide de la relation (5.25). On a $\lambda_0 = n_d \wedge (1 - \sin\theta_i)$, d'où :

$$\frac{\lambda_{02}}{\lambda_{01}} = \frac{1 - \sin\theta_2}{1 - \sin\theta_1} = \frac{1 - \sin(30^\circ)}{1 - \sin(35^\circ)} = 1,117$$

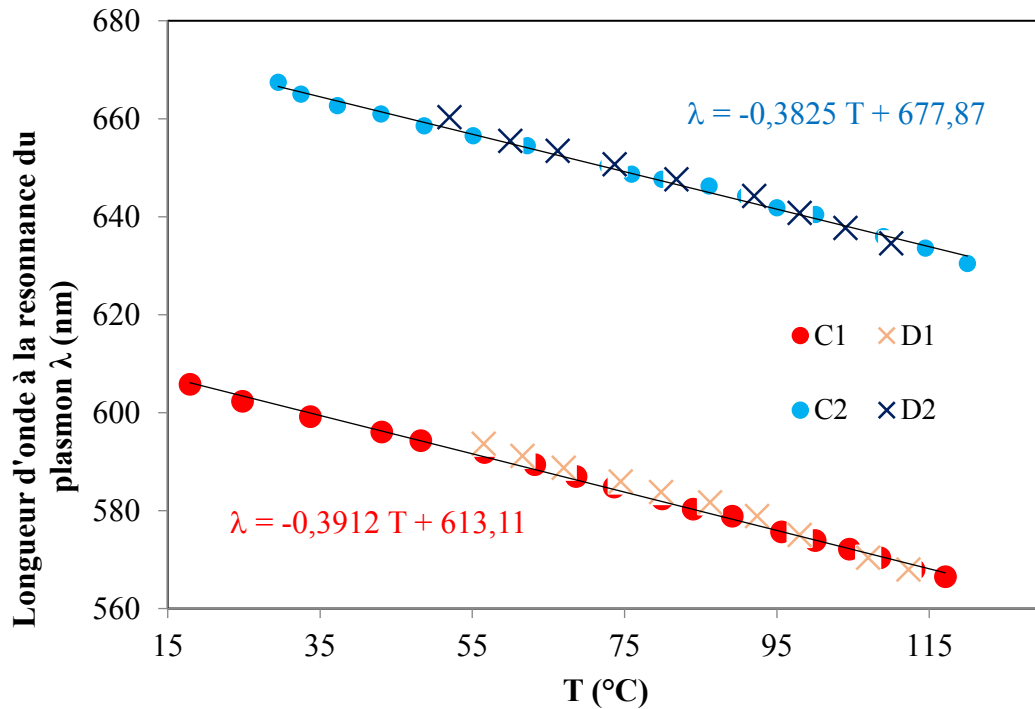


Figure 5.32 : Evolution de la réponse plasmonique en fonction de la température de l'échantillon pour deux angles d'incidence : $\theta_1 = 35^\circ$ et $\theta_2 = 30^\circ$

Les tests ci-dessus ont été réalisés pour deux angles très proches. En supposant que la pente ne dépend pas de l'angle d'inclinaison, on peut déterminer la variation de l'indice de réfraction de l'acétone en fonction de la température. On a $\frac{dn}{dT} = \frac{1}{\lambda} \frac{d\lambda}{dT}$, en prenant la pente moyenne des deux droites égale à $-0,3868 \text{ m K}^{-1}$, et compte tenu que $\lambda = 760 \text{ nm}$, on trouve $\frac{dn}{dT} = -5,09 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$. Cela est en assez bon accord avec les valeurs données par le réfractomètre ($-5,44 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$).

Sur la figure 5.33, la droite correspond à l'essai C1 est comparée à la droite de référence (figure 5.28). Comme il est très difficile de régler l'angle à la même valeur (incertitude estimée $\pm 5^\circ$) lorsque l'on retire un banc du système de mesure pour remplacer par un autre, les deux droites sont nécessairement décalées d'une valeur correspond à l'écart d'angle. Afin de pouvoir les comparer, la droite C1 a été translatée sur la droite de référence. Les relevés sont quasi confondus. Ce qui signifie que les mesures faites sur le banc n°2 ne nécessitent aucune correction. En plus, la figure 5.34 montre la reproductibilité de la réponse plasmonique en fonction de la température, avec les tests effectués sur différents échantillons pour différents angles d'incidence et procédures de chauffage.

5.8. Etalonnage de réponse plasmonique

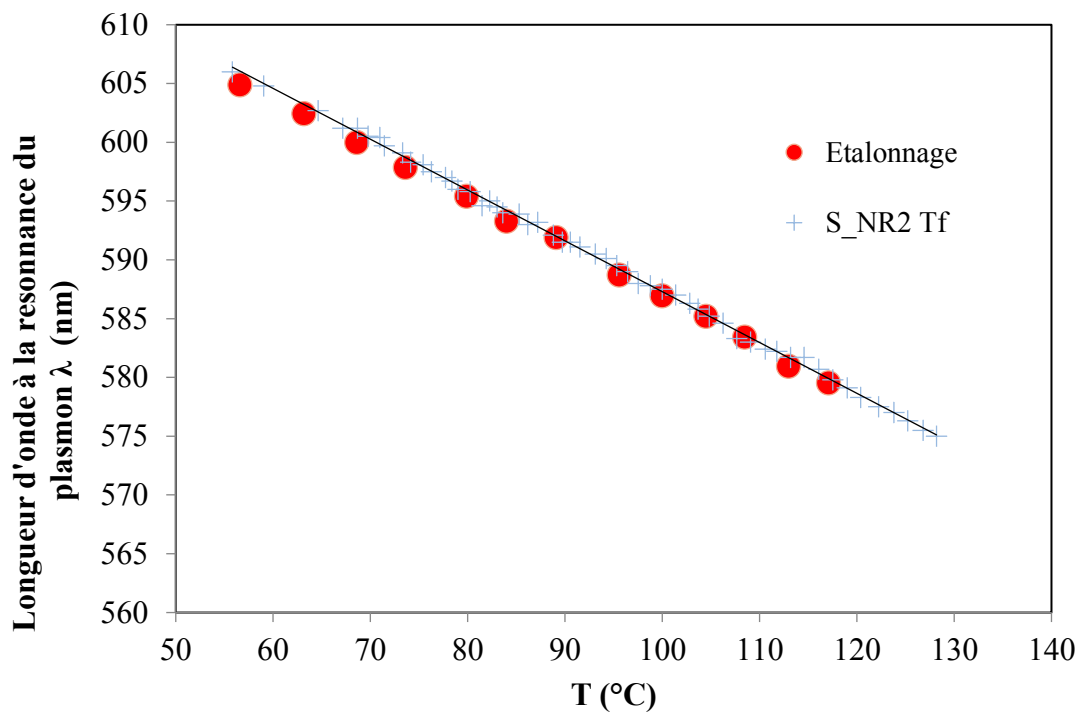


Figure 5.33 : Comparaison de la réponse plasmonique entre l'étalonnage et le résultat obtenu en convection naturelle juste avant le déclenchement d'ébullition

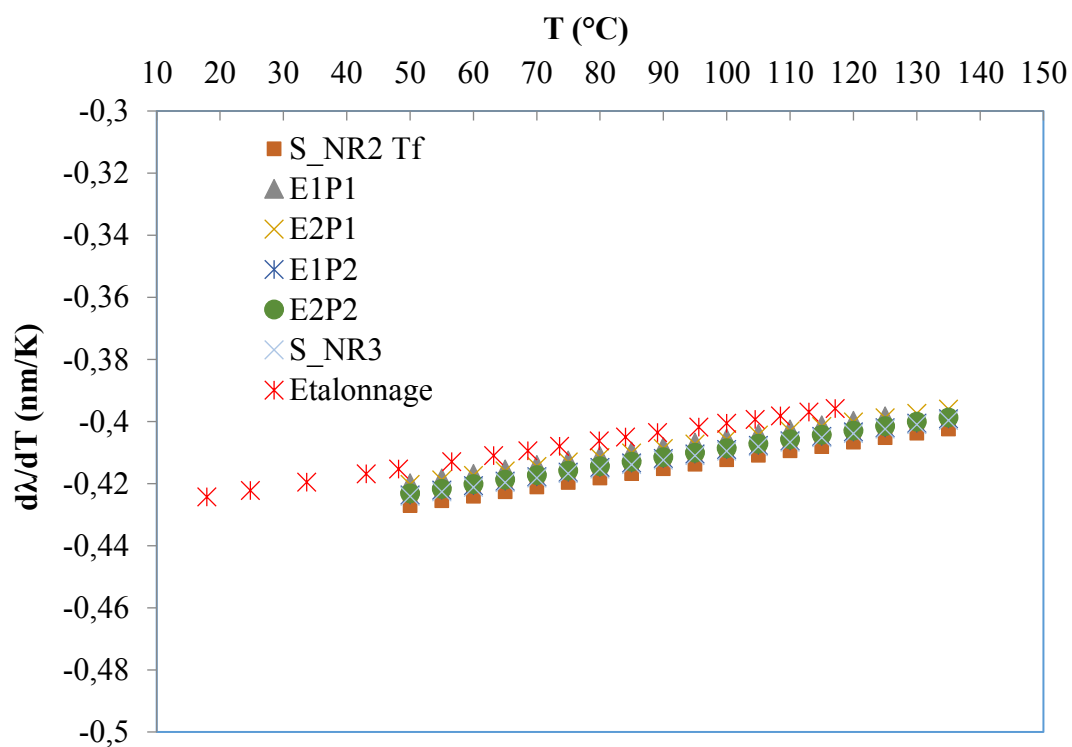


Figure 5.34 : Sensibilité expérimentale de réponse plasmonique en fonction de la température de l'échantillon

CHAPITRE 5 : ETUDES DES PHENOMENES DE CHANGEMENT DE PHASE LIQUIDE-VAPEUR PAR DETECTION PLASMONIQUE

Les résultats obtenus montrent qu'il est possible, après étalonnage, d'utiliser la méthode plasmonique pour déterminer une température pariétale non intrusive à l'interface solide/liquide, ce qui est une méthode de mesure prometteuse pour de nombreuses applications nécessitant une mesure non intrusive et pour lesquelles la thermographie infrarouge n'est pas possible. La limite de résolution théorique en température est autour de 0,0045 K pour l'acétone. Par ailleurs, la méthode peut aussi être utilisée pour déterminer les propriétés optiques des liquides à différentes températures, ce qui peut remplacer l'utilisation d'un réfractomètre, généralement limitée à des températures proches de l'ambiante. On présente en annexe les développements mathématiques permettant de justifier ces mesures.

5.9. Conclusion

La méthode de résonance des plasmons de surface a été utilisée dans le but d'étudier le phénomène de changement de phase liquide-vapeur. Une optimisation a été faite pour les paramètres liés à la réponse plasmonique : l'angle incident du faisceau optique, la période du réseau, l'indice du milieu et les propriétés géométriques. Une simulation par méthode-C pour optimiser la profondeur du réseau afin d'étudier la formation d'une couche de vapeur a été décrite.

La méthode de détection plasmonique a permis de suivre en temps réel la formation de nucléus de condensation à l'échelle nanométrique et la disparition de ces nucléi lors de l'évaporation. Un décalage de réponse plasmonique a été enregistré dans les deux cas. Cette expérience a mis en évidence la capacité de cette méthode de détecter tout changement d'indice de milieu local (ou permittivité) à l'échelle nanométrique. Ces premiers résultats sont prometteurs mais nécessitent d'être analysés à la lumière de la théorie de la nucléation.

Dans le cas de l'ébullition nucléée, différents essais ont été menés pour mettre en évidence une variation du signal liée à la présence de noyaux de vapeur. Cependant, seul l'effet de la variation de la température, dont la méthode de détection par plasmons est très sensible, a été mesurée. Les résultats n'ont pas permis de mettre en évidence une variation d'indice due au changement de phase avant la nucléation.

Un banc d'étalonnage a été conçu pour étudier la réponse plasmonique en fonction de la température de l'échantillon, dans un bain d'acétone liquide maintenu à température constante. Les résultats montrent que la méthode permet de mesurer la température de paroi à l'interface solide-liquide, ce qui est une méthode de mesure de température non intrusive potentiellement prometteuse. Par ailleurs, cette méthode peut également permettre de mesurer l'indice de réfraction d'un liquide dans des plages de températures beaucoup plus larges qu'avec un réfractomètre classique.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Dans cette thèse, une analyse expérimentale de l'effet de la topographie et du revêtement sur la nucléation et le transfert thermique par ébullition nucléée a été menée. Des surfaces nano lisse, lisse, rugueuse, nano structurée et comportant des cavités artificielles ont été testées. Nous présentons ici la conclusion de travaux effectués et les perspectives à ce travail.

Les différentes surfaces ont été réalisées sur un support conçu pour permettre l'absence de la formation de bulles parasites qui est primordiale dans l'étude du déclenchement de l'ébullition. L'échantillon comporte une ailette périphérique de grande dimension qui permet de réduire la surchauffe en périphérie et donc l'apparition des bulles. Cependant, du fait de cette ailette, des pertes thermiques non négligeables sont observées, particulièrement en convection naturelle. Afin d'estimer ces pertes et de corriger les courbes d'ébullition, un modèle numérique axisymétrique de l'échantillon a été développé.

La rugosité de la surface d'étude a été contrôlée par une procédure de polissage bien définie. La caractérisation de l'état de la surface a été assurée par un balayage fin à l'aide d'un microscope confocal. Les mesures obtenues par le microscope confocal permettent d'obtenir une vue synthétique de la dispersion de la rugosité par un histogramme de niveau des pics et des creux et d'identifier les défauts de la surface.

Pour étudier l'ébullition en fonction de l'état de la surface, un banc d'essais d'ébullition en vase a été développé, permettant la visualisation des phénomènes à l'aide d'une caméra rapide, l'échantillon étant en position horizontale.

La nucléation sur des surfaces ultra-lisses sans défaut ($RMS < 60 \text{ nm}$) est de type explosif et nécessite une surchauffe de paroi très élevée pour amorcer l'ébullition (70 à 90 K). Un phénomène d'hystérésis très fort accompagne le déclenchement de l'ébullition nucléée. Un refroidissement de la surface d'environ 50 K suit la transition de la convection naturelle à l'ébullition nucléée. A faible flux thermique décroissant, une distribution homogène de petites bulles sur la surface avec une densité élevée, un faible diamètre de détachement et sans coalescence est observée. Il ne semble pas y avoir de sites de nucléation, même à très bas flux. Dans le cas de surfaces rugueuses, la nucléation s'effectue sur un site isolé avec une surchauffe faible de 15 à 30 K. Le phénomène d'hystérésis est très faible. A bas flux thermique, l'ébullition s'effectue sous la forme de bulles isolées. Trois types de déclenchement ont été observés sur des surfaces lisses avec défauts. La nucléation peut être explosive avec la formation d'une grosse bulle initiale, similaire à celle d'une surface rugueuse avec la formation initiale de bulles sur sites isolés et intermédiaire avec une grosse bulle initiale couvrant une partie de la surface. La nucléation sur une surface nano structurée (réseau 1D) est similaire à celle de la surface lisse sans défaut, c'est-à-dire explosive avec une surchauffe de 84 K à 100 K. Le germe de nucléation a été détecté par caméra rapide sur cette surface nanostructurée. La caméra rapide a été utilisée dans ses limites de fonctionnement pour analyser la croissance de ce germe. Le temps de croissance du germe de nucléation, pour être visible (taille $\mu\text{métrique}$), est inférieur à 25 μs .

La comparaison des courbes d'ébullition pour différents types de surfaces montre un meilleur échange thermique pour les surfaces lisses avec défauts à flux thermiques supérieurs

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

à 5 W/cm². Cette hypothèse a été validée à l'aide d'une surface lisse comportant des cavités artificielles. A très bas flux, la surface nano lisse a une grande distribution de petites bulles qui donnent les meilleures performances thermiques. Cependant, lorsque le flux thermique augmente ces petites bulles coalescent, ce qui dégrade les performances thermiques.

La méthode plasmonique a été utilisée pour étudier le phénomène de nucléation. Elle permet de détecter une variation d'indice de réfraction sur des surfaces d'épaisseur nanométrique à l'interface avec une surface métallique comportant un réseau. L'utilisation de cette méthode pour l'étude de l'ébullition de l'évaporation ou de la condensation n'a jamais été testée. Pour réaliser les mesures par plasmon de surfaces, des réseaux de diffractions monodimensionnels ont été gravés sur la surface.

La méthode de détection plasmonique (SPR) a permis de suivre en temps réel la formation de gouttes de condensation à l'échelle nanométrique et l'évaporation d'un film d'acétone. Un décalage de réponse plasmonique important a été enregistré, ce qui montre le changement d'état liquide/vapeur. Cette expérience a mis en évidence la capacité de la méthode SPR de détecter le changement d'indice de milieu local à l'échelle nanométrique.

En régime de convection naturelle, suivi par le déclenchement de l'ébullition nucléée, différents types d'essais ont été réalisés à flux croissants et décroissants. Les résultats sont reproductibles et montrent que la technique SPR permet de mesurer de manière très locale la température de la paroi de manière non intrusive. Par ailleurs, cette technique permet de mesurer également l'indice de réfraction d'un liquide sur une grande plage de températures.

La calibration de la réponse du détecteur SPR en fonction de la température de l'interface aluminium/acétone a été réalisée. Cet étalonnage a permis de montrer qu'il n'existe pas de modification de l'indice de réfraction lorsque le flux de chaleur se rapproche du déclenchement de l'ébullition, même à très haut flux. Cela peut signifier que le déclenchement de l'ébullition est trop rapide pour être mesuré par cette technique ou que le déclenchement de l'ébullition se fait au-dessus de l'interface à d'une distance à laquelle le signal n'est plus sensible. Dans ce cas, l'ébullition serait de type homogène.

Les perspectives de ce travail de thèse sont nombreuses, notamment celles concernant la technique SPR.

Les résultats obtenus dans ce travail sont prometteurs pour la mise en œuvre dans d'autres contextes de la méthode de détection par résonance plasmon. Cette technique peut être proposée pour la détection des premiers germes de givre sur une paroi et la caractérisation des surfaces permettant de repousser ou au contraire favoriser la condensation ou le givrage. Cette technique pourrait permettre d'étudier les films adsorbés sur une surface. Cette technique peut être proposée pour développer un capteur de températures non intrusif lorsqu'il n'est pas possible d'utiliser une caméra infrarouge. Finalement, cette technique peut être mise en œuvre pour évaluer l'indice de réfraction de liquide sur une grande plage de température.

Les premiers résultats obtenus montrent que les phénomènes fondamentaux du givrage, de l'évaporation et de la condensation peuvent être détectés à l'échelle nanoscopique. Il est désormais nécessaire d'approfondir l'analyse des premiers résultats en lien avec la théorie de la nucléation afin de mieux comprendre les phénomènes physiques ayant lieu à cette échelle.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les études menées sur l'influence de l'état de surface mériteraient d'être prolongées, notamment sur l'effet de la rugosité. Il faudrait pour cela pouvoir s'affranchir complètement des défauts et réaliser des surfaces plus homogènes en topographie. Par ailleurs, les études sur des surfaces ultra-lisses comportant des sites de nucléations judicieusement positionnés ouvrent des perspectives intéressantes qu'il serait souhaitable de prolonger.

Références

- Atwater, H.A., Polman, A., 2010. Plasmonics for improved photovoltaic devices. *Nat Mater* 9, 205–213. doi:10.1038/nmat2629
- Avedisian, C.T., 1985. The Homogeneous Nucleation Limits of Liquids. *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 14, 695–729. doi:10.1063/1.555734
- Bachelot, R., Gleyzes P., Boccara, A.C., 1995. Near-field optical microscope based on local perturbation of a diffraction spot, *Opt. Lett.* 20, 1924.
- Bankoff, S.G., 1957. Ebullition from Solid Surfaces in the Absence of a Pre-Existing Gaseous Phase. *Trans. Am. Soc. Mech. Eng.* Vol: 79.
- Bankoff, S.G., 1958. Entrapment of gas in the spreading of a liquid over a rough surface. *AIChE Journal* 4, 24–26. doi:10.1002/aic.690040105
- Barthes, M., 2005. Ebullition sur site isole : étude expérimentale de la dynamique de croissance d'une bulle et des transferts associés. (Thèse de doctorat). Université de Provence - Aix-Marseille I.
- Becker, R., Döring, W., 1935. Kinetische Behandlung der Keimbildung in übersättigten Dämpfen. *Ann. Phys.* 416, 719–752. doi:10.1002/andp.19354160806
- Benjamin, R.J., Balakrishnan, A.R., 1997. Nucleation site density in pool boiling of saturated pure liquids: Effect of surface microroughness and surface and liquid physical properties. *Experimental Thermal and Fluid Science* 15, 32–42. doi:10.1016/S0894-1777(96)00168-9
- Berenson, J.P., 1960. Transition boiling heat transfer from a horizontal surface (Technical Report). Cambridge, Mass. : Massachusetts Institute of Technology, Division of Industrial Cooperation, [1960].
- Berim, G.O., Ruckenstein, E., 2008. Nanodrop on a nanorough solid surface: Density functional theory considerations. *The Journal of Chemical Physics* 129, 014708. doi:10.1063/1.2951453
- Berini, P., 2000. Plasmon polariton waves guided by thin lossy metal films of finite width : bound modes of symmetric structures. *Phys. Rev. B*, 61 (15), 10484-10503.
- Betz, A.R., Jenkins, J., Kim, C.-J., Attinger, D., 2013. Boiling heat transfer on superhydrophilic, superhydrophobic, and superbiphilic surfaces. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 57, 733–741. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.10.080
- Bi, J., Christopher, D.M., Lin, X., Li, X., 2014. Effects of nucleation site arrangement and spacing on bubble coalescence characteristics. *Experimental Thermal and Fluid Science* 52, 116–127. doi:10.1016/j.expthermflusci.2013.09.002
- Blander, M., Katz, J.L., 1975. Bubble nucleation in liquids. *AIChE J.* 21, 833–848. doi:10.1002/aic.690210502
- Bon, B., Guan, C.-K., Klausner, J.F., 2011. Heterogeneous nucleation on ultra smooth surfaces. *Experimental Thermal and Fluid Science* 35, 746–752. doi:10.1016/j.expthermflusci.2010.05.003

- Bon, B., Klausner, J., McKenna, E., 2013. An Investigation of Pool Boiling Heat Transfer on Single Crystal Surfaces and a Dense Array of Cylindrical Cavities. *J. Heat Transfer* 135, 121501–121501. doi:10.1115/1.4024652
- Bonjour, J., Clausse, M., Lallemand, M., 2000. Experimental study of the coalescence phenomenon during nucleate pool boiling. *Experimental Thermal and Fluid Science* 20, 180–187. doi:10.1016/S0894-1777(99)00044-8
- Borishanski, V.M., 1969. Correlation of the effect of pressure on the critical heat flux and heat transfer rates using the theory of thermodynamic similarity. In *Problems of Heat Transfer And Hydraulics Of Two-Phase Media*, 16-37.
- Bourdon, B., Rioboo, R., Marengo, M., Gosselin, E., De Coninck, J., 2012. Influence of the Wettability on the Boiling Onset. *Langmuir* 28, 1618–1624. doi:10.1021/la203636a
- Calka, A., Judd, R.L., 1985. Some aspects of the interaction among nucleation sites during saturated nucleate boiling. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 28, 2331–2342. doi:10.1016/0017-9310(85)90052-3
- Carey V. P, 2008. *Liquid–Vapor Phase-Change Phenomena: An Introduction to the Thermophysics of Vaporization and Condensation Processes in Heat Transfer Equipment*, Taylor & Francis. ed. Bristol PA.
- Chandezon, J., Raoult, G., Maystre, D., 1980. A new theoretical method for diffraction gratings and its numerical application. *J. Opt.* 11, 235. doi:10.1088/0150-536X/11/4/005
- Chatpun, S., Watanabe, M., Shoji, M., 2004. Experimental study on characteristics of nucleate pool boiling by the effects of cavity arrangement. *Experimental Thermal and Fluid Science* 29, 33–40. doi:10.1016/j.expthermflusci.2004.01.007
- Chatpun, S., Watanabe, M., Shoji, M., 2004. Nucleation site interaction in pool nucleate boiling on a heated surface with triple artificial cavities. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 47, 3583–3587. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2003.11.035
- Chekanov, V.V., 1977. Interaction of centers in nucleate boiling. *Teplofizika Vysokikh Temperatur* 15, 121–128.
- Cioulachtjian, S., Lallemand, M., 2004. Nucleate Pool Boiling of Binary Zeotropic Mixtures. *Heat Transfer Engineering* 25, 32–44. doi:10.1080/01457630490443668
- Cole, R., 1960. A photographic study of pool boiling in the region of the critical heat flux. *AIChE J.* 6, 533–538. doi:10.1002/aic.690060405
- Cole, R., 1974. Boiling Nucleation, in: James P. Hartnett and Thomas F. Irvine (Ed.), *Advances in Heat Transfer*. Elsevier, pp. 85–166.
- Collier, J.G., Thome, J.R., 1994. *Convective boiling and condensation*, third edition. Oxford University Press, Oxford.
- Cooper, M.G., 1984. Saturation nucleate pool boiling. A simple correlation. 1st U.K. Conf. on Heat Transfer, Leeds, ICHME Symp. Series N° 86 785–793.

- Corty, C., Foust, A.S., 1955. Surface variables in nucleate boiling. Chemical engineering progress symposium series 51, 1-12.
- Das, A.K., Das, P.K., Saha, P., 2006. Heat transfer during pool boiling based on evaporation from micro and macrolayer. International Journal of Heat and Mass Transfer 49, 3487–3499. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2006.02.050
- Das, A.K., Das, P.K., Saha, P., 2007. Nucleate boiling of water from plain and structured surfaces. Experimental Thermal and Fluid Science 31, 967–977.
- Debenedetti, P.G., 1996. Metastable Liquids: Concepts and Principles. Princeton University Press.
- Dong, L., Quan, X., Cheng, P., 2014. An experimental investigation of enhanced pool boiling heat transfer from surfaces with micro/nano-structures. International Journal of Heat and Mass Transfer 71, 189–196. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2013.11.068
- El-Genk, M.S., Suszko, A., 2014. Saturation Nucleate Boiling and Correlations for PF-5060 Dielectric Liquid on Inclined Rough Copper Surfaces. J. Heat Transfer 136, 081503–081503. doi:10.1115/1.4027365
- Ferry, V.E., Verschuuren, M.A., Li, H.B.T., Verhagen, E., Walters, R.J., Schropp, R.E.I., Atwater, H.A., Polman, A., 2010. Light trapping in ultrathin plasmonic solar cells. Opt. Express, OE 18, A237–A245. doi:10.1364/OE.18.00A237
- Fleischmann, M., Hendra, P.J., McQuillan, A.J., 1974. Raman spectra of pyridine adsorbed at a silver electrode. Chemical Physics Letters 26, 163–166. doi:10.1016/0009-2614(74)85388-1
- Forster, H.K., Zuber, N., 1955. Dynamics of vapor bubbles and boiling heat transfer. AIChE Journal 1, 531–535.
- Frenkel, J., 1939. A General Theory of Heterophase Fluctuations and Pretransition Phenomena. The Journal of Chemical Physics 7, 538–547. doi:10.1063/1.1750484
- Fritz, W., 1935. Berechnung des Maximalvolume von Dampfblasen. Phys. Zeitung 36, 379.
- Gibbs, J.W., 1879. On the Equilibrium of Heterogeneous Substances (<http://archiv.ub.uni-heidelberg.de/volltextserver/13220/r>).
- Ginet, N., 1999. Analyse des mécanismes contrôlant la croissance et l'ascension d'une bulle isolée en ébullition nucléée. (Thèse de doctorat). Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.
- Griffith, P., Wallis, J.D., 1958. The role of surface conditions in nucleate boiling (Technical Report). Cambridge, Mass. : Massachusetts Institute of Technology, Division of Industrial Cooperation, [1958].
- Harrison, W.B., Levine, Z., 1958. Wetting effects on boiling heat transfer: The copper-stearic acid system. AIChE J. 4, 409–412. doi:10.1002/aic.690040406
- Hastanin, J., 2009. Concept de la détection micromécanique sur base de la résonance de plasmons de surface (phd thesis). Université de liège.

- Holmgaard, T., Chen, Z., Bozhevolnyi, S.I., Markey, L., Dereux, A., Krasavin, A.V., Zayats, A.V., 2009. Wavelength selection by dielectric-loaded plasmonic components. *Appl. Phys. Lett.* 94, 051111. doi:10.1063/1.3078235
- Homola, J., 2003. Present and future of surface plasmon resonance biosensors. *Anal Bioanal Chem* 377, 528–539. doi:10.1007/s00216-003-2101-0
- Homola, J., 2006. Surface plasmon resonance based sensors. Springer.
- Hsu, Y.Y., 1962. On the Size Range of Active Nucleation Cavities on a Heating Surface. *J. Heat Transfer* 84, 207–213. doi:10.1115/1.3684339
- Hung, C., Krasnopoler, M., Katz, J., 1989. Condensation of a supersaturated vapor. VIII. The homogeneous nucleation of n-nonane. *The Journal of Chemical Physics* 90, 1856–1865. doi:10.1063/1.456027
- Hutter, C., Kenning, D.B.R., Sefiane, K., Karayiannis, T.G., Lin, H., Cummins, G., Walton, A.J., 2010. Experimental pool boiling investigations of FC-72 on silicon with artificial cavities and integrated temperature microsensors. *Experimental Thermal and Fluid Science* 34, 422–433. doi:10.1016/j.expthermflusci.2009.03.010
- Hutter, C., Sanna, A., Karayiannis, T.G., Kenning, D.B.R., Nelson, R.A., Sefiane, K., Walton, A.J., 2013. Vertical coalescence during nucleate boiling from a single artificial cavity. *Experimental Thermal and Fluid Science* 51, 94–102. doi:10.1016/j.expthermflusci.2013.07.005
- Hutter, C., Sefiane, K., Karayiannis, T.G., Walton, A.J., Nelson, R.A., Kenning, D.B.R., 2012. Nucleation site interaction between artificial cavities during nucleate pool boiling on silicon with integrated micro-heater and temperature micro-sensors. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 55, 2769–2778. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.02.014
- Ivey, H.J., 1967. Relationships between bubble frequency, departure diameter and rise velocity in nucleate boiling. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 10, 1023–1040.
- Jabardo, J.M.S., Ribatski, G., Stelute, E., 2009. Roughness and surface material effects on nucleate boiling heat transfer from cylindrical surfaces to refrigerants R-134a and R-123. *Experimental Thermal and Fluid Science* 33, 579–590. doi:10.1016/j.expthermflusci.2008.12.004
- Jakob, M., Fritz, W., 1931. Versuche über den verdampfungsvorgang. *Forsch Ing-Wes* 2, 435–447. doi:10.1007/BF02578808
- Jiang, Y.Y., Osada, H., Inagaki, M., Horinouchi, N., 2010. Wall Thermal Conductivity Effects on Nucleation Site Interaction During Boiling: An Experimental Study 637–646. doi:10.1115/IHTC14-23140
- Jo, H., Ahn, H.S., Kang, S., Kim, M.H., 2011. A study of nucleate boiling heat transfer on hydrophilic, hydrophobic and heterogeneous wetting surfaces. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 54, 5643–5652. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2011.06.001
- Jones, B.J., McHale, J.P., Garimella, S.V., 2009. The Influence of Surface Roughness on Nucleate Pool Boiling Heat Transfer. *J. Heat Transfer* 131, 121009–121009. doi:10.1115/1.3220144

- Jorgensen, W.L., Chandrasekhar, J., Madura, J.D., 1983. Comparison of simple potential functions for simulating liquid water. *The Journal of Chemical Physics* 79, 926–935. doi:10.1063/1.445869
- Jourlin, Y., Tonchev, S., Tishchenko, A.V., Pedri, C., Veillas, C., Parriaux, O., Last, A., Lacroute, Y., 2009. Spatially and polarization resolved plasmon mediated transmission through continuous metal films. *Opt. Express* 17, 12155–12166. doi:10.1364/OE.17.012155
- Judd, R.L., 1988. On Nucleation Site Interaction. *J. Heat Transfer* 110, 475–478. doi:10.1115/1.3250510
- Judd, R.L., Chopra, A., 1993. Interaction of the Nucleation Processes Occurring at Adjacent Nucleation Sites. *J. Heat Transfer* 115, 955–962. doi:10.1115/1.2911392
- Judd, R.L., Lavdas, C.H., 1980. The Nature of Nucleation Site Interaction. *J. Heat Transfer* 102, 461–464. doi:10.1115/1.3244323
- Jung, J.-Y., Kwak, H.-Y., 2006. Effect of surface condition on boiling heat transfer from silicon chip with submicron-scale roughness. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49, 4543–4551. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2006.03.045
- Kang, M.-G., 2000. Effect of surface roughness on pool boiling heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 43, 4073–4085. doi:10.1016/S0017-9310(00)00043-0
- Kim, J., 2009. Review of nucleate pool boiling bubble heat transfer mechanisms. *International Journal of Multiphase Flow* 35, 1067–1076. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2009.07.008
- Lakowicz, J.R., 2006. Plasmonics in Biology and Plasmon-Controlled Fluorescence. *Plasmonics* 1, 5–33. doi:10.1007/s11468-005-9002-3
- Leal, L., Lavieille, P., Miscevic, M., Pigache, F., Tadrist, L., 2013. Control of pool boiling incipience in confined space: Dynamic morphing of the wall effect. *Applied Thermal Engineering* 51, 451–458. doi:10.1016/j.applthermaleng.2012.09.031
- Lethiec, C., 2014. Emission polarisée de nanoémetteurs : excitation de plasmons sur une surface métallique (phdthesis). Université Pierre et Marie Curie - Paris VI.
- Li, L., 1994. Multilayer-coated diffraction gratings: differential method of Chandezon et al. revisited. *J. Opt. Soc. Am. A, JOSAA* 11, 2816–2828. doi:10.1364/JOSAA.11.002816
- Liedberg, B., Nylander, C., Lunström, I., 1983. Surface plasmon resonance for gas detection and biosensing. *Sensors and Actuators* 4, 299–304. doi:10.1016/0250-6874(83)85036-7
- Lorentz, J. J., Mikic, B. B., & Rohsenow, W. M., 1974. Effect of surface conditions on boiling characteristics. In *Heat transfer*, 1974. Vol. 4.
- Maris, H.J., 2006. Introduction to the physics of nucleation. *Comptes Rendus Physique, Nucleation* 7, 946–958. doi:10.1016/j.crhy.2006.10.019
- Masson, J.-F., Murray-Méthot, M.-P., Live, L.S., 2010. Nanohole arrays in chemical analysis: manufacturing methods and applications. *Analyst* 135, 1483–1489. doi:10.1039/C0AN00053A

- McHale, J.P., Garimella, S.V., 2008. Measurements of Bubble Nucleation Characteristics in Pool Boiling of a Wetting Liquid on Smooth and Roughened Surfaces 619–629. doi:10.1115/HT2008-56179
- McHale, J.P., Garimella, S.V., 2010. Bubble nucleation characteristics in pool boiling of a wetting liquid on smooth and rough surfaces. *International Journal of Multiphase Flow* 36, 249–260. doi:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2009.12.004
- McHale, J.P., Garimella, S.V., 2013. Nucleate boiling from smooth and rough surfaces – Part 1: Fabrication and characterization of an optically transparent heater–sensor substrate with controlled surface roughness. *Experimental Thermal and Fluid Science* 44, 456–467. doi:10.1016/j.expthermflusci.2012.08.006
- Merikanto, J., Vehkamäki, H., Zapadinsky, E., 2004. Monte Carlo simulations of critical cluster sizes and nucleation rates of water. *The Journal of Chemical Physics* 121, 914–924. doi:10.1063/1.1740754
- Mikic, B.B., Rohsenow, W.M., 1969. A new correlation of pool-boiling data including the effect of heating surface characteristics. *J. Heat Transfer* 245–250.
- Mitrović, J., 1983. Das Abreißen von Dampfblasen an festen Heizflächen. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 26, 955–963. doi:10.1016/S0017-9310(83)80120-3
- Mitrovic, J., 2006. How to create an efficient surface for nucleate boiling? *International Journal of Thermal Sciences* 45, 1–15. doi:10.1016/j.ijthermalsci.2005.05.003
- Moghaddam, S., Kiger, K., 2009. Physical mechanisms of heat transfer during single bubble nucleate boiling of FC-72 under saturation conditions-I. Experimental investigation. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 52, 1284–1294.
- Mosdorf, R., Shoji, M., 2006. Temperature fluctuation at twin cavity in nucleate boiling - wavelet analysis and modelling. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 49, 3156–3166. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2006.02.010
- Mosdorf, R., Shoji, M., 2008. Hydrodynamic aspects of interaction between nucleation sites. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 51, 3378–3386. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2007.11.023
- Mostinski, I.L., 1963. Calculation of heat transfer and critical heat flux in boiling liquids based on law of corresponding states. *Teploenergetika* vol. 10, 66-71.
- Nam, Y., Aktinöl, E., Dhir, V.K., Ju, Y.S., 2011. Single bubble dynamics on a superhydrophilic surface with artificial nucleation sites. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 54, 1572–1577. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2010.11.031
- Nowakowski B., Ruckenstein E., 1991. A kinetic approach to the theory of nucleation in gases. *The Journal of Chemical Physics* 94, 1397–1402. doi:10.1063/1.459997
- Nukiyama, S., 1934. The maximum and minimum values of the heat Q transmitted from metal to boiling water under atmospheric pressure. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 9, 1419–1433. doi:10.1016/0017-9310(66)90138-4

- Nylander, C., Liedberg, B., Lind, T., 1982. Gas detection by means of surface plasmon resonance. *Sensors and Actuators* 3, 79–88. doi:10.1016/0250-6874(82)80008-5
- Phan, H.T., Caney, N., Marty, P., Colasson, S., Gavillet, J., 2009. How does surface wettability influence nucleate boiling? *Comptes Rendus Mécanique* 337, 251–259.
- Phan, H.T., Caney, N., Marty, P., Colasson, S., Gavillet, J., 2009. Surface wettability control by nanocoating: The effects on pool boiling heat transfer and nucleation mechanism. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 52, 5459–5471.
- Pioro, I.L., 1999. Experimental evaluation of constants for the Rohsenow pool boiling correlation. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 42, 2003–2013.
- Pioro, I.L., Rohsenow, W., Doerffer, S.S., 2004. Nucleate pool-boiling heat transfer. I: review of parametric effects of boiling surface. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 47, 5033–5044. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.06.019
- Pockrand, I., Swalen, J.D., 1978. Anomalous dispersion of surface plasma oscillations. *J. Opt. Soc. Am.*, JOSA 68, 1147–1151. doi:10.1364/JOSA.68.001147
- Qi, Y., Klausner, J., 2005. Heterogeneous Nucleation With Artificial Cavities. *Journal of Heat Transfer* 127, 1189. doi:10.1115/1.2039111
- Qi, Y., Klausner, J.F., 2006. Comparison of Gas Nucleation and Pool Boiling Site Densities. *Journal of Heat Transfer* 128, 13–20.
- Rohsenow, W.M., 1951. A method of correlating heat transfer data for surface boiling of liquids. Cambridge, Mass.: MIT Division of Industrial Cooperation, [1951].
- Rohsenow, W.M., Hartnett, J.P., 1973. *Handbook of heat transfer*. McGraw-Hill.
- Roy Chowdhury, S.K., Winterton, R.H.S., 1985. Surface effects in pool boiling. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 28, 1881–1889. doi:10.1016/0017-9310(85)90210-8
- Ruckenstein, E., 1961. A physical model for nucleate boiling heat transfer from a horizontal surface. *I. Inst. Poittechnic Bucuresti* 23, 79–88.
- Ruckenstein, E., 1964. A physical model for nucleate boiling heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 7, 191–198. doi:10.1016/0017-9310(64)90083-3
- Ruckenstein, E., 2002. Microscopic origin of macroscopic wetting. *Colloids and Surfaces. A : Physicochemical and Engineering Aspects* 206, 3–10.
- Ruckenstein, E., Berim, G.O., 2010. Kinetics of heterogeneous nucleation on a rough surface: Nucleation of a liquid phase in nanocavities. *Journal of Colloid and Interface Science* 351, 277–282. doi:10.1016/j.jcis.2010.06.045
- Ruckenstein, E., Berim, G.O., Narsimhan, G., 2015. A novel approach to the theory of homogeneous and heterogeneous nucleation. *Advances in Colloid and Interface Science* 215, 13–27. doi:10.1016/j.cis.2014.10.011
- Ruckenstein, E., Djikaev, Y.S., 2005. Recent developments in the kinetic theory of nucleation. *Advances in Colloid and Interface Science* 118, 51–72. doi:10.1016/j.cis.2005.06.001

- Sanna, A., Karayiannis, T.G., Kenning, D.B.R., Hutter, C., Sefiane, K., Walton, A.J., Golobic, I., Pavlovic, E., Nelson, R.A., 2009. Steps towards the development of an experimentally verified simulation of pool boiling on a silicon wafer with artificial sites. *App. Therm. Eng.* 29, 1327–1337.
- Sato, T., Koizumi, Y., Ohtake, H., 2008. Experimental Study on Fundamental Phenomena of Boiling Using Heat Transfer Surfaces With Well-Defined Cavities Created by MEMS (Effect of Spacing Between Cavities). *J. Heat Transfer* 130, 084501–084501. doi:10.1115/1.2927399
- Sauvage-Vincent, J., 2013. Les modes de plasmon sur film métallique ondulé, appliqués aux documents de sécurité (phdthesis). Université Jean Monnet - Saint-Etienne.
- Schmelzer, J.W.P., 2006. Nucleation Theory and Applications. John Wiley & Sons.
- Shen, V.K., Debenedetti, P.G., 2002. A kinetic theory of homogeneous bubble nucleation. *The Journal of Chemical Physics* 118, 768–783. doi:10.1063/1.1526836
- Shoji, M., Mosdorf, R., Zhang, L., Takagi, Y., Yasui, K., Yokota, M., 2002. Features of boiling on an artificial surface — Bubble formation, wall temperature fluctuation and nucleation site interaction. *J. of Therm. Sci.* 11, 226–234. doi:10.1007/s11630-002-0059-4
- Shoji, M., Takagi, Y., 2001. Bubbling features from a single artificial cavity. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 44, 2763–2776. doi:10.1016/S0017-9310(00)00300-8
- Siedel, S., 2012. Bubble dynamics and boiling heat transfer: a study in the absence and in the presence of electric fields (phdthesis). INSA de Lyon.
- Siedel, S., Cioulachtjian, S., Bonjour, J., 2008. Experimental analysis of bubble growth, departure and interactions during pool boiling on artificial nucleation sites. *Experimental Thermal and Fluid Science* 32, 1504–1511. doi:10.1016/j.expthermflusci.2008.04.004
- Sommerfeld, A., 1899. Ueber die Fortpflanzung elektrodynamischer Wellen längs eines Drahtes. *Ann. Phys.* 303, 233–290. doi:10.1002/andp.18993030202
- Stephan, K., Abdelsalam, M., 1980. Heat-transfer correlations for natural convection boiling. *Int. J. Heat Mass Transfer* 23, 73–87.
- Stephan, P.D.K., 1992. Heat Transfer in Condensation and Boiling, International Series in Heat and Mass Transfer. Springer Berlin Heidelberg.
- Stutz, B., Simões-Moreira, J.R., 2013. Onset of boiling and propagating mechanisms in a highly superheated liquid - the role of evaporation waves. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 56, 683–693. doi:10.1016/j.ijheatmasstransfer.2012.08.057
- Talanquer, V., Oxtoby, D.W., 1996. Nucleation on a solid substrate: A density functional approach. *The Journal of Chemical Physics* 104, 1483–1492. doi:10.1063/1.470914
- Theofanous, T., Tu, J., Dinh, A., Dinh, T., 2002. The boiling crisis phenomenon: Part I: nucleation and nucleate boiling heat transfer. *Experimental Thermal and Fluid Science* 26, 775–792. doi:10.1016/S0894-1777(02)00192-9

- Thormählen, I. (1986). Superheating of liquids at the onset of boiling. In Proceedings of the Eighth International Heat Transfer Conference, San Francisco (pp. 2001-2006).
- Torii, D., Ohara, T., Ishida, K., 2009. Molecular-Scale Mechanism of Thermal Resistance at the Solid-Liquid Interfaces: Influence of Interaction Parameters Between Solid and Liquid Molecules. *J. Heat Transfer* 132, 012402–012402–9. doi:10.1115/1.3211856
- Vachon, R.I., Nix, G.H., Tanger, G.E., 1968. Evaluation of Constants for the Rohsenow Pool-Boiling Correlation. *J. Heat Transfer* 90, 239–246. doi:10.1115/1.3597489
- Wang, C.H., Dhir, 1993. On the Gas Entrapment and Nucleation Site Density During Pool Boiling of Saturated Water. *Journal of Heat Transfer* 670–679.
- Wang, C.H., Dhir, V.K., 1993. Effect of Surface Wettability on Active Nucleation Site Density During Pool Boiling of Water on a Vertical Surface. *J. Heat Transfer* 115, 659–669. doi:10.1115/1.2910737
- Webb, R.L., 2004. Donald Q. Kern Lecture Award Paper: Odyssey of the Enhanced Boiling Surface. *Journal of Heat Transfer* 126, 1051. doi:10.1115/1.1834615
- Wei, Y.S., Sadus, R.J., 2000. Equations of state for the calculation of fluid-phase equilibria. *AIChE J.* 46, 169–196. doi:10.1002/aic.690460119
- Witharana, S., Phillips, B., Strobel, S., Kim, H.D., McKrell, T., Chang, J.-B., Buongiorno, J., Berggren, K.K., Chen, L., Ding, Y., 2012. Bubble nucleation on nano- to micro-size cavities and posts: An experimental validation of classical theory. *Journal of Applied Physics* 112, 064904. doi:10.1063/1.4752758
- Wood, R. w., 1902. XLIV. A suspected case of the electrical resonance of minute metal particles for light-waves. A new type of absorption. *Philosophical Magazine Series 6* 3, 396–410. doi:10.1080/14786440209462780
- Xu, W., Lan, Z., Peng, B.L., Wen, R.F., Ma, X.H., 2015. Effect of surface free energies on the heterogeneous nucleation of water droplet: A molecular dynamics simulation approach. *The Journal of Chemical Physics* 142, 054701. doi:10.1063/1.4906877
- Yeatman, E.M., 1996. Resolution and sensitivity in surface plasmon microscopy and sensing. *Biosensors and Bioelectronics* 11, 635-649. doi: 10.1016/0956-5663(96)83298-2.
- Yu, C.K., Lu, D.C., Cheng, T.C., 2006. Pool boiling heat transfer on artificial micro-cavity surfaces in dielectric fluid FC-72. *J. Micromech. Microeng.* 16, 2092. doi:10.1088/0960-1317/16/10/024
- Zenneck, J., 1907. Über die Fortpflanzung ebener elektromagnetischer Wellen längs einer ebenen Leiterfläche und ihre Beziehung zur drahtlosen Telegraphie. *Ann. Phys.* 328, 846–866. doi:10.1002/andp.19073281003
- Zhang, L., Shoji, M., 2003. Nucleation site interaction in pool boiling on the artificial surface. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 46, 513–522. doi:10.1016/S0017-9310(02)00291-0
- Zuber, N., 1959. Hydrodynamic aspects of boiling heat transfer. Report AECU-4439, U.S. Atomic Energy Commission.

Annexe 1 : Ecriture des ondes évanescentes sous forme complexe

Nous recherchons, comme solution des équations de Maxwell, un mode particulier qui a la forme d'une onde de surface. Une onde de surface est une onde propagative le long de l'interface et évanescente normalement à celle-ci. Les deux milieux, métal et diélectrique, sont supposés linéaires, homogènes isotropes et semi-infinis. Ils sont parcourus chacun par une onde évanescente.

Le système à étudier est résumé sur la figure A1.1.

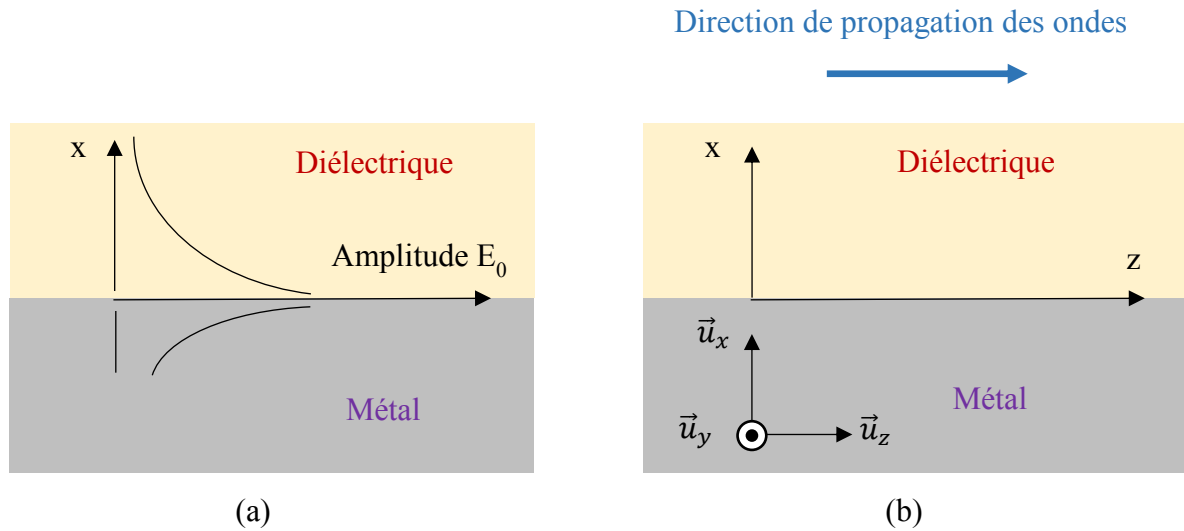


Figure A1.1 : Configuration étudiée. a) décroissance de l'amplitude en fonction de la distance à l'interface. b) Repère utilisé

On peut écrire un champ électrique (ou le champ magnétique) associé à une onde plane monochromatique et évanescente, sous la forme :

$$\vec{E}(x, z, t) = E_0 \underbrace{e^{\pm \alpha x}}_{\substack{\text{évanescence} \\ \text{suivant } x \\ \text{(diminution} \\ \text{de l'amplitude en} \\ \text{s'éloignant de} \\ \text{l'interface} \\ \text{ici } \alpha > 0}} \underbrace{e^{-\beta z}}_{\substack{\text{atténuation} \\ \text{lors de la propagation} \\ \text{suivant } z \\ \text{(liée aux pertes} \\ \text{énergétiques :} \\ \text{effet Joule dans} \\ \text{conducteur)}}} \cos\left(\underbrace{k'_z z}_{\substack{\text{propagation} \\ \text{suivant } z}} - \omega t\right) \vec{u} \quad (A1.1)$$

$\vec{u}_E$ est le vecteur unitaire associé au champ $\vec{E}$, appelé « vecteur polarisation de $\vec{E}$ ».

Si la propagation a lieu selon les valeurs de z croissant, on doit avoir $\beta > 0$ pour traduire une atténuation.

Remarque

- Pour traduire une onde évanescence, $e^{\pm\alpha x}$ doit décroître lorsque l'on s'éloigne de l'interface.

Dans le milieu diélectrique, puisque $x > 0$, on doit écrire : $e^{-\alpha_d x}$ avec $\alpha_d > 0$

Dans le milieu métallique, puisque $x < 0$, on doit écrire : $e^{+\alpha_m x}$ avec $\alpha_m > 0$

Sous cette forme α apparaît comme un « coefficient d'atténuation »

Milieu diélectrique (indice d)

L'onde évanescence dans le milieu diélectrique s'écrit :

$$\vec{E}_d(x, z, t) = E_{0d} e^{-\alpha_d x} e^{-\beta z} \cos(k'_{dz} z - \omega t) \vec{u}_{Ed} \quad (A1.2)$$

En notation complexe cette expression devient

$$\underline{\vec{E}}_d(x, z, t) = \underline{E}_{0d} e^{-\alpha_d x} e^{-\beta z} e^{i(k'_{dz} z - \omega t)} \vec{u}_{Ed} \quad (A1.3)$$

(le symbole $\underline{\quad}$ indique une grandeur complexe)

$$\underline{\vec{E}}_d(x, z, t) = \underline{E}_{0d} e^{i((k'_{dz} + i\beta)z + i\alpha_d x - \omega t)} \vec{u}_{Ed} \quad (A1.4)$$

En introduisant un vecteur d'onde complexe $\underline{\vec{k}}_d$, l'expression (4) s'écrit sous la forme :

$$\boxed{\begin{aligned} \underline{\vec{E}}_d(x, z, t) &= \underline{E}_{0d} e^{i(\underline{\vec{k}}_d \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{u}_{Ed} \\ avec \quad \begin{cases} \underline{k}_{dx} = i k''_{dx} & k''_{dx} = \alpha_d > 0 \\ 0 & \\ \underline{k}_{dz} = k'_{dz} + i k''_{dz} & k''_{dz} = \beta > 0 \end{cases} \end{aligned}} \quad (A1.5)$$

$$\vec{r} \begin{cases} x \\ y \\ z \end{cases} = \text{vecteur position}$$

Milieu métallique (indice m)

L'onde évanescence dans le milieu diélectrique s'écrit :

$$\vec{E}_d(x, z, t) = E_{0m} e^{+\alpha_m x} e^{-\beta z} \cos(k'_{mz} z - \omega t + \varphi) \vec{u}_{Em} \quad (A1.6)$$

On obtient de même, En introduisant un vecteur d'onde complexe $\vec{k}_m$, on a :

$$\boxed{\begin{aligned} \vec{E}_m(x, z, t) &= E_{0m} e^{i(\vec{k}_m \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{u}_{Em} \\ \text{avec } \begin{cases} \underline{k}_{mx} = i k''_{mx} & k''_{mx} = -\alpha_m < 0 \\ 0 \\ \underline{k}_{mz} = k'_{mz} + i k''_{mz} & k''_{mz} = \beta > 0 \end{cases} \end{aligned}} \quad (A1.7)$$

Une expression de la forme $\vec{E} = E_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$ est solution de l'équation de Helmholtz traduisant la propagation d'une onde électromagnétique plane harmonique.

La partie réelle de $\vec{k}$ traduit donc la propagation de l'onde, les parties imaginaires traduisent l'atténuation (pertes dans la direction de propagation, caractère évanescent dans la direction perpendiculaire à l'interface).

Remarque : on montre de façon générale, que la composante $\underline{k}_z$ de $\vec{k}$ parallèle à l'interface se conserve à la traversée de l'interface.

Cela signifie $\underline{k}_{dz} = \underline{k}_{mz}$. Ces deux composantes seront donc notés par la suite $\underline{k}_z$

Annexe 2 : Nécessité des ondes transverses magnétiques

Les expressions sous forme complexe des champs électriques associés aux ondes évanescences dans les deux milieux, diélectrique et métallique, sont présentées à l'annexe 1. Nous examinons maintenant les conditions pour que de telles ondes peuvent se propager simultanément à la l'interface séparant ces deux milieux. Cela nécessite de préciser les conditions de raccordement (appelées relations de continuité ou de passage) des deux ondes à l'interface. Ces conditions doivent être respectées pour les champs électriques et magnétiques des deux ondes.

A2.1. Détermination du champ magnétique connaissant le champ électrique ou inversement

Le passage $\vec{E}$ à $\vec{B}$ ou de $\vec{B}$ à $\vec{E}$, s'effectue en utilisant la relation de Maxwell-Faraday ou de Maxwell-Ampère.

$$\text{Maxwell-Faraday : } \overrightarrow{\text{rot}} \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (\text{A2.1})$$

$$\text{Maxwell-Ampère : } \overrightarrow{\text{rot}} \vec{B} = \varepsilon_r \varepsilon_o \mu_o \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (\text{A2.2})$$

(cas où $\mu_r = 1$ et où pas de courant de conduction)

A2.2. Relations de continuité

Elles permettent de relier à l'interface, les champs électriques de part et d'autre de l'interface et les champs magnétiques de part et d'autre de l'interface.

On rappelle tout d'abord les relations constitutives liant le vecteur déplacement $\vec{D}$ à $\vec{E}$ et le champ excitation magnétique $\vec{H}$ à $\vec{B}$. Pour des milieux linéaires et isotropes, on a, en notations complexes (donc uniquement pour des ondes harmoniques) :

$$\underline{\vec{D}} = \varepsilon_o \underline{\varepsilon_r} \underline{\vec{E}} \quad \text{et} \quad \underline{\vec{B}} = \mu_o \underline{\mu_r} \underline{\vec{H}} \quad (\text{mais avec les 2 milieux considérés ici } \underline{\mu_r} \approx 1)$$

Les relations de passage à l'interface diélectrique-métal ($x = 0$), permettent de préciser les relations entre les champs électriques et magnétiques dans les 2 milieux. A « l'échelle de l'interface » (donc sans avoir recours à des charges et des courants surfaciques) on a :

$$\text{Continuité des composantes normales de } \underline{\vec{D}} : \underline{\vec{n}}_{md} \cdot (\underline{\varepsilon}_{rd} \underline{E_d} \underline{\vec{u}}_{Ed} - \underline{\varepsilon}_{rm} \underline{E_m} \underline{\vec{u}}_{Em}) = 0 \quad (\text{A2.3a})$$

$$\text{Continuité des composantes tangentielles de } \underline{\vec{E}} : \underline{\vec{n}}_{md} \times (\underline{E_d} \underline{\vec{u}}_{Ed} - \underline{E_m} \underline{\vec{u}}_{Em}) = \vec{0} \quad (\text{A2.3b})$$

$$\text{Continuité des composantes normales de } \underline{\vec{B}} : \underline{\vec{n}}_{md} \cdot (\underline{B_d} \underline{\vec{u}}_{Bd} - \underline{B_m} \underline{\vec{u}}_{Bm}) = 0 \quad (\text{A2.3c})$$

$$\text{Continuité des composantes tangentielles de } \underline{\vec{H}} : \underline{\vec{n}}_{md} \times (\underline{B_d} \underline{\vec{u}}_{Bd} - \underline{B_m} \underline{\vec{u}}_{Bm}) = \vec{0} \quad (\text{A2.3d})$$

Où $\vec{n}_{md}$ est la normale orientée du métal vers le diélectrique (figure A2-1).

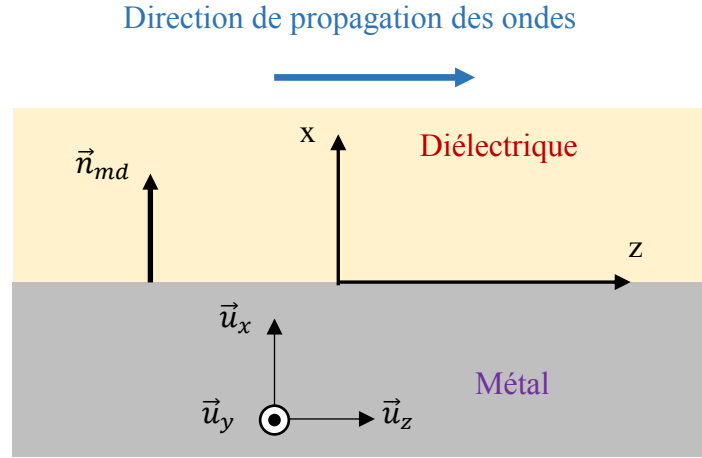


Figure A2.1 : repère utilisé et orientation de l'interface

Nous allons à présent distinguer les cas de la polarisation transverse électrique TE correspondant à un champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence (et donc orienté suivant l'axe y), de la polarisation transverse magnétique TM (champ électrique dans le plan d'incidence Oxz). Nous allons montrer que seule la polarisation TM peut donner lieu à la propagation d'ondes évanescentes guidées le long de l'interface.

Polarisation TE

On se place dans le cas où l'onde évanescente dans le milieu diélectrique est transverse électrique TE. Le champ $\vec{E}_d$ est lors perpendiculaire à la direction de propagation et est parallèle à l'interface. Il est orienté suivant $\vec{u}_y$, il n'a donc pas de composante normales à l'interface. On a donc :

$$\text{Diélectrique : } \vec{E}_d(x, z, t) = E_0 e^{i(k_{dx}x + k_z z - \omega t)} \vec{u}_y \quad (\text{A2.4})$$

L'équation (A2.5) implique alors aussi que $\vec{E}_m$ n'a pas de composante normale. La continuité des composantes tangentielles de $\vec{E}$ implique $\vec{E}_m$ est suivant $\vec{u}_y$ (donc est aussi transverse électrique TE) et a même amplitude réelle que $\vec{E}_d$: $E_{om} = E_{om} = E_0$

Les vecteurs polarisation ont même direction. En les orientant dans le même sens, soit $\vec{u}_{Em} = \vec{u}_{Edm} = +\vec{u}_y$, on a :

$$\text{Métal : } \vec{E}_m(x, z, t) = E_0 e^{i(k_{mx}x + k_z z - \omega t)} \vec{u}_y \quad (\text{A2.5})$$

L'utilisation de l'équation de Maxwell-Faraday (A2.1) $\vec{\text{rot}}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}$ appliquée à (A2.4) et (A2.5) permet d'obtenir les vecteurs champs magnétiques dans les deux milieux. On trouve :

$$\text{Diélectrique : } \underline{\vec{B}}_d(x, z, t) = \frac{E_0}{\omega} \begin{pmatrix} -\underline{k}_z \\ 0 \\ +\underline{k}_{dx} \end{pmatrix} e^{i(\underline{k}_{dx} x + \underline{k}_z z - \omega t)} \quad (\text{A2.6})$$

$$\text{Métal : } \underline{\vec{B}}_{dm}(x, z, t) = \frac{E_0}{\omega} \begin{pmatrix} -\underline{k}_z \\ 0 \\ +\underline{k}_{mx} \end{pmatrix} e^{i(\underline{k}_{mx} x + \underline{k}_z z - \omega t)} \quad (\text{A2.7})$$

La continuité de la relation (A2.3d) implique $\underline{k}_{dx} = \underline{k}_{mx}$, donc que implique :

$$\underline{k}_{dx} = -\underline{k}_{mx} \quad (\text{A2.8})$$

Comme $\underline{k}_{dx}$ et $\underline{k}_{mx}$ sont de même signe. La condition (A2.8) **n'est jamais satisfaite**.

Polarisation TM

Dans cette configuration, c'est le champ $\underline{\vec{B}}_d$ qui est perpendiculaire à la direction de propagation et est parallèle à l'interface.

$$\text{Diélectrique : } \underline{\vec{B}}_d(x, z, t) = B_0 e^{i(\underline{k}_{dx} x + \underline{k}_z z - \omega t)} \underline{\vec{u}}_y \quad (\text{A2.9})$$

La continuité des composantes tangentielles de $\underline{\vec{B}}$ montre que $\underline{\vec{B}}_m$ possède aussi une polarisation transversale magnétique, est en phase avec $\underline{\vec{B}}_d$ sur l'interface et la même amplitude que $\underline{\vec{B}}_d$ sur cette interface ($B_{0d} = B_{0m} = B_0$)

$$\text{Métal : } \underline{\vec{B}}_m(x, z, t) = B_0 e^{i(\underline{k}_{mx} x + \underline{k}_z z - \omega t)} \underline{\vec{u}}_y \quad (\text{A2.10})$$

L'utilisation de l'équation de Maxwell-Ampère $\vec{\text{rot}}\vec{B} = \epsilon_r \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial\vec{E}}{\partial t}$ (on peut aussi faire avec Maxwell-Faraday : $\vec{\text{rot}}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}$) donne les relations suivante :

$$\text{Diélectrique : } \underline{\vec{E}}_d(x, z, t) = \frac{B_0}{\omega} c^2 \frac{1}{\epsilon_{rd}} \begin{pmatrix} +\underline{k}_z \\ 0 \\ -\underline{k}_{dx} \end{pmatrix} e^{i(\underline{k}_{dx} x + \underline{k}_z z - \omega t)} \quad (\text{A2.11})$$

$$\text{Métal : } \underline{\vec{E}}_{dm}(x, z, t) = \frac{B_0}{\omega} c^2 \frac{1}{\epsilon_{rm}} \begin{pmatrix} +\underline{k}_z \\ 0 \\ -\underline{k}_{mx} \end{pmatrix} e^{i(\underline{k}_{mx} x + \underline{k}_z z - \omega t)} \quad (\text{A2.12})$$

Avec : $c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}} = 3 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$.

La constante diélectrique $\epsilon_{rm}(\omega)$ d'un métal excité par une signal sinusoïdal est une grandeur complexe (d'où le symbole « barre » sous ϵ_{rm}) qui dépend fortement de la fréquence (voir le

modèle de Drude-Lorentz, chapitre 5 paragraphe 5.2.2). De même du fait des phénomènes de polarisation, la constante diélectrique du milieu diélectrique excité par un signal sinusoïdal s'exprime sous la forme d'une quantité complexe $\underline{\epsilon}_{rd}(\omega)$.

La continuité des composantes tangentielle de $\vec{E}$ (composantes suivant $\vec{u}_z$) à l'interface (relation A2.3b) impose que la relation suivante soit vérifiée :

$$\frac{k_{dx}}{\underline{\epsilon}_{rd}} + \frac{k_{mx}}{\underline{\epsilon}_{rm}} = 0 \quad (\text{A2.13})$$

Ou encore :

$$\underline{\epsilon}_{rm} \underline{k}_{dx} + \underline{\epsilon}_{rd} \underline{k}_{mx} = 0 \quad (\text{A2.14})$$

Or d'après l'annexe A1, équations (A1.5) et (A1.7), on a :

$$\underline{k}_{dx} = i k''_{dx} = i \alpha_d \quad ; \quad \underline{k}_{mx} = i k''_{mx} = -i \alpha_{dm}$$

$$\underline{\epsilon}_{rd} = \epsilon'_{rd} + i \epsilon''_{rd} \quad ; \quad \underline{\epsilon}_{rm} = \epsilon'_{rm} + i \epsilon''_{rm}$$

En séparant les parties réelle et imaginaire, la relation (A2.14) implique que :

$$\alpha_d \epsilon'_{rm} + \alpha_m \epsilon'_{rd} = 0 \quad (\text{A2.15a})$$

$$\alpha_d \epsilon''_{rm} + \alpha_m \epsilon''_{rd} = 0 \quad (\text{A2.15b})$$

Si on se limite aux grandeurs réelles (équation A2.15a), on voit que des ondes évanescentes guidées peuvent, peut-être, être réalisées, puisque (k_{dx} et k_{mx} étant > 0) pour un diélectrique $\epsilon'_{rd} > 0$ alors que pour un métal $\epsilon'_{rm} < 0$.

La figure A2-2 représente schématiquement les champs électriques et magnétiques dans cette configuration

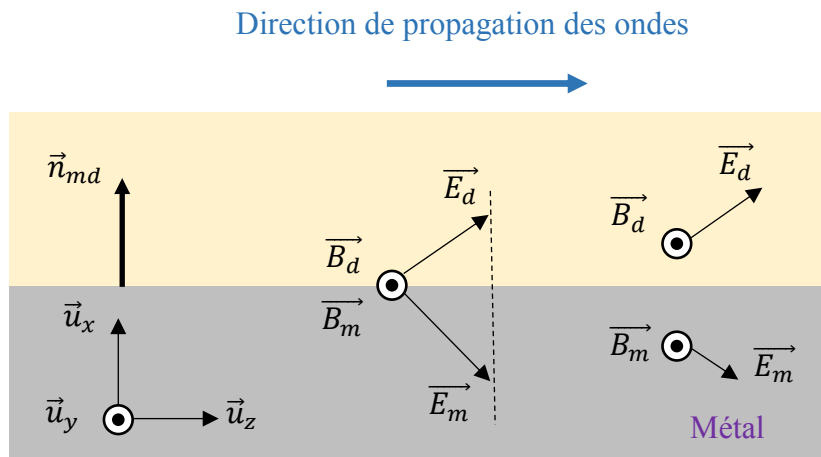


Figure A2.2 : Représentation des champs électromagnétiques dans les 2 milieux

Sur cette figure A2.2, les 2 ondes évanescentes sont transverses magnétiques (les champs magnétiques sont parallèles à l'interface et sont normaux à la direction de propagation des ondes). Les 2 champs électriques $\vec{E}_d$ et $\vec{E}_m$ possèdent une composante transversale (perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde) et une composante longitudinale (suivant la direction de propagation). A l'interface, les deux composantes longitudinales (suivant $\vec{u}_z$) des champs électriques $\vec{E}_d$ et $\vec{E}_m$ sont égales (relation de continuité A2.1b). Du fait que les deux milieux ont la même perméabilité magnétique ($\mu_d \approx \mu_m \approx \mu_0$) les champs $\vec{B}_d(0, z, t)$ et $\vec{B}_m(0, z, t)$ sont égaux sur l'interface.

D'autre part les champs $\vec{B}_d$ et $\vec{B}_m$ vibrant selon une seule direction sont polarisés rectilignement. Les champs $\vec{E}_d$ et $\vec{E}_m$, ayant chacun deux composantes déphasées vibrant de façon sinusoïdale, possèdent une polarisation elliptique.

Annexe 3 : Expression du vecteur k

Les expressions sous formes complexes des champs électriques associés aux ondes évanescentes dans les deux milieux, diélectrique et métallique, sont présentées à l'annexe 1. Nous examinons maintenant les conditions pour que de telles ondes peuvent se propager simultanément à la l'interface séparant ces deux milieux. Cela nécessite de préciser les conditions de raccordement (appelées relations de continuité ou de passage) des deux ondes à l'interface. Ces conditions doivent être respectées pour les champs électriques et magnétiques des deux ondes.

Les grandeurs k s'expriment en fonction de la permittivité diélectrique relative du milieu et de la pulsation ω :

$$\underline{k_d^2} = \underline{k_{dx}^2} + \underline{k_z^2} = \underline{\epsilon_{rd}} k_0^2 = \underline{\epsilon_{rd}} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{A3.1a})$$

$$\underline{k_m^2} = \underline{k_{mx}^2} + \underline{k_z^2} = \underline{\epsilon_{rm}} k_0^2 = \underline{\epsilon_{rm}} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{A3.1b})$$

D'autre part, selon l'annexe A2 (relation A2.14), on a :

$$\underline{\epsilon_{rm}} \underline{k_{dx}} + \underline{\epsilon_{rd}} \underline{k_{mx}} = 0 \quad (\text{A3.2})$$

La combinaison des 3 relations ci-dessus conduit aux relations suivantes :

$$\underline{k_{dx}^2} = \frac{\underline{\epsilon_{rd}^2}}{\underline{\epsilon_{rd}} + \underline{\epsilon_{rm}}} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{A3.3a})$$

$$\underline{k_{mx}^2} = \frac{\underline{\epsilon_{rm}^2}}{\underline{\epsilon_{rd}} + \underline{\epsilon_{rm}}} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{A3.3b})$$

$$\underline{k_z^2} = \frac{\underline{\epsilon_{rd}} \underline{\epsilon_{rm}}}{\underline{\epsilon_{rd}} + \underline{\epsilon_{rm}}} \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \quad (\text{A3.3c})$$

$$\text{avec : } \begin{cases} \underline{\epsilon_{rd}} = \epsilon'_{rd} + j \epsilon''_{rd} \\ \underline{\epsilon_{rm}} = \epsilon'_{rm} + j \epsilon''_{rm} \end{cases}$$

Dans le cas d'un milieu diélectrique, la partie complexe de la constante diélectrique est négligeable, sauf autour d'une fréquence de résonnance où le milieu diélectrique devient fortement absorbant. Dans le cas de l'acétone aux fréquences des ondes lumineuses, ϵ''_{rd} négligeable (l'acétone est très transparent à la lumière visible). On écrira donc ici :

$$\underline{\epsilon_{rd}} \approx \epsilon'_{rd} = \epsilon_{rd}$$

D'un point de vue qualitatif, la partie complexe ϵ''_{rm} de $\underline{\epsilon_{rm}}$ ne peut pas être supprimée car elle est reliée aux pertes énergétiques dans le milieu conducteur, c'est-à-dire à l'absorption.

En supposant cependant que ε''_{rm} reste petit devant ε'_{rm} , on obtient les approximations suivantes :

$$k'_z \approx \sqrt{\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}}} \frac{\omega}{c} \quad (\text{A3.4})$$

$$k''_z \approx \sqrt{\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}}} \frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon''_{rm}}{2 \varepsilon'_{rm} (\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm})} \frac{\omega}{c} \quad (\text{A3.5})$$

Annexe 4 : Rôle du réseau

Avec une surface plane métallique, il n'est pas possible d'exciter les plasmons car $k_{iz} = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_d \sin\theta_i$ reste toujours inférieur au nombre d'onde k_{SP} associé aux plasmons, même si $\sin\theta_i = 1$, c'est-à-dire en incidente rasante.

Nous allons donc ici comparer k_{iz} et k_{SP} . Pour cela le nombre d'onde k_{SP} doit être déterminé. Or dans l'annexe 3, nous avons présenté une relation donnant k_{SP} :

$$k'_z = k_{SP} \approx \sqrt{\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}}} \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda_{SP}} \quad (A4.1)$$

Mais il s'agissait là d'une expression simplifiée. Cette expression repose sur une approximation : $|\varepsilon''_r| \ll |\varepsilon'_r|$. Or l'examen des courbes expérimentales fournies par Hastanin, montre que cette approximation n'est pas bien justifiée pour l'aluminium. Afin de pouvoir calculer de façon précise k'_{mx} , nous avons d'abord approché les courbes expérimentales par des polynômes d'interpolation. Ces polynômes sont donnés sur la figure A4.1.

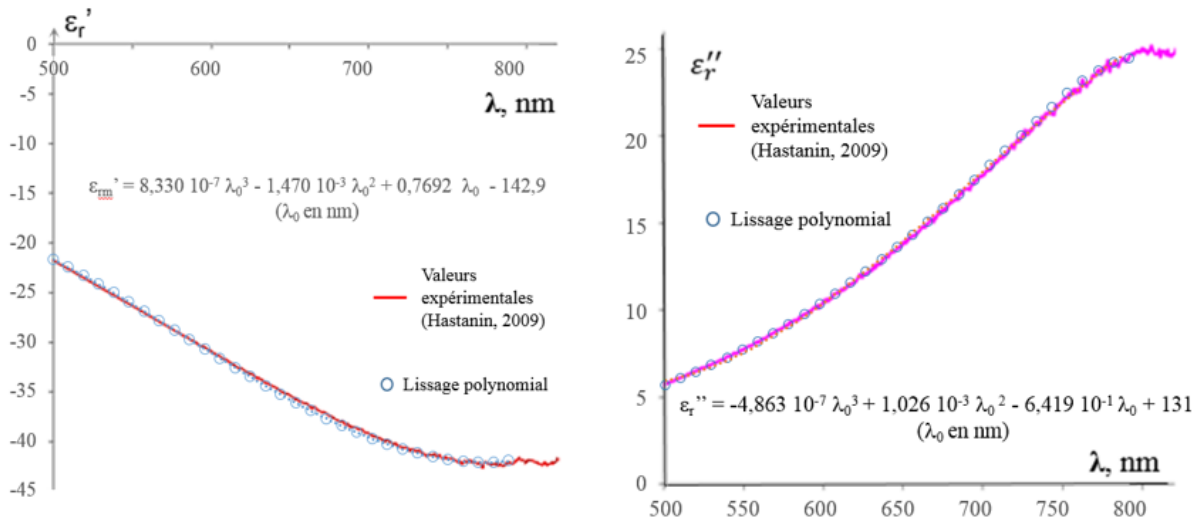


Figure A4.1 : Variation, en fonction de λ_0 , de ε'_r et ε''_r pour l'aluminium

Expression de k'_z sans approximation

D'après la relation A3.3b de l'annexe 3, on a :

$$k_z^2 = \frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon_{rm}} \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \quad (A4.2)$$

Soit :

$$(k'_z + j k''_z)^2 = \frac{\varepsilon_{rd} (\varepsilon'_{rm} + j \varepsilon''_{rm})}{\varepsilon_{rd} + (\varepsilon'_{rm} + j \varepsilon''_{rm})} \left(\frac{\omega}{c} \right)^2 \quad (A4.3)$$

On obtient la relation :

$$k'_z = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{1}{2} \frac{\varepsilon_{rd} [\varepsilon'_{rm} (\varepsilon'_{rm} + \varepsilon_{rd}) + (\varepsilon''_{rm})^2]}{(\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm})^2 - (\varepsilon''_{rm})^2}} \left(1 + \sqrt{1 + \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon''_{rm}}{\varepsilon'_{rm} (\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}) + (\varepsilon''_{rm})^2} \right)^2} \right) \quad (A4.4)$$

La figure A4.2, représente les courbes établies à partir de la relation exacte (A4.4), de la relation approchée (A4.1) et elle compare à ces courbes la valeur maximale de k_{iz} (obtenue en incidente rasante : $\sin\theta_i = 1$, indice de l'acétone = 1,35). Cette figure montre que le phénomène de plasmon ne peut pas être excité sur une surface plane métallique, car k_{iz} ne peut jamais égaler le nombre d'onde plasmon k'_z . D'autre part, la relation simplifiée n'est pas valable, notamment aux grandes longueurs d'onde. Or si l'on regarde les courbes de Hastanin, c'est bien aux grandes longueurs d'ondes que l'approximation est la plus douteuse.

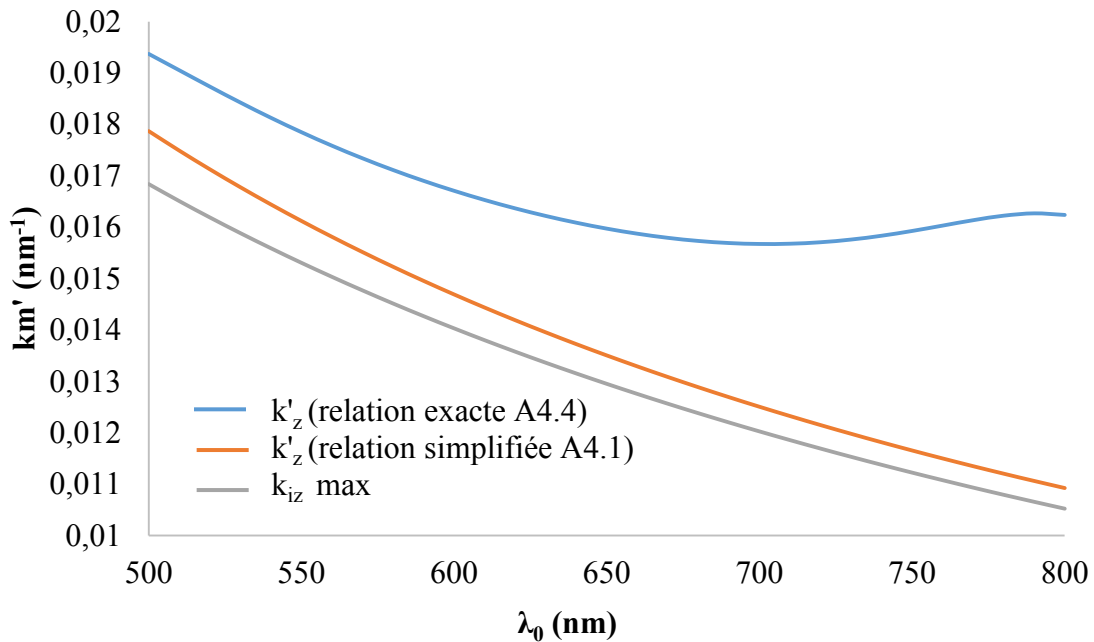


Figure A4.2 : Mise en évidence de l'impossibilité d'exciter des plasmons sur une surface plane (l'indice de l'acétone prise

Le réseau permet d'ajouter à la quantité k_{iz} une quantité supplémentaire égale à $\frac{2\pi}{\Lambda}$ afin de réaliser le couplage. La figure A4.3 représente l'écart, entre le nombre d'onde associé à l'ordre un diffracté et le nombre d'onde associé aux plasmons. L'angle d'incidence est ici égal à 35° , l'indice optique de l'acétone est $n_d = 1,34$. L'écart est minimum pour $\lambda_0 = 650$ nm, c'est donc à cette longueur d'onde que les plasmons seront excités.

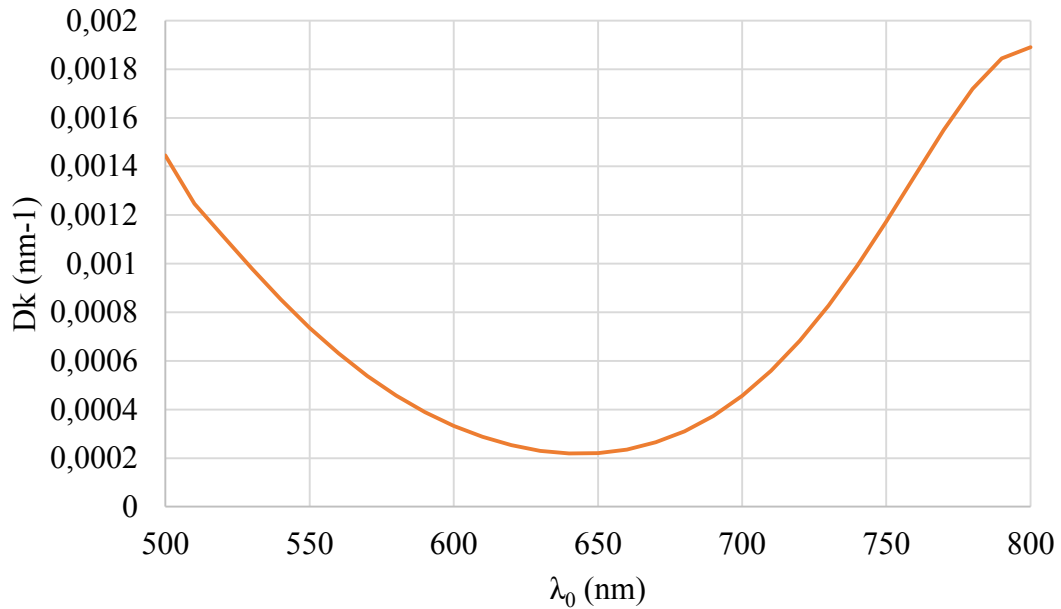


Figure A4.3 : Détermination de la longueur d'onde d'excitation du plasmon, pour $n = 1,34$ et $\theta_i = 35^\circ$

Annexe 5 : Détermination de l'indice de réfraction de l'acétone à partir des données sur le plasmon.

Les essais réalisés dans le chapitre 5, ont fait apparaître, dans le cas d'un fluide monophasique en contact avec la paroi métallique, une dépendance de la position du pic d'absorption en fonction de la température. Les essais montrent que, dans le domaine de longueurs d'ondes considérées (entre 500 et 700 nm) et dans l'intervalle de températures testées (entre 15 °C et 130 °C), la longueur d'onde λ_0 correspondant au pic d'absorption se déplace vers les faibles longueurs d'ondes (ou les hautes fréquences) lorsque la température augmente. Le déplacement du pic d'absorption peut s'expliquer par la dépendance des permittivités diélectriques du fluide et du métal avec la température (la température étant la seule grandeur que l'on a fait varier dans nos essais).

Réalisée de façon indépendante, la mesure de la variation d'indice de réfraction du liquide par le réfractomètre en fonction de la température (limitée entre 22 °C et 41 °C) montre aussi une décroissance linéaire de la permittivité diélectrique de l'acétone avec l'augmentation de la température. A noter ici que l'effet de la fréquence n'a pas été mesurée.

La question qui fait l'objet de cette annexe est donc la suivante : peut-on à partir des expériences sur les plasmons, déterminer la variation de l'indice de réfraction de l'acétone avec la température dans ces intervalles de températures et de fréquences considérées ?

Si l'on ne tient pas compte de la dépendance de l'indice de réfraction du liquide avec la fréquence, la réponse donnée par le réfractomètre dépend de la température du fluide seul. Or, la réponse fournie par la mesure plasmon dépend de la température du fluide mais aussi, à priori, de celle du métal. La réponse à la question posée nécessite donc de savoir comment varie l'indice du métal avec la température. En d'autres termes, si l'on dispose de données sur le métal (variation des permittivités diélectriques avec la température), la mesure du déplacement du pic d'absorption avec la température permet-elle d'avoir des informations sur l'indice de réfraction du liquide ?

Bien que les résultats du chapitre 5 ont montré que, dans le domaine des températures étudiés, le déplacement du pic d'absorption n'était pas sensible à la variation de la température de l'aluminium (figure 5.18), l'effet d'un métal quelconque doit être étudié.

La variation de la position du pic d'absorption doit donc d'abord être analysée d'abord sur un plan théorique. Ensuite les résultats issus de l'analyse théorique doivent être confrontés à l'expérience.

Etude théorique

D'après la relation (5.30), la position du pic d'absorption λ_0 (c'est-à-dire la longueur d'onde pour laquelle l'absorption est la plus élevée) dépend des permittivités diélectriques du métal et du diélectrique.

$$\lambda_0 \approx \lambda \left(\left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon_{rm'}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon_{rm'}} \right)^{0,5} - n_d \sin \theta_i \right) \quad (\text{A5.1})$$

La variation, en fonction de la température, de la longueur d'onde λ_0 va donc dépendre de la variation de ε_{rd} et de ε_{rm}' en fonction de T . On a donc :

$$d\lambda_0 = \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_{rm}'} \frac{\partial \varepsilon_{rm}'}{\partial T} dT + \frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_{rd}} \frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial T} dT \quad (\text{A5.2})$$

• **Détermination de $\frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial T}$ et $\frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_{rd}}$**

Dans le cas de milieu diélectrique, l'indice de réfraction est relié à la permittivité relative par la relation $n^2 = \varepsilon_r$. On a donc :

$$\frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial T} = \frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial n_d} \frac{\partial n_d}{\partial T} = 2n_d \frac{\partial n_d}{\partial T} \quad (\text{A5.3})$$

La dérivé partielle de λ_0 par rapport à la permittivité diélectrique du milieu diélectrique s'écrit :

$$\frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon_{rd}} = \frac{\Lambda}{2} \left(\frac{\varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{3/2} \varepsilon_{rd}^{-0,5} - \frac{\Lambda}{2} \varepsilon_{rd}^{-0,5} \sin \theta_i \quad (\text{A5.4})$$

• **Détermination de $\frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon'_{rm}}$ et $\frac{\partial \varepsilon'_{rm}}{\partial T}$**

La dérivé partielle de λ_0 par rapport à la permittivité diélectrique du métal s'écrit :

$$\frac{\partial \lambda_0}{\partial \varepsilon'_{rm}} = \frac{\Lambda}{2} \left(\frac{\varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{3/2} \varepsilon'_{rm}^{-0,5} \quad (\text{A5.5})$$

La permittivité diélectrique ε_{rm} relative du métal est donnée par le modèle de Drude-Lorentz-Sommerfeld, relation (5.8). La partie réelle de ε'_{rm} de ε_{rm} est :

$$\varepsilon'_{rm}(\omega, T) = 1 - \frac{\omega_p^2(T)}{\omega^2 + \gamma^2} \quad (\text{A5.6})$$

Les pulsations considérées ici sont de l'ordre de $3 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$ (lumière visible), $\gamma = 1/\tau$ est de l'ordre de 10^{14} s^{-1} , on a donc $\gamma^2 \ll \omega^2$, on peut alors écrire :

$$\varepsilon'_{rm}(\omega, T) \approx 1 - \frac{\omega_p^2(T)}{\omega^2} \quad (\text{A5.7})$$

D'autre part, la pulsation plasma est définie par : $\omega_p^2 = \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m_e}$. Dans cette expression, e , m_e et ε_0

sont des constantes fondamentales. Seul n , nombre d'électrons libres par unité de volume, dépend de la température, puisque le volume V varie avec la température (dilatation). Pour des variations de températures pas trop élevées ($< 100 \text{ K}$), la loi de variation, en fonction de la température, d'un volume V d'un métal est généralement assez bien traduite par une loi de la forme : $V(T) = V(T_0) (1 + \alpha(T - T_0))$. Dans cette expression, α est le coefficient de

dilatation volumique du métal défini à la température de référence T_0 . Ce coefficient est positif, ce qui traduit une dilatation du volume lorsque la température s'accroît. Or lorsque le volume s'accroît, corrélativement le nombre d'électrons par unité de volume diminue. On a donc :

$$\omega_p^2 = \frac{\omega_{p0}^2}{(1+\alpha(T-T_0))} \cong \omega_{p0}^2(1 - \alpha(T - T_0)) \quad (\text{A5.8})$$

L'approximation au premier ordre (du développement de Taylor) se justifie puisque généralement α est petit (pour l'aluminium : $\alpha = 3 * 23,1 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$)

La partie réelle de la permittivité diélectrique du métal (relation A5.7) s'écrit donc à la température T :

$$\varepsilon'_{rm}(\omega, T) \approx 1 - \frac{\omega_{p0}^2(1-\alpha(T-T_0))}{\omega^2} = \varepsilon'_{rm}(\omega, T_0) + \frac{\omega_{p0}^2(\alpha(T-T_0))}{\omega^2} \quad (\text{A5.9})$$

$$\frac{\varepsilon'_{rm}(\omega, T) - \varepsilon'_{rm0}(\omega, T_0)}{T - T_0} \approx \frac{\omega_{p0}^2}{\omega^2} \alpha \quad (\text{A5.10})$$

Si l'on suppose que, dans l'intervalle de températures considéré, la variation de la permittivité est sensiblement linéaire on a, autour de la température $T = T_0$ la relation :

$$\frac{\partial \varepsilon'_{rm}(\omega, T)}{\partial T} \approx (1 - \varepsilon'_{rm}(\omega, T_0)) \alpha \quad (\text{A5.11})$$

Ce modèle approché est valable seulement dans le domaine de longueur d'onde visible et du proche infrarouge.

• Détermination de coefficient thermo-optique

Par conséquent, l'équation A5.2 devient A5.12 en insérant les expressions trouvées en A5.3, A5.4, A5.5 et A5.11.

$$\frac{d\lambda_0}{dT} = \frac{\Lambda}{2} \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{(1 - \varepsilon'_{rm}) \alpha}{\varepsilon'^2_{rm}} + \left\{ \frac{\Lambda}{2} \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{2n_d}{\varepsilon_{rd}^2} - \Lambda \sin \theta_i \right\} \frac{\partial n_d}{\partial T} \quad (\text{A5.12})$$

Finalement, l'équation 5.13 représente la sensibilité de la position du pic d'absorption en fonction de la température. Pour une période spatiale Λ donnée du réseau, la sensibilité de la réponse plasmonique dépend des permittivités (métal et liquide), de l'angle d'incidence et du coefficient thermo-optique.

$$\frac{d\lambda_0}{dT} = C_1(\omega) + C_2(\omega, \theta) \frac{\partial n_d}{\partial T} \quad (\text{A5.13})$$

avec

$$C_1(\omega) = \frac{\Lambda}{2} \left(\frac{\varepsilon_d \varepsilon'_{rm}(\omega)}{\varepsilon_d + \varepsilon'_{rm}(\omega)} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{(1 - \varepsilon'_{rm}(\omega)) \alpha}{\varepsilon'^2_{rm}(\omega)}$$

$$C_2(\omega, \theta_i) = \frac{\Lambda}{2} \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}(\omega)}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}(\omega)} \right)^{\frac{3}{2}} \frac{2n_d}{\varepsilon_{rd}^2} - \Lambda \sin \theta_i$$

Dans le cas du couple aluminium/acétone les paramètres de l'équation 5.13 sont précisés dans le tableau A5.1 ci-dessous pour un angle d'incidence sur l'interface air/verre du hublot de 30° ($\theta_i = 21,73^\circ$). L'indice de réfraction de l'acétone est donné par Rheims et al. 1997 par le site Refractiveindex.info et les partie réelle et imaginaire de la permittivité de l'aluminium ont été déterminés par Hastanin 2009.

λ (nm)	$n_{\text{acétone}}$	ε'_{rm}	ε''_{rm}	C1	C2
500	1,3629	-22	6	0,0036	586,14
550	1,3605	-26,5	7,8	0,0029	565,82
600	1,35874	-31,5	10,5	0,0024	550,69
700	1,35623	-40	17,8	0,0018	534,23
800	1,3546	-42,5	24,9	0,0017	530,64

Tableau A5.1 : Données utilisées dans le calcul du coefficient thermo-optique

- **Application du modèle**

Ce modèle permet, à partir des informations fournis par les mesures plasmoniques, de déterminer la variation de l'indice de réfraction n et aussi, si l'on connaît une valeur de référence, indice de réfraction d'un fluide en fonction de la température. Le plasmon peut être utilisé comme un réfractomètre.

La figure 5.34 (Chapitre 5) présente les séries de mesures expérimentales effectuées sur le banc plasmonique. Les données sont quasi-similaires pour l'ensemble des tests. Ces données sont injectées dans l'équation A5.12 pour trouver le coefficient thermo-optique de l'acétone. La figure A5.1 présente les résultats obtenus de l'équation A5.12 à partir de figure 5.34. L'équation A5.14 présente une corrélation de coefficient thermo-optique en fonction de la température. Une droite de régression est établie à partir des tests présentés sur la figure A5.1.

$$\frac{\partial n_d}{\partial T} = 6,5 \cdot 10^{-7} T - 0,0008 \quad (\text{A5.14})$$

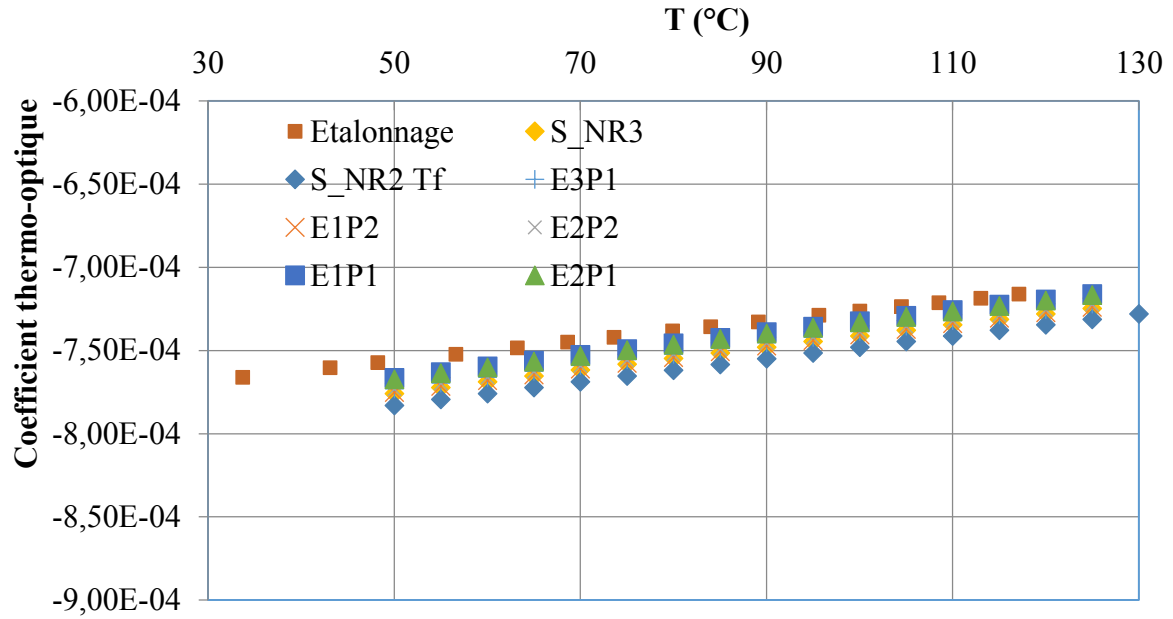


Figure A5.1 : Evolution de coefficient thermo optique de l'acétone en fonction de température.

Après avoir déterminé le coefficient thermo-optique de l'acétone, l'indice de réfraction de l'acétone peut être calculé en fonction de la température (exprimé en °C). L'intégration de l'équation A5.14 par rapport à la température donne l'équation A5.15, la constante d'intégration est calculé à partir de valeur de l'indice de réfraction à 30°C ($n = 1,3546$).

$$n_d = 3,25 \cdot 10^{-7} T^2 - 0,0008 T + 1,3783 \quad (\text{A5.15})$$

La figure A5.2 représente la variation de l'indice de réfraction de l'acétone en fonction de la température. Ceci montre que la méthode de résonance de plasmons de surface (SPR) non localisé peut être utilisée pour déterminer le coefficient thermo-optique ainsi que l'indice de réfraction de milieu sur une grande plage de températures. La comparaison entre les valeurs du modèle développé ci-dessus et les valeurs expérimentales témoigne d'un très bon accord (figure A5.3).

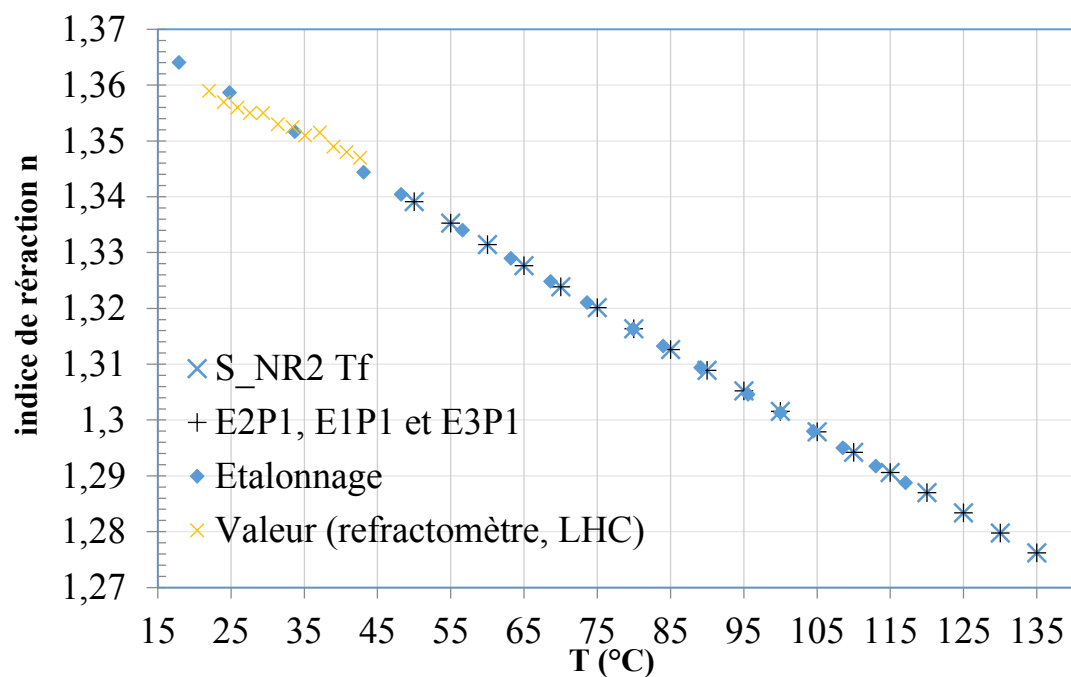


Figure A5.2 : Evolution de l'indice de réfraction en fonction de la température

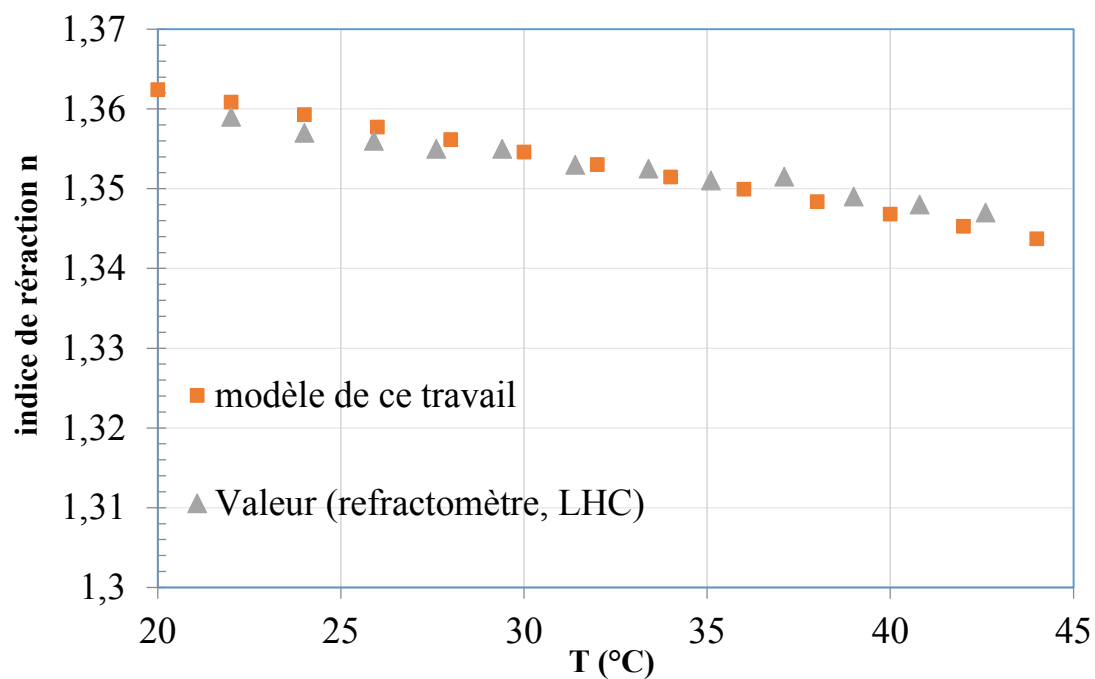


Figure A5.3 : Comparaison d'indice de réfraction de l'acétone entre le modèle de ce travail et les valeurs expérimentales

Annexe 6 : Sensibilité et résolution thermique de SPR

Dans le chapitre 5, nous avons montré l'influence de choix de l'angle d'incidence sur la valeur du pic de résonance de plasmon de surface (paragraphe 5.2.5, figure 5.8 ou relation 5.28). Dans cette partie, nous considérons une longueur d'onde particulière λ_r . Le rayonnement associé à cette longueur d'onde particulière subit, à une température T_0 , une absorption maximale sous un angle incidence θ_0 . On va rechercher la sensibilité de ce paramètre en fonction de la variation de la température autour de la valeur de référence T_0 . La question que l'on se pose est la suivante : comment doit-on modifier l'angle d'incidence pour garder avec cette longueur d'onde une absorption maximale avec la nouvelle température ?

Dans ce paragraphe nous suivons la méthodologie mentionnée dans la thèse de Hastanin (2009) pour obtenir la résolution thermique de la méthode SPR. Pour exciter le plasmon, Hastanin a utilisé un prisme. Dans notre cas sa méthode sera adaptée pour le réseau de diffraction.

Dans le cas d'une interface séparant deux milieux semi-infinis, la permittivité diélectrique est considérée comme une fonction linéaire de la température et sa partie imaginaire est supposée invariable. La relation de dispersion est indiquée dans l'équation (A6.1). En dérivant l'équation 5.28 par rapport aux permittivités de métal et diélectrique permettent de trouver (A6.2) et (A6.3). Les équations (A6.4) et (A6.5) sont déjà établit dans l'annexe 5.

$$d\theta_{rés} = \frac{\partial \theta_{rés}}{\partial \varepsilon'_{rm}} \frac{\partial \varepsilon'_{rm}}{\partial T} dT + \frac{\partial \theta_{rés}}{\partial \varepsilon_{rd}} \frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial T} dT \quad (A6.1)$$

Avec $\theta_{rés} = \theta_i$ de l'équation (A5.1) : $\lambda_r = \Lambda \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{0,5} - \Lambda \sqrt{\varepsilon_{rd}} \sin \theta_i$

$$\frac{\partial \theta_{rés}}{\partial \varepsilon'_{rm}(\omega)} = \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}(\omega)} \right)^{3/2} \varepsilon'_{rm}(\omega)^{-0.5} \quad (A6.2)$$

$$\frac{\partial \theta_{rés}}{\partial \varepsilon_{rd}} = \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon'_{rm}(\omega)}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}(\omega)} \right)^{3/2} \varepsilon_{rd}^{-0.5} \quad (A6.3)$$

$$\frac{\partial \varepsilon'_{rm}(\omega)}{\partial T} = (1 - \varepsilon'_{rm}(\omega))\alpha \quad (A6.4)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial T} = 2n_d \frac{\partial n_d}{\partial T} \quad (A6.5)$$

Donc on obtient :

$$d\theta_{rés} = \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{\frac{3}{2}} \varepsilon'_{rm}^{-0.5} (1 - \varepsilon'_{rm}) \alpha dT + \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{3/2} \varepsilon_{rd}^{-0.5} \frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\partial T} dT = \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}(\omega)}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{(1 - \varepsilon'_{rm})\alpha}{\varepsilon'_{rm}^2} + \frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd}^2 \partial T} \right) dT \quad (A6.6)$$

Dans le cas où le coefficient thermo-optique (A6.7) est élevé (milieu diélectrique mis en contact avec la couche plasmonique), l'équation (A6.6) peut être simplifiée pour donner l'équation A6.8.

$$\frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd}^2 \partial T} = 2 \frac{\partial n_d}{\partial T} \gg \frac{(1-\varepsilon'_{rm})\alpha}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \quad (\text{A6.7})$$

$$d\theta_{rés} = \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} n_e^3 \left(\frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd}^2 \partial T} \right) dT = \frac{n_e^3}{n_d^4 \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\partial n_d}{\partial T} \right) dT \quad (\text{A6.8})$$

Le dérivé de l'équation $k_{sp} = k_0 n_d \sin \theta + m \frac{2\pi}{\Lambda}$ donne l'équation (A6.9) :

$$dk = k_0 n_d \cos \theta_{rés} d\theta_{rés} \quad (\text{A6.9})$$

L'équation (A6.10) est déduite de la relation (A6.8) et (A6.9).

$$dT = \left(\frac{n_e^3}{n_d^4 \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\partial n_d}{\partial T} \right) \right)^{-1} d\theta_{rés} = \left(\frac{n_e^3}{n_d^4 \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\partial n_d}{\partial T} \right) k_0 n_d \cos \theta_{rés} \right)^{-1} dk \quad (\text{A6.10})$$

$$dT = \left(\frac{k_0 n_e^3}{n_d^3} \left(\frac{\partial n_d}{\partial T} \right) \right)^{-1} dk \quad (\text{A6.11})$$

Yeatman 1996 a donné l'équation (A6.12) durant la résonance plasmonique :

$$\lim dk = \frac{9N}{4\sqrt{3}} k_0 n_d^3 \frac{\varepsilon''_{rm}}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \quad (\text{A6.12})$$

Par conséquence, la résolution en température de SPR est donnée par l'équation (A6.13) :

$$\lim dT = \frac{9N}{4\sqrt{3}} \frac{\varepsilon''_{rm}}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \frac{n_d^6}{n_e^3} \left(\frac{\partial n_d}{\partial T} \right)^{-1} \quad (\text{A6.13})$$

N est le terme de bruit (Yeatman 1996), adimensionnel définie par la puissance de bruit au récepteur divisé par la puissance optique du faisceau incident. Pour une expérience typique avec une lumière incident de puissance 1 mW, N est de l'ordre 10^{-3} .

Dans l'autre cas où leur réponse thermique est négligeable (cas du gaz et vide), la condition (A6.7) devient (A6.14) ce qui donne par conséquence (A6.15). La résolution en température de SPR est donnée par l'équation (A6.18).

$$\frac{\partial \varepsilon_{rd}}{\varepsilon_{rd}^2 \partial T} = 2 \frac{\partial n_d}{\partial T} \ll \frac{(1-\varepsilon'_{rm})\alpha}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \quad (\text{A6.14})$$

$$d\theta_{rés} = \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{(1-\varepsilon'_{rm})\alpha}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \right) dT \quad (\text{A6.15})$$

$$dT = \left(k_0 n_d \cos \theta_{rés} \frac{1}{2n_d \cos(\theta_{rés})} \left(\frac{\varepsilon_{rd} \varepsilon'_{rm}}{\varepsilon_{rd} + \varepsilon'_{rm}} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{(1-\varepsilon'_{rm})\alpha}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \right) \right)^{-1} dk = \left(\frac{k_0}{2} n_e^3 \left(\frac{(1-\varepsilon'_{rm})\alpha}{\varepsilon'_{rm}{}^2} \right) \right)^{-1} dk$$

(A6.16)

$$\lim dT = \frac{9N}{4\sqrt{3}} k_0 n_d^3 \frac{\varepsilon_{rm}''}{\varepsilon_{rm}'^2} \left(\frac{k_0}{2} n_e^3 \left(\frac{(1-\varepsilon_{rm}')\alpha}{\varepsilon_{rm}'^2} \right) \right)^{-1} \quad (A6.17)$$

$$\lim dT = \frac{9N}{2\sqrt{3}} \frac{n_d^3}{n_e^3} \frac{\varepsilon_{rm}''}{(1-\varepsilon_{rm}')\alpha} \quad (A6.18)$$

Dans cas de l'air, en prenant comme exemple l'argent (pour longueur d'onde 633 nm) : $N = 10^{-3}$, $\varepsilon_{rm}' = -15$ et $\varepsilon_{rm}'' = 0,5$, la limite de résolution en température SPR devient l'équation (A6.19). La valeur trouvée est proche à celle calculée par [Hastanin 2009] dans le cas de couplage avec un prisme.

$$\lim dT = 1,22 \text{ K} \quad (A6.19)$$

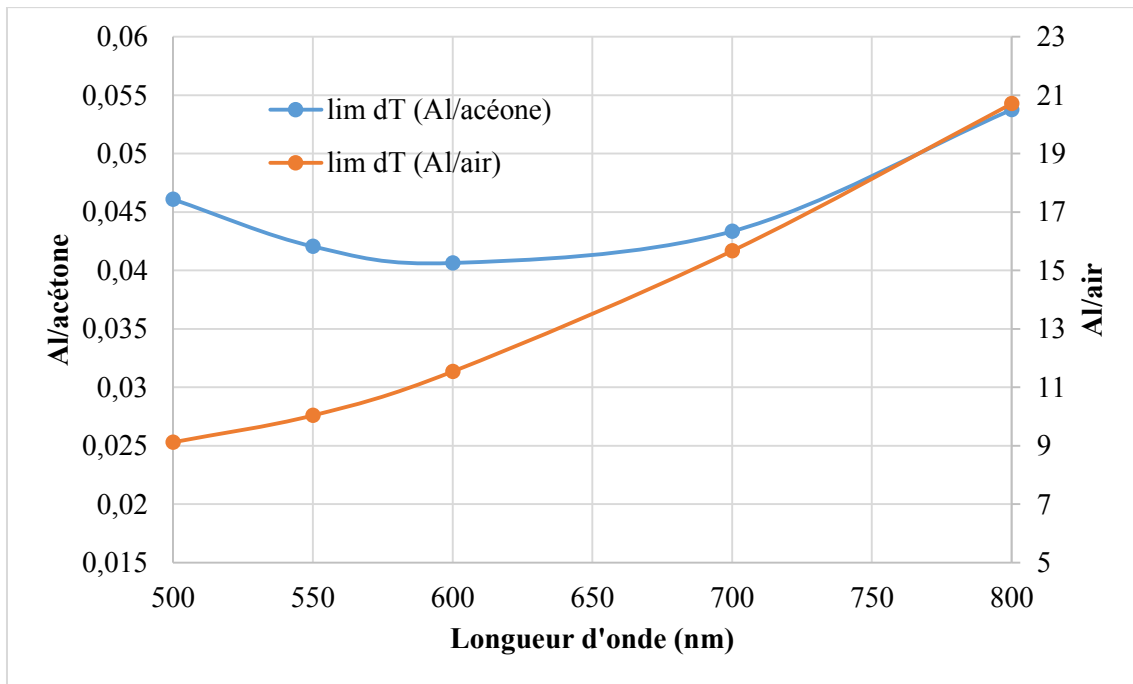


Figure A6.1 : Limite théorique de résolution en température de SPR

La résolution en température de SPR est calculée à partir de l'équation A6.12, dans le cas de présence de milieu diélectrique en contact avec la couche plasmonique (Al/acétone). La résolution en température de SPR (A6.18) est calculée dans le cas de présence d'air ou gaz. La figure A6.1 montre la limite de résolution de méthode plasmonique sur l'aluminium pour une longueur d'onde située entre 500 et 800 nm. En présence d'acétone la résolution est très fine autour de 0,045 K causé par la sensibilité de l'indice de l'acétone en fonction de température. Par contre dans le cas d'Al/air, la sensibilité est très grande entre 9 et 20 K. La figure 5.17 du chapitre 5 affirme le calcul, une invariance dans la réponse plasmonique en fonction de la température dans le cas Al/air.

Annexe 7 : Mesure de la température par plasmon de surface

Cet annexe résume comment déterminer la température locale sur une surface métallique en contact avec un fluide homogène et monophasique lorsqu'un plasmon de surface peut être excité (réseau gravé, utilisation d'un prisme, etc.)

Pour cela un réseau de courbes d'étalonnages doit être obtenu, position du pic de résonance en fonction de la température, pour différents angles d'incidences.

Pour des phénomènes permanents, il est alors possible d'obtenir une cartographie précise du champ de température en faisant un balayage de la surface. Cependant cette méthode est très sensible à l'angle d'incidence. Une mesure propre nécessite de maîtriser de façon très précise cet angle, ce qui est souvent très délicat. Une méthode plus efficace est décrite sur la figure A7.1. Elle consiste à utiliser une valeur de température connue sur la surface et de suivre la variation de la température (lorsque l'on se déplace sur la surface) à partir de la variation $d\lambda/dT$

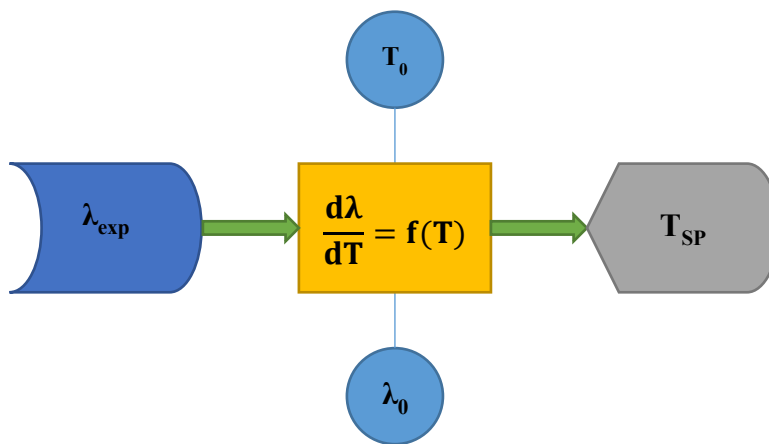


Figure A7.1 : *Mesure de température par SPR*

La procédure décrite ci-dessus est appliquée pour trouver la température T_{SP} à l'interface Al/acétone (face avant) comme montre la figure A7.2. La température T_m est celle mesurée par le thermocouple inséré sous l'échantillon (face arrière). La température T_P est celle déterminée par la loi de Fourier.

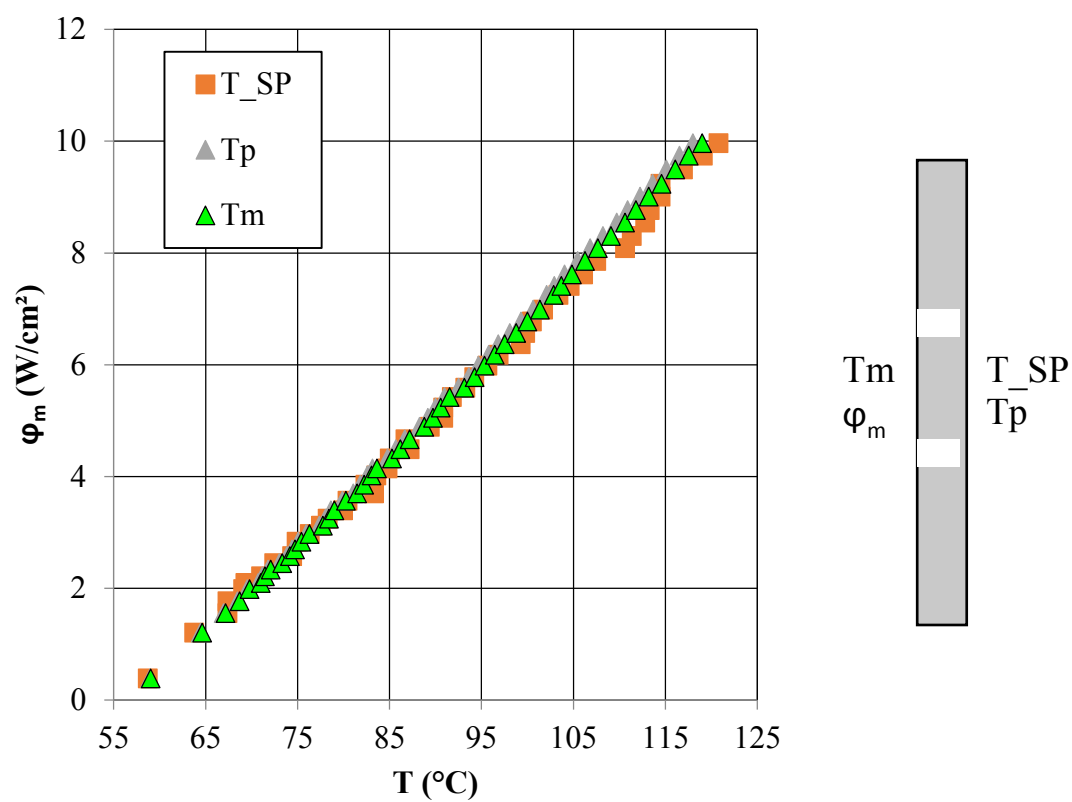


Figure A7.2 : Température de l'échantillon, T_{SP} à l'interface Al/acétone.

Annexe 8 : Etude numérique de la répartition de la température

Un modèle numérique axisymétrique a été développé sous COMSOL Mutiphysics afin d'évaluer la répartition des températures à la surface de l'échantillon et de calculer les pertes thermiques vers l'ailette. Cette simulation a été réalisée uniquement en régime de convection naturelle en partie centrale, car c'est dans ces conditions que les pertes vers l'ailette sont les plus fortes. Lorsque l'ébullition apparaît, les échanges en partie centrale sont bien plus élevés qu'en périphérie et les pertes diminuent.

Les conditions aux limites introduites sur les trois simulations présentées ci-dessous sont conformes aux conditions expérimentales (figure A8.1). Dans la zone centrale de la face inférieure, un flux thermique de 15 W cm^{-2} est imposé, la périphérie de la face inférieure est isolée. Sur la face supérieure (zone centrale et ailette), le coefficient d'échange imposé est de $500 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ (convection naturelle). La température du fluide est fixée à 50 °C . La conductivité thermique de l'aluminium est égale à $160 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$.

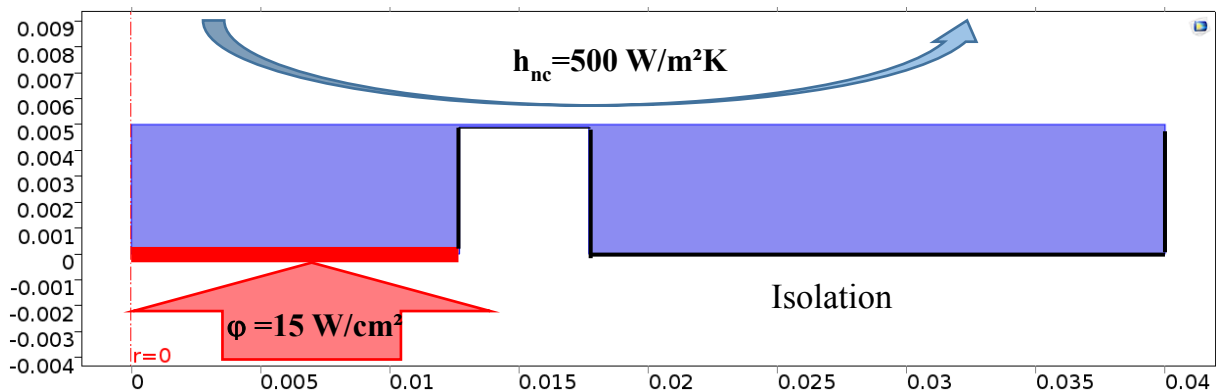


Figure A8.1 : Conditions aux limites du modèle

La figure A8.2 présente le profil de température obtenu à la surface de l'échantillon pour trois différentes épaisseurs de métal au fond de la rainure ($H_r = 100 \text{ }\mu\text{m}$, $H_r = 200 \text{ }\mu\text{m}$ et $H_r = 300 \text{ }\mu\text{m}$). Malgré ces épaisseurs très faibles et malgré le grand diamètre de l'ailette, la surchauffe sur l'ailette reste élevée. Les résultats montrent que l'épaisseur de ce film de métal est un paramètre très sensible du modèle. Les pertes thermiques sont ici importantes, cela est dû au grand diamètre de l'ailette. A l'origine le choix de ce diamètre a été le résultat d'un compromis entre, d'une part, le désir de réduire au maximum le niveau de la température à l'extrémité de l'ailette et d'autre part d'éviter d'avoir pertes trop élevées. Ces deux effets n'évoluent pas dans le même sens avec la taille de l'ailette.

La figure A8.4 montre l'influence de la largeur de la rainure ($W = 5 \text{ mm}$ et $W = 10 \text{ mm}$, figure A8.3). L'augmentation de la largeur de la rainure par un facteur 2, conduit à une diminution de la surchauffe de l'ailette de 4 °C . Cependant les pertes thermiques restent élevées et l'échantillon devient mécaniquement très fragile.

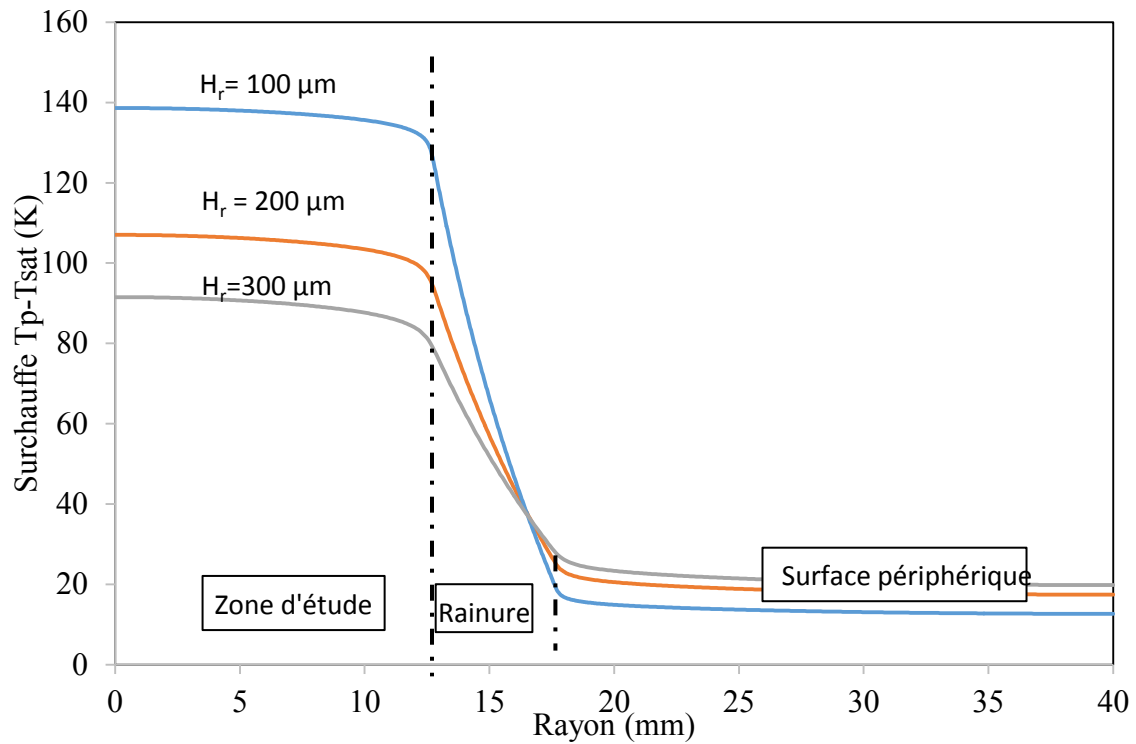


Figure A8.2 : Surchauffes obtenues en convection naturelle pour trois épaisseurs de couche métallique au fond de la rainure

($H_r = 100 \mu m$, $H_r = 200 \mu m$ et $H_r = 300 \mu m$) ; $\varphi_m = 15 W/cm^2$; $h_{nc} = 500 W/m^2K$

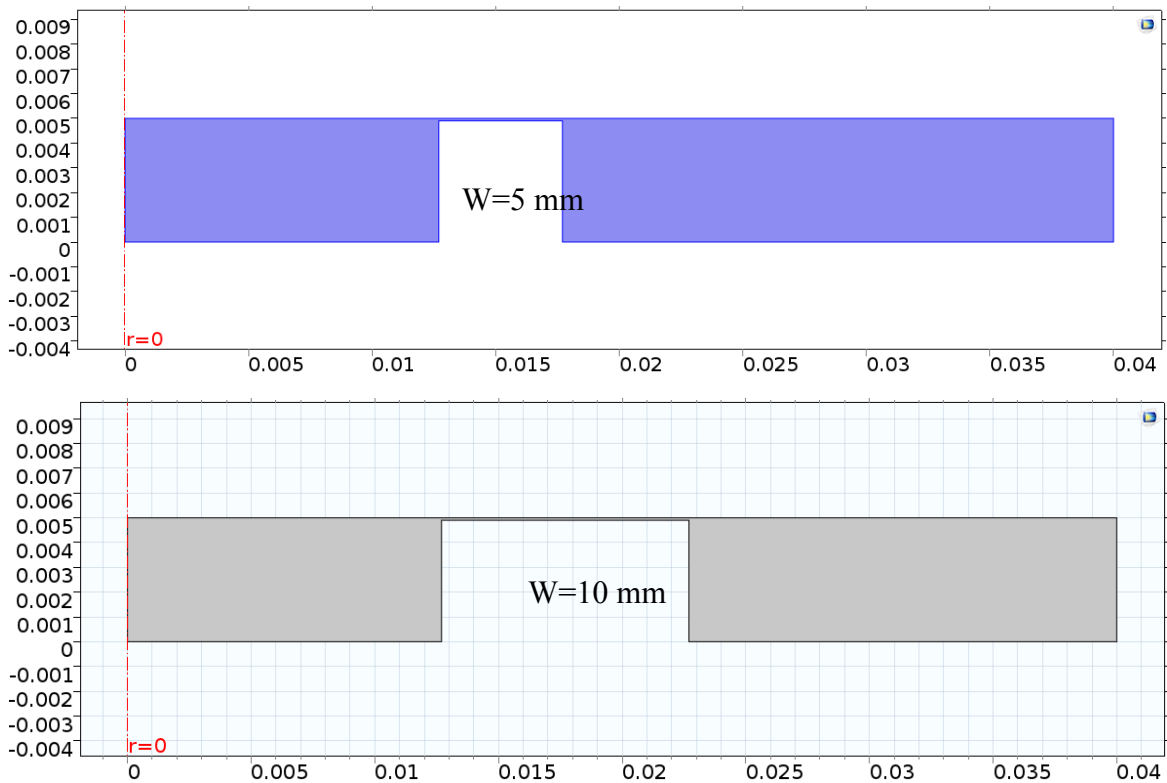


Figure A8.3 : Les deux largeurs de rainure utilisées pour les échantillons

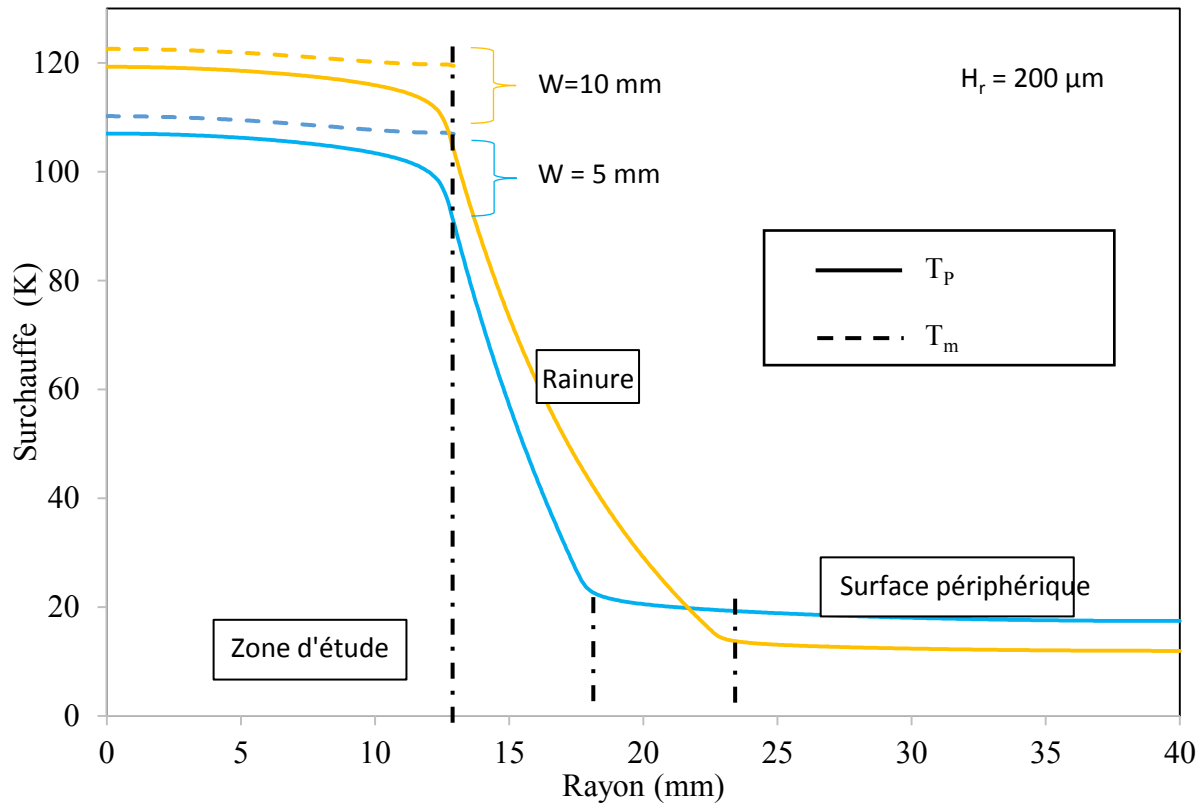


Figure A8.4 : Surchauffes obtenues en convection naturelle avec deux largeurs de rainure ($W = 5 \text{ mm}$ et 10 mm) ; $\varphi_m = 15 \text{ W/cm}^2$; $h_{nc} = 500 \text{ W/m}^2\text{K}$

Dans le cas réel, le fond de la rainure n'est pas plat. Du fait de l'usinage, le fond est relevé sur les bords. Afin de simuler un cas réel le calcul est réalisé sur une rainure dans laquelle deux coins de 1 mm de largeur ont été rajoutés (Figure A8-5). La figure A8.6 présente le résultat de la simulation avec et sans coins. Avec une rainure de 5 mm d'épaisseur, l'existence de ces deux coins diminue de 6 K la surchauffe dans la zone d'étude mais n'a quasiment aucun d'effet sur la surchauffe de l'ailette.

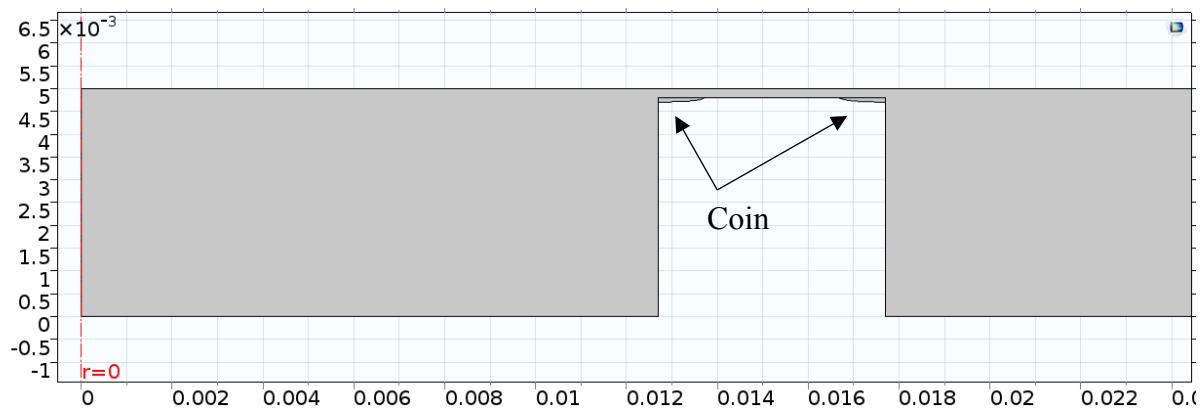


Figure A8.5 : Coin en plus vers un cas plus réel

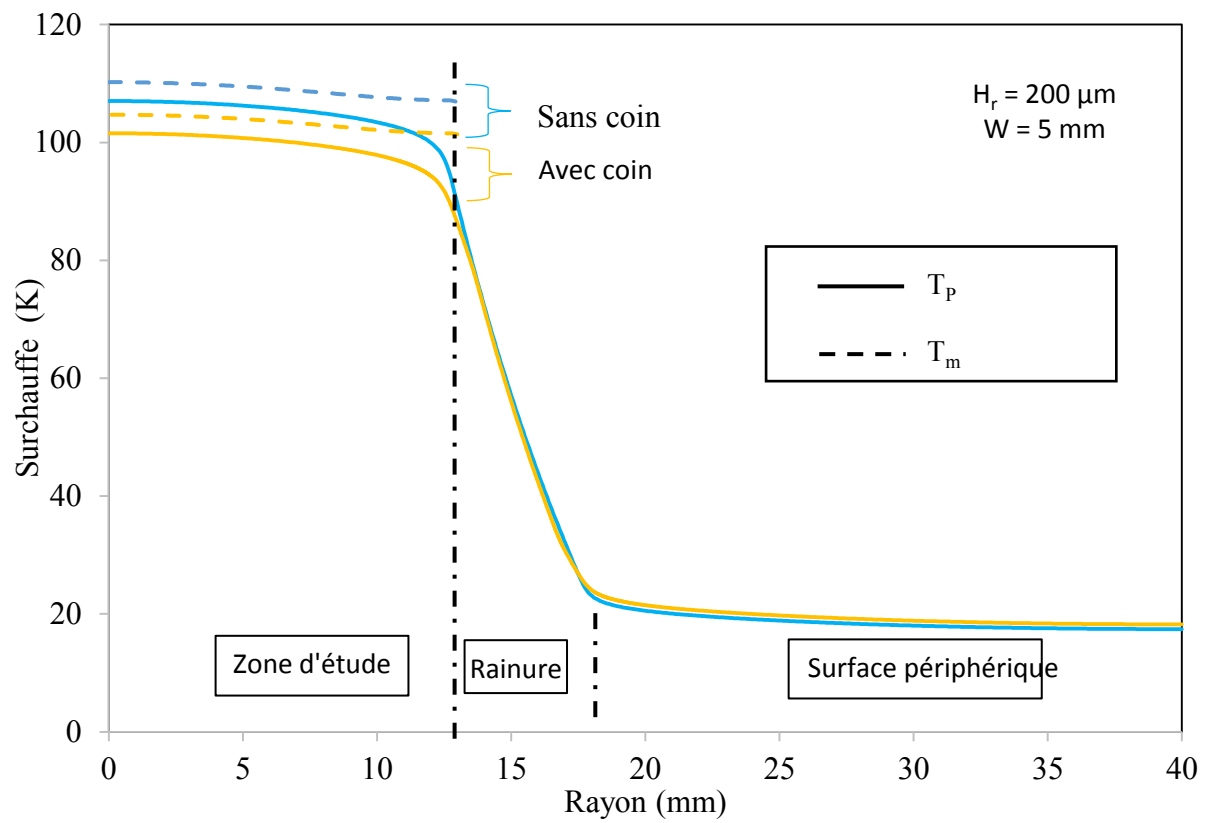


Figure A8.6 : Surchauffe en convection naturelle pour deux configurations, l'un avec coin et l'autre idéale sans coin ($W = 5 mm$); $\phi_m = 15 W/cm^2$; $h_{nc} = 500 W/m^2K$

Annexe 9 : Correction des résultats par modèle numérique

Le modèle développé pour calculer la distribution de températures au sein de l'échantillon est 2D axisymétrique. Une méthode de différence finie est utilisée dans le but d'estimer les paramètres inconnus de l'expérience et de normaliser les données. Le problème est résolu en régime stationnaire. Les conditions aux limites et les nœuds du modèle sont présentés sur la figure A9-1. L'échantillon est discrétisé en n lignes i dans la direction horizontale et m colonnes j dans la direction verticale. A chaque nœud (i, j) est associée une température T_{ij} . Les conditions aux limites sont les suivantes :

- Sur la face arrière de l'échantillon, un flux de chaleur φ_m est imposée en partie centrale de la surface tandis que le reste de la face arrière est isolée.
- Sur la face supérieure de l'échantillon des coefficients d'échange de chaleur sont initialement introduits. Un coefficient d'échange h_{nc} correspondant à de la convection naturelle est appliqué sur la partie périphérique de l'échantillon (au-delà de la rainure). Un coefficient d'échange correspondant soit à de la convection naturelle (h_{nc}) soit à de l'ébullition (h_b) est appliqué sur la partie centrale. La température du fluide loin de la paroi est égale à la température de saturation T_{sat} .

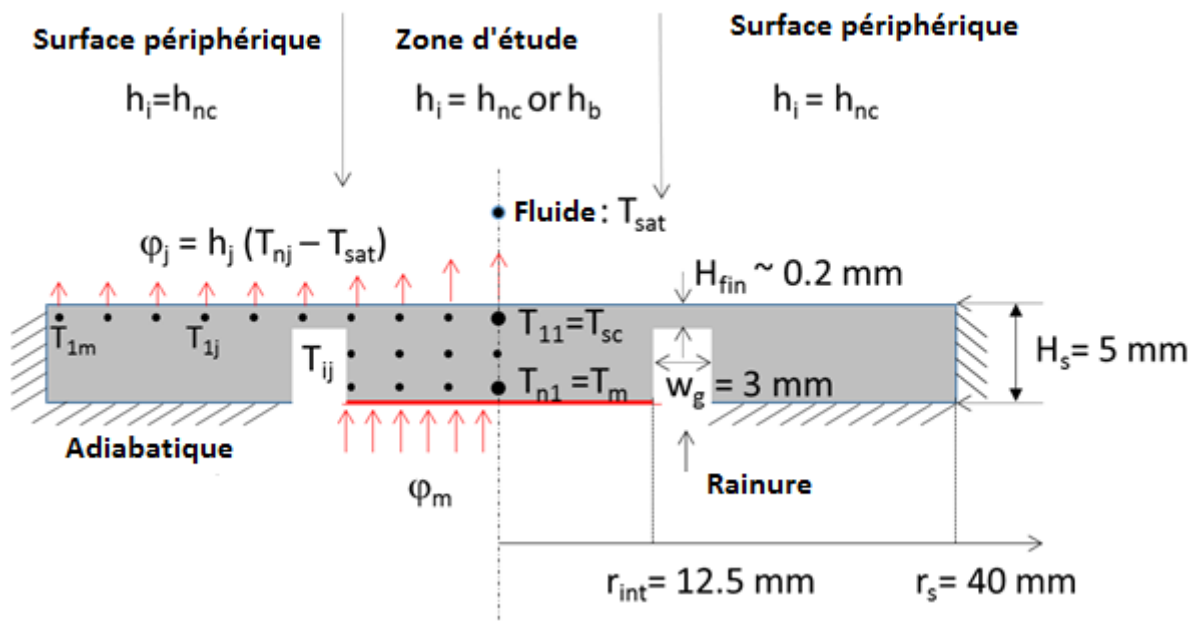


Figure A9.1 : Conditions aux limites et nœuds du modèle thermique

Estimation de l'épaisseur de rainure et le coefficient thermique de convection naturelle

Les coefficients d'échange de chaleur sur les deux zones de la face supérieure (centrale et périphérique) en contact avec le liquide, ne sont pas connus lors des essais puisque la puissance thermique fournie se répartie de façon inégale sur ces deux zones. De même, l'épaisseur H_r du métal au fond de la rainure n'est pas connue de façon précise. Cependant, le

flux de chaleur fourni et la température sont mesurés en face arrière de l'échantillon. La connaissance de ces deux conditions aux limites permet d'identifier les inconnues du problème par méthode inverse et en utilisant toutes les données enregistrées au cours des essais.

Les essais réalisés en convection naturelle permettent d'estimer l'épaisseur de la rainure. Le coefficient d'échange h_{nc} est supposé être le même pour tous les échantillons. En utilisant cette hypothèse et à l'aide de tous les résultats expérimentaux, un coefficient de transfert de chaleur moyen égal à $500 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ est estimé et l'épaisseur H_r est déterminée pour chaque échantillon. Suivant les échantillons, cette épaisseur varie entre 0,15 mm et 0,35 mm, ce qui est cohérent avec le processus d'usinage. L'épaisseur de la rainure étant alors déterminée, le même programme est utilisé cette fois pour les tests en ébullition, afin de déterminer le flux exact échangé dans la zone centrale, les pertes vers l'ailette et les coefficients d'échanges associés à l'ébullition.

Équations

Le flux thermique de la résistance électrique appliqué sur la partie centrale de l'échantillon permet d'écrire les conditions suivantes :

$$\begin{cases} \varphi_i = \varphi_0 \\ L = 5 \text{ mm si } r < r_{int} \end{cases}$$

$$\begin{cases} \varphi_i = 0 \\ L = 5 \text{ mm si } r > r_{ext} \\ L = 0,2 \text{ mm si } r_{int} < r < r_{ext} \end{cases}$$

Le flux thermique entrant est :

$$\phi_i = \varphi_i ds_i$$

$$\text{Avec } ds_i = \pi(r_{i+1}^2 - r_i^2)$$

$$r_i = \frac{dr}{2} + (i - 1)dr$$

$$dr = \frac{r_{tot}}{n}$$

$$\text{Si } |r_i - r_{int}| < dr/2$$

$$\phi_i = \varphi_i \pi \left[r_{int}^2 - \left(r_i - \frac{dr}{2} \right)^2 \right]$$

$$\text{Si } r_i - r_{int} > 0$$

$$\phi_i = 0$$

Autre r :

$$\phi_i = \varphi_i \pi \left[\left(r_i + \frac{dr}{2} \right)^2 - \left(r_i - \frac{dr}{2} \right)^2 \right]$$

Pour un cylindre creux, en faisant le bilan thermique, le flux de chaleur par conduction est donné par :

$$\varphi = \frac{2\pi\lambda L(T_i - T_{i+1})}{\ln\left(\frac{r_{i+1}}{r_i}\right)}$$

La résistance thermique de la conduction est :

$$R_{cond_i} = \frac{T_i - T_{i+1}}{\varphi}$$

Si $(r_{int} - r_i < dr)$ et $(r_i < r_{int})$:

$$R_{cond_i} = \frac{dr}{2\pi\lambda r_i \left[\frac{He(r_{int} - r_i)}{dr} + \frac{Hr(dr - r_{int} + r_i)}{dr} \right]}$$

Si $(r_{ext} - r_i < dr)$ et $(r_i < r_{ext})$:

$$R_{cond_i} = \frac{dr}{2\pi\lambda r_i \left[\frac{Hr(r_{ext} - r_i)}{dr} + \frac{He(dr - r_{ext} + r_i)}{dr} \right]}$$

Si $r_i < r_{ext}$ et $r_i > r_{int}$

$$R_{cond_i} = \frac{dr}{2\pi\lambda r_i Hr}$$

Autre r :

$$R_{cond_i} = \frac{dr}{2\pi\lambda r_i He}$$

Les formulations des flux thermiques par convection et par ébullition sont :

$$\phi_{conv_i} = h_k(T_i - T_{sat})ds_i$$

$$\phi_{ébul_i} = h_{ébul_k}(T_i - T_{sat})ds_i$$

Avec $k = 1, \dots, n$

Le bilan thermique sur une surface donnée est résulté de deux modes de transfert thermique : la conduction et la convection ou l'ébullition.

Dans le cas de convection ou d'ébullition (si $r > r_{int}$) :

$$\text{Pour } i = 1 : \phi_1 = \phi_{cond_1} + \phi_{conv_1}$$

$$\varphi_1 ds_1 = \frac{T_1 - T_2}{R_{cond_1}} + h_{T_1}(T_1 - T_{sat})ds_1$$

$$\text{Pour } i : \phi_i = \phi_{cond_i} - \phi_{cond_{i-1}} + \phi_{conv_i}$$

$$\varphi_i ds_i = \frac{T_i - T_{i+1}}{R_{cond_i}} - \frac{T_{i-1} - T_i}{R_{cond_{i-1}}} + h_{T_i}(T_i - T_{sat})ds_i$$

$$\text{Pour } i = n : \phi_n = \phi_{cond_n} + \phi_{conv_n}$$

$$\varphi_n ds_n = \frac{T_{n-1} - T_n}{R_{cond_{n-1}}} + h_{T_n}(T_n - T_{sat})ds_n$$

Dans le cas d'ébullition, pour $r < r_{int}$:

$$\text{Pour } i = 1 : \phi_1 = \phi_{cond_1} + \phi_{ébul_1}$$

$$\varphi_1 ds_1 = \frac{T_1 - T_2}{R_{cond_1}} + h_{T_1}(T_1 - T_{sat})ds_1$$

$$\text{Pour } i : \phi_i = \phi_{cond_i} - \phi_{cond_{i-1}} + \phi_{ébul_i}$$

$$\varphi_i ds_i = \frac{T_i - T_{i+1}}{R_{cond_i}} - \frac{T_{i-1} - T_i}{R_{cond_{i-1}}} + h_{\acute{e}bul_i}(T_i - T_{sat})ds_i$$

Pour $i = n$: $\phi_n = \phi_{cond_n} + \phi_{\acute{e}bul_n}$

$$\varphi_n ds_n = \frac{T_{n-1} - T_n}{R_{cond_{n-1}}} + h_{\acute{e}bul_n}(T_n - T_{sat})ds_n$$

Les équations peuvent être arrangées de la façon suivante :

$$T_1 \left[\frac{1}{R_{cond_1}} + h_{T_1} ds_1 \right] + T_2 \left[-\frac{1}{R_{cond_1}} \right] = \varphi_1 ds_1 + h_1 T_{sat} ds_1$$

$$T_{i-1} \left[-\frac{1}{R_{i-1}} \right] + T_i \left[\frac{1}{R_{cond_i}} + \frac{1}{R_{cond_{i-1}}} + h_i ds_i \right] + T_{i+1} \left[-\frac{1}{R_{cond_{i+1}}} \right] = \varphi_i ds_i + h_i T_{sat} ds_i$$

$$T_{n-1} \left[\frac{1}{R_{cond_{n-1}}} \right] + T_n \left[-\frac{1}{R_{cond_{n-1}}} - h_n ds_n \right] = \varphi_n ds_n + h_n T_{sat} ds_n$$

Les équations ci-dessus peuvent s'écrire sous forme matricielle tridiagonale que l'on peut résoudre en utilisant l'algorithme de Thomas. La résolution des équations donne la température de paroi ainsi que le flux thermique.

D'après la comparaison entre les différents tests effectués et la simulation, nous avons trouvé que le coefficient de chaleur par convection naturelle est égal à $500 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$. Le coefficient de chaleur par ébullition varie entre 500 et $7000 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$.

Annexe 10 : Topographie de surface

A10.1. Caractérisation de cavités artificielles

Des cavités artificielles ont été fabriquées par Manutech sur des surfaces Au4G nano lisses dont le RMS est de l'ordre de 60 nm. Un Laser femto seconde a été utilisé pour percer les trous dans les échantillons. Nous présentons ci-dessous les géométries des cavités fabriquées

A10.1.1. Caractérisation des cavités artificielles de l'échantillon SC_1

La figure A10.1 donne la localisation des 18 cavités de l'échantillon SC_1 . Une analyse de la géométrie des cavités est réalisée avec le microscope confocal. Le mode de balayage pas à pas asservi en z est utilisé pour obtenir la forme complète de la cavité. Nous présentons ci-dessous quelques cavités artificielles.

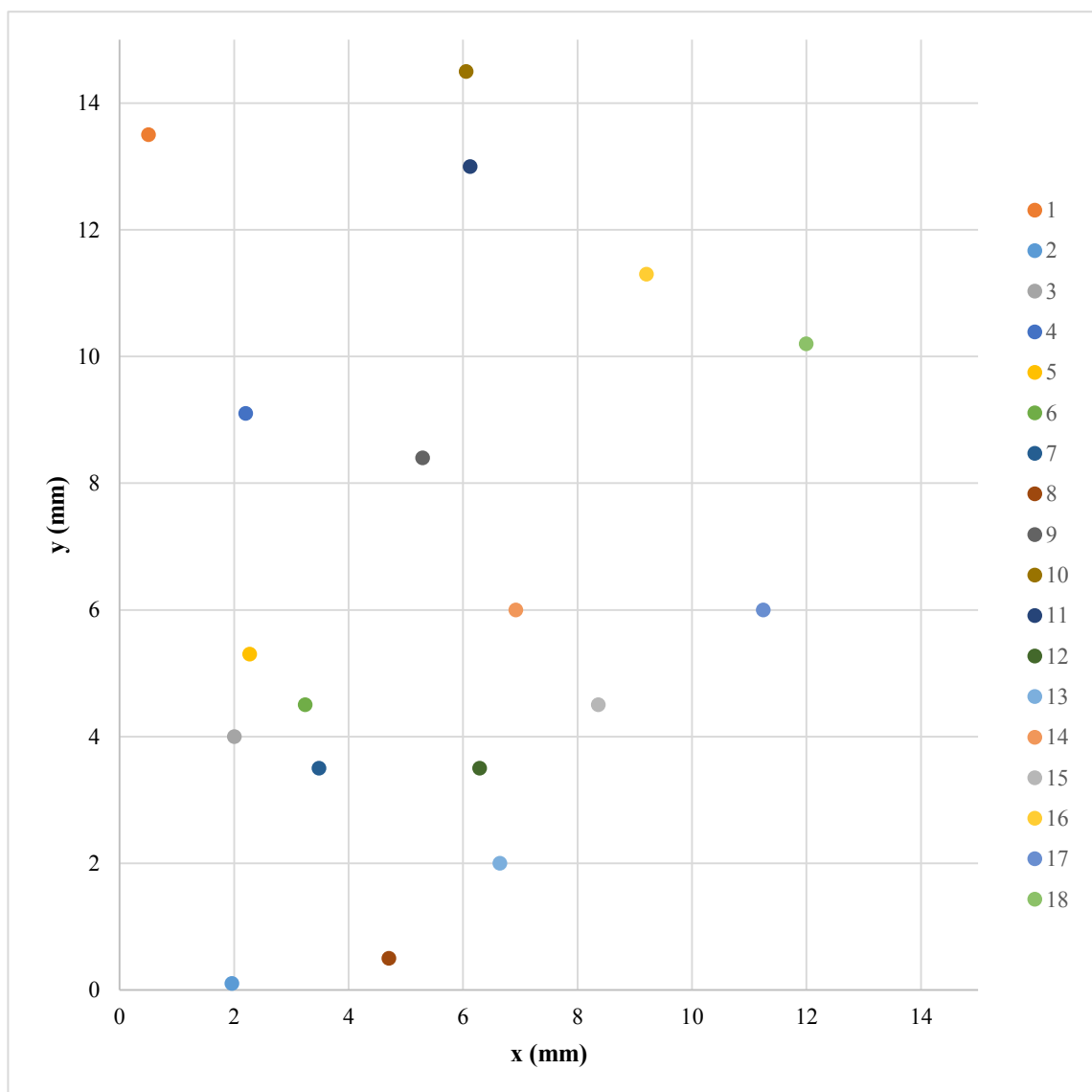


Figure A10.1 : Cartographie de la position des trous pour l'échantillon SC_1

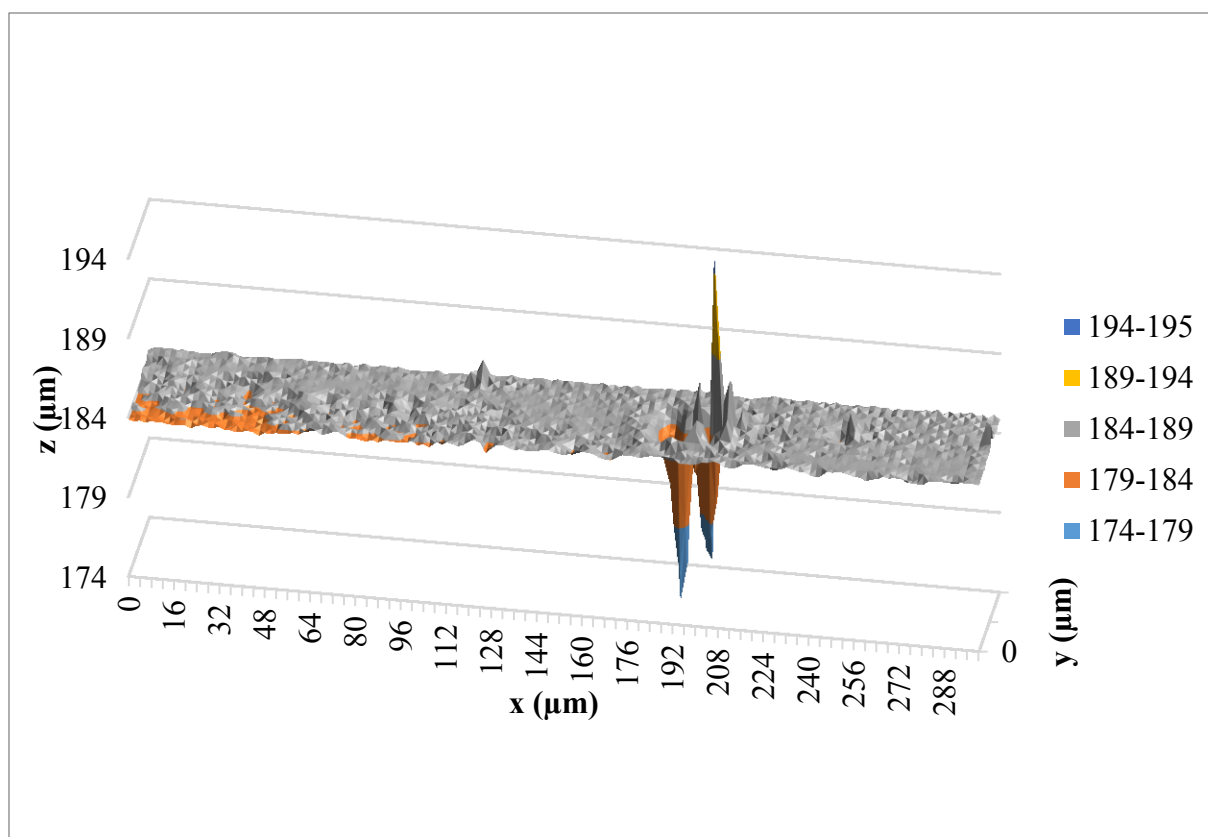


Figure A10.2 : Cavité N° 1

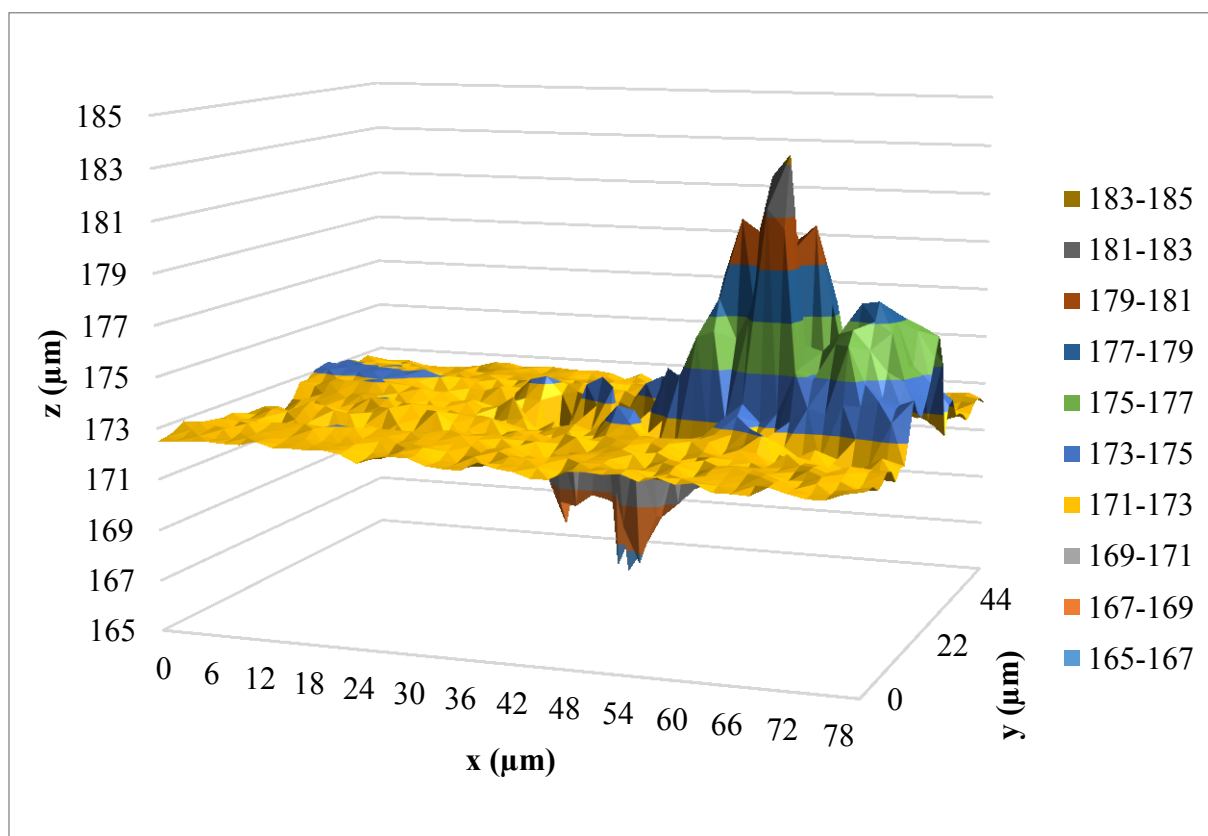


Figure A10.3 : Cavité N°3

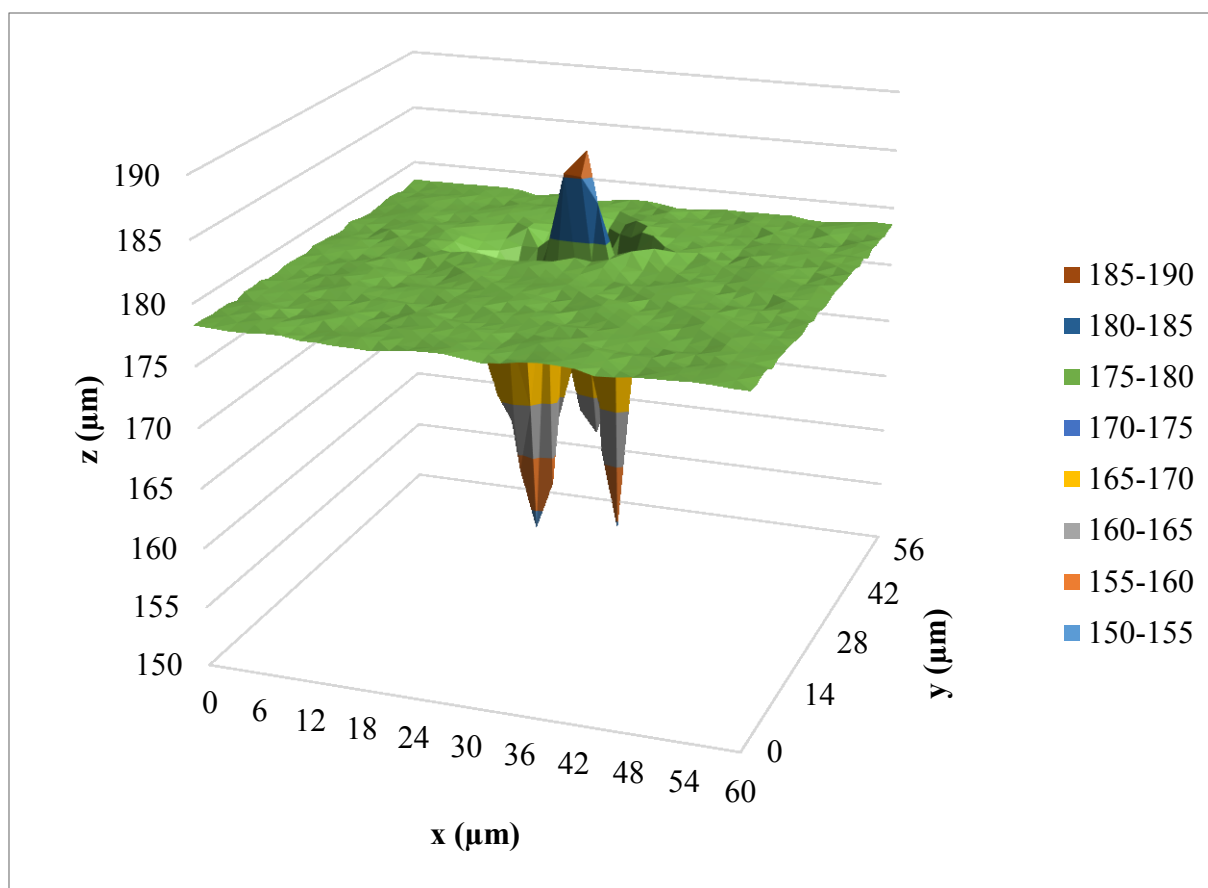


Figure A10.4 : Cavité N°4

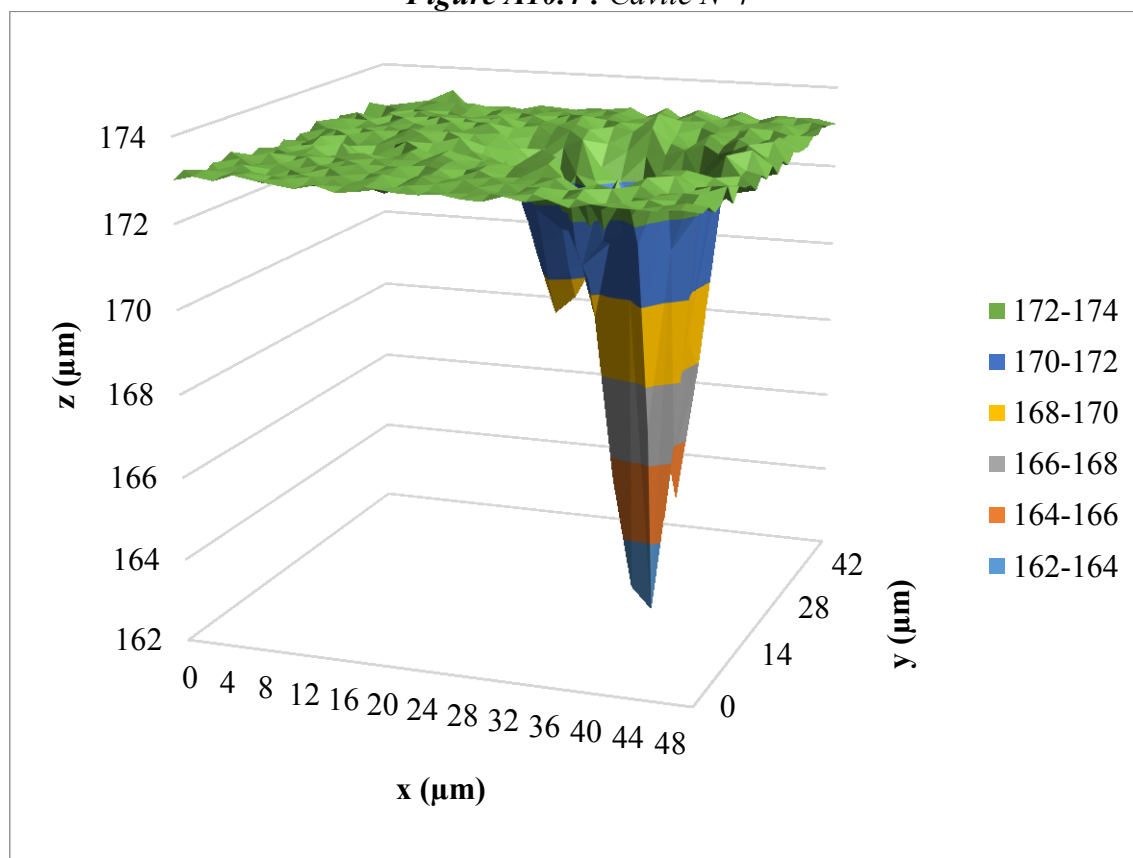


Figure A10.5 : Cavité N°7

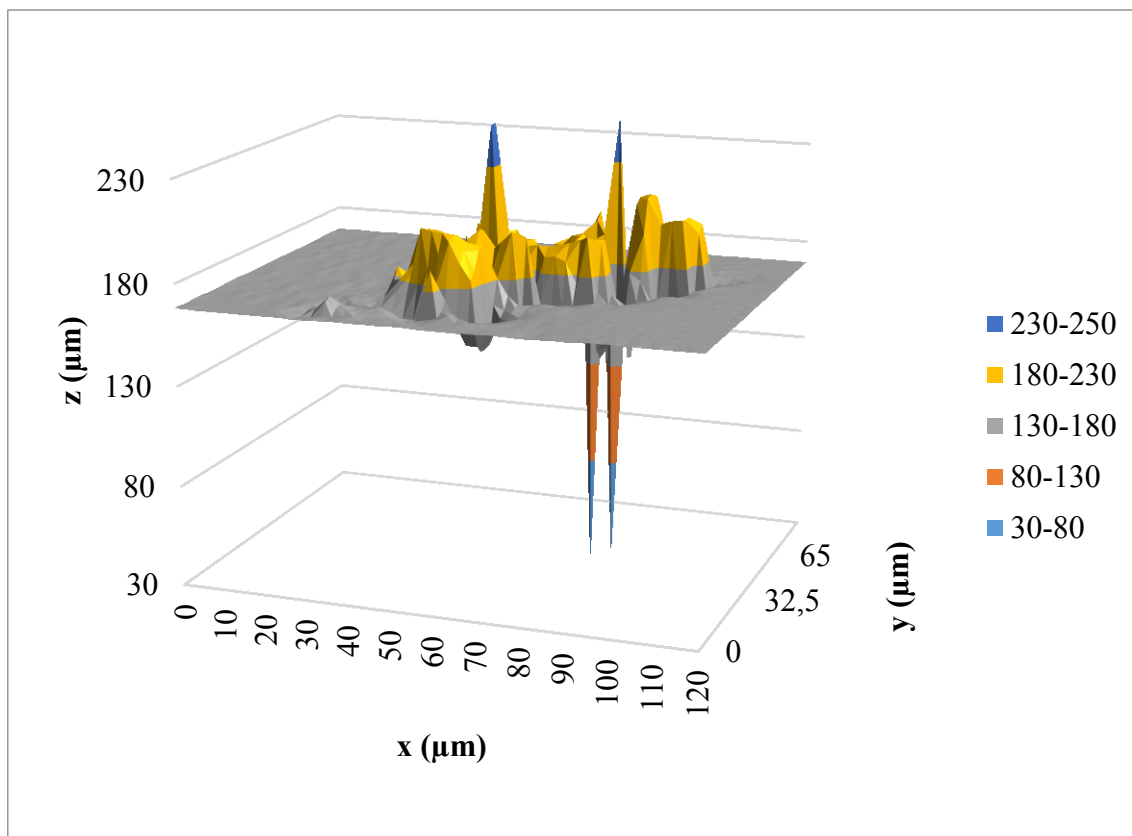


Figure A10.6 : Cavité N°8

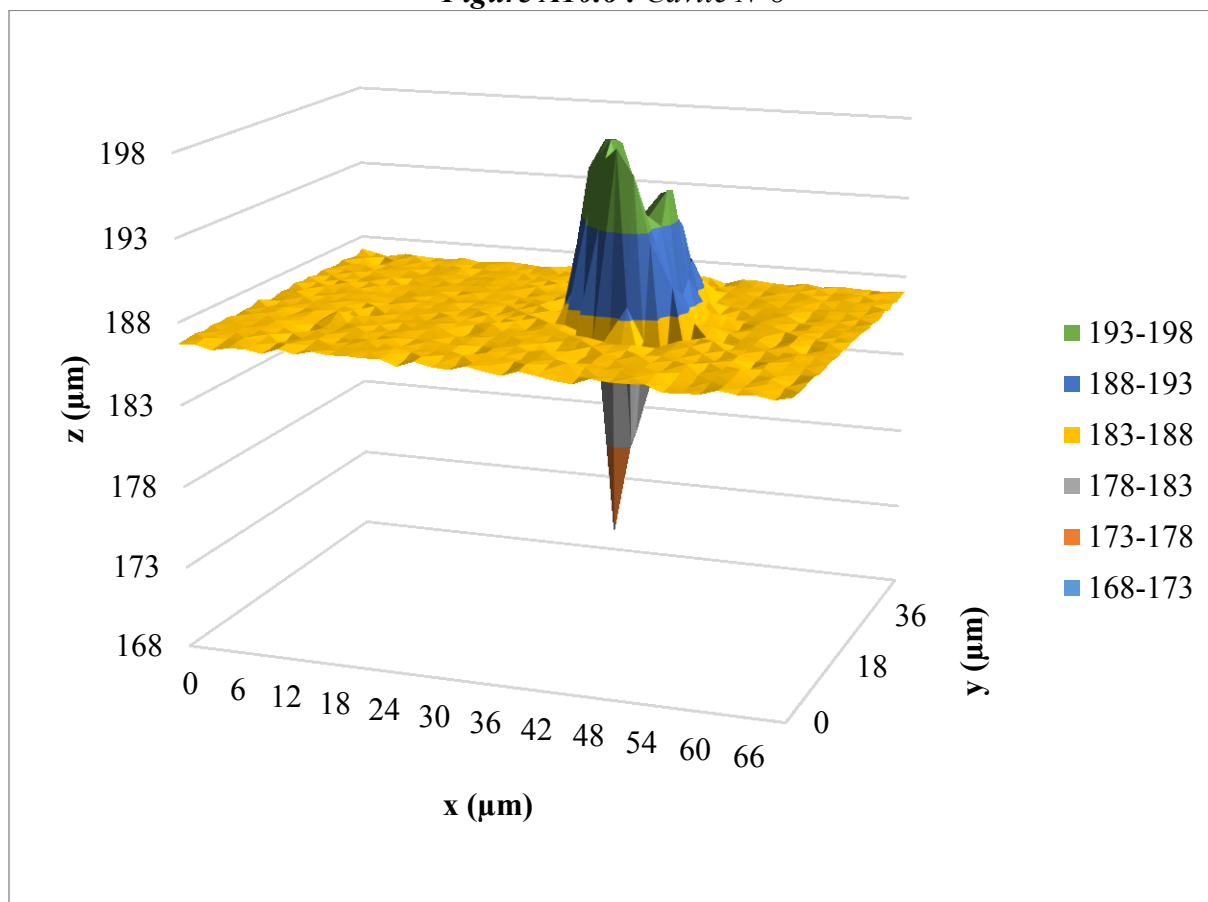


Figure A10.7 : Cavité N°10

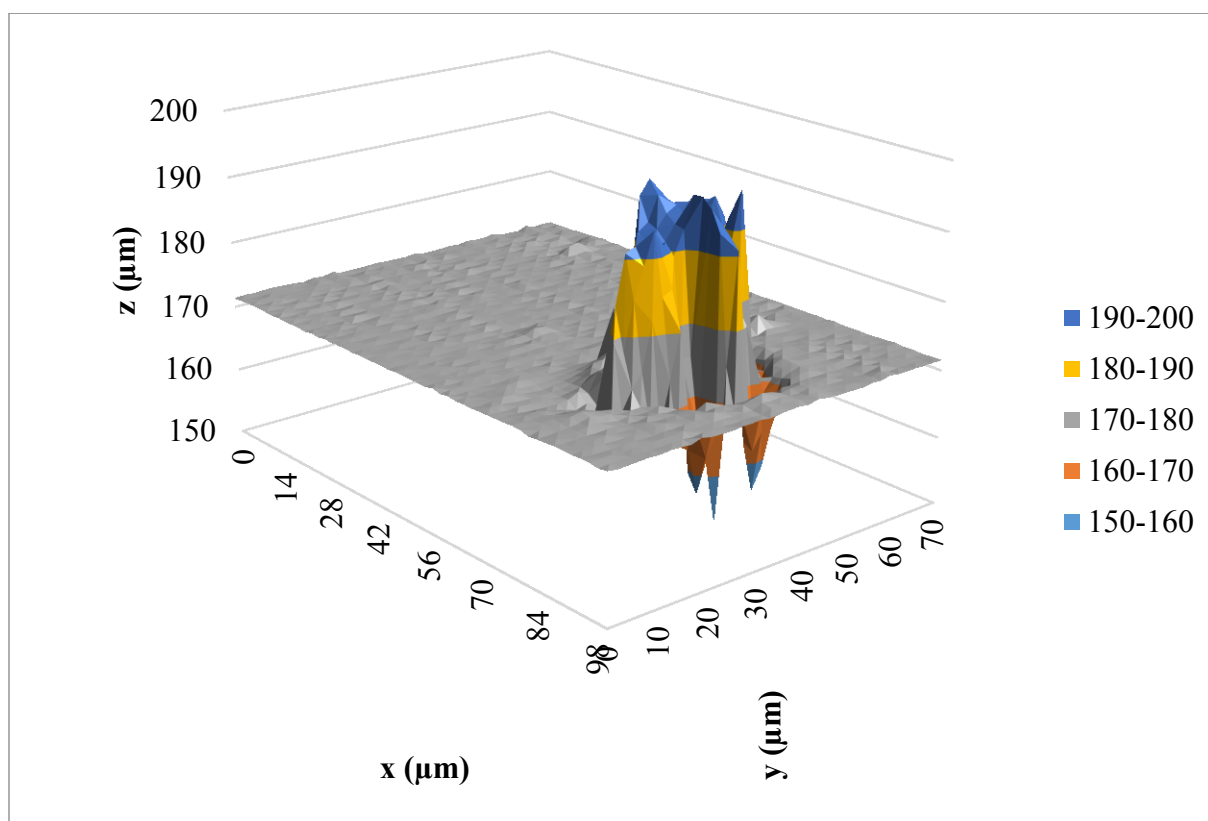


Figure A10.8 : Cavité N°12

A10.1.2. Caractérisation de cavités artificielles de l'échantillon S_{C2}

La cartographie de l'échantillon S_{C2} réalisée à l'aide du microscope confocal révèle la présence de 58 cavités. Une analyse des cavités est menée avec le microscope confocal, après localisation les coordonnées (x,y) de chaque cavité. Le mode de balayage pas à pas asservi en z est utilisé pour obtenir la forme complète de la cavité. Quelques cavités sont présentées sur les figures ci-dessous.

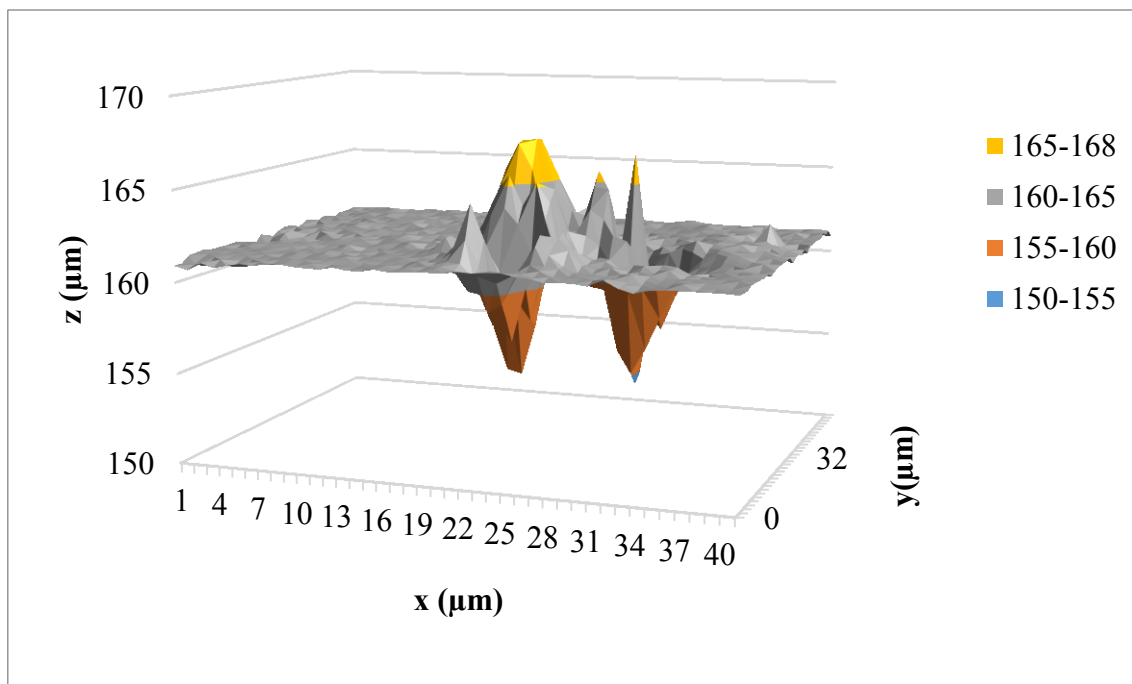


Figure A10.9 : Cavité N°1

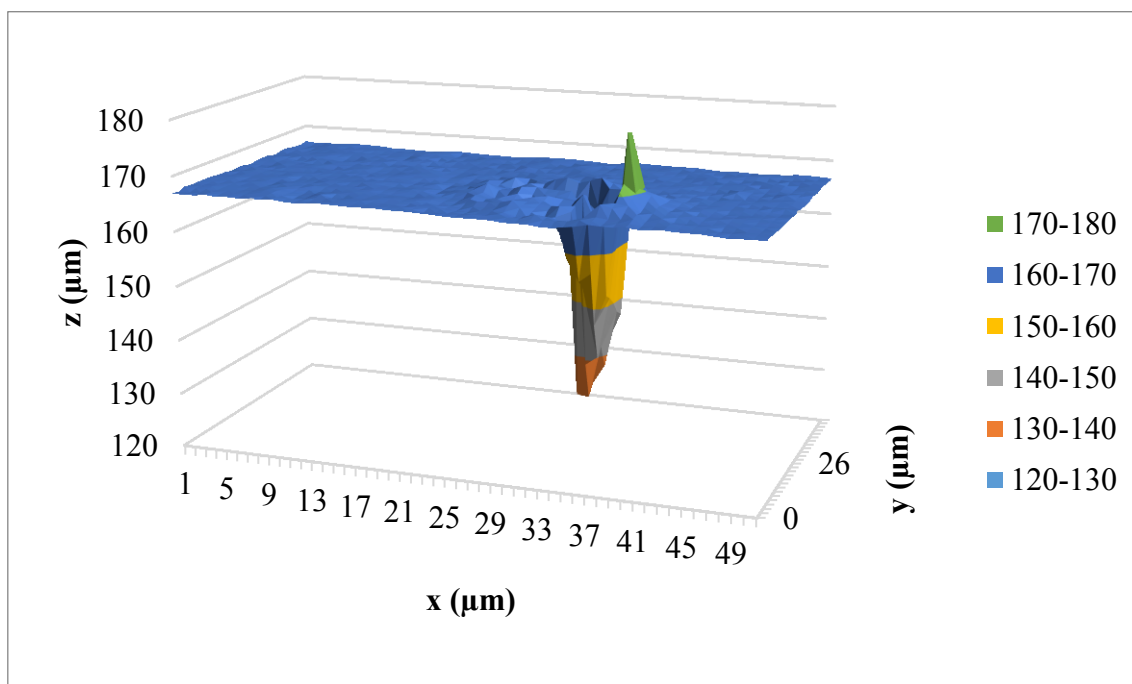


Figure A10.10 : Cavité N°2

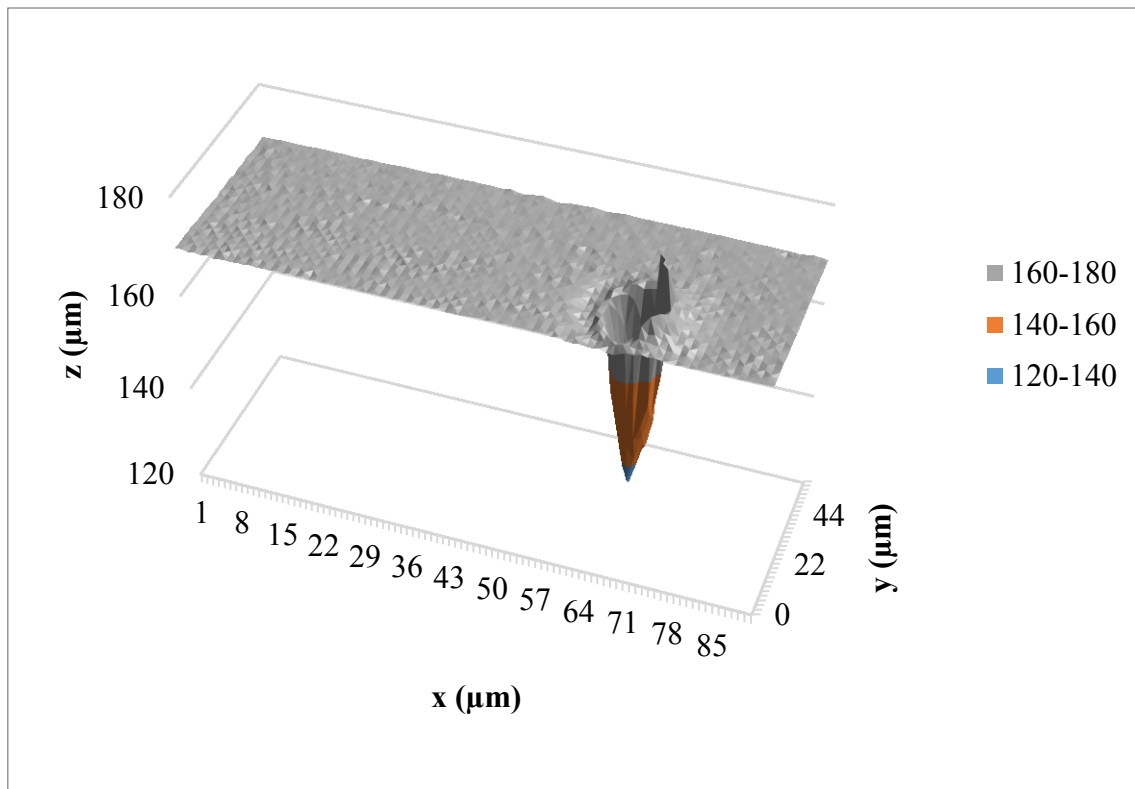


Figure A10.11 : Cavité N°3

A10.2. Caractérisation du réseau métallique par AFM

Les échantillons, dont les réseaux sont fabriqués, ont une surface ultra lisse avec un RMS (filtré) inférieur à 60 nm. Après sa fabrication, le nano-réseau est caractérisé à l'aide d'un microscope à force atomique (le microscope confocal ne permet pas une telle mesure car la limite de résolution verticale de ce microscope est de l'ordre de la profondeur du réseau). Comme le montre la figure A10.11 et A10.13, les réseaux sont homogènes, périodiques, et très réguliers.

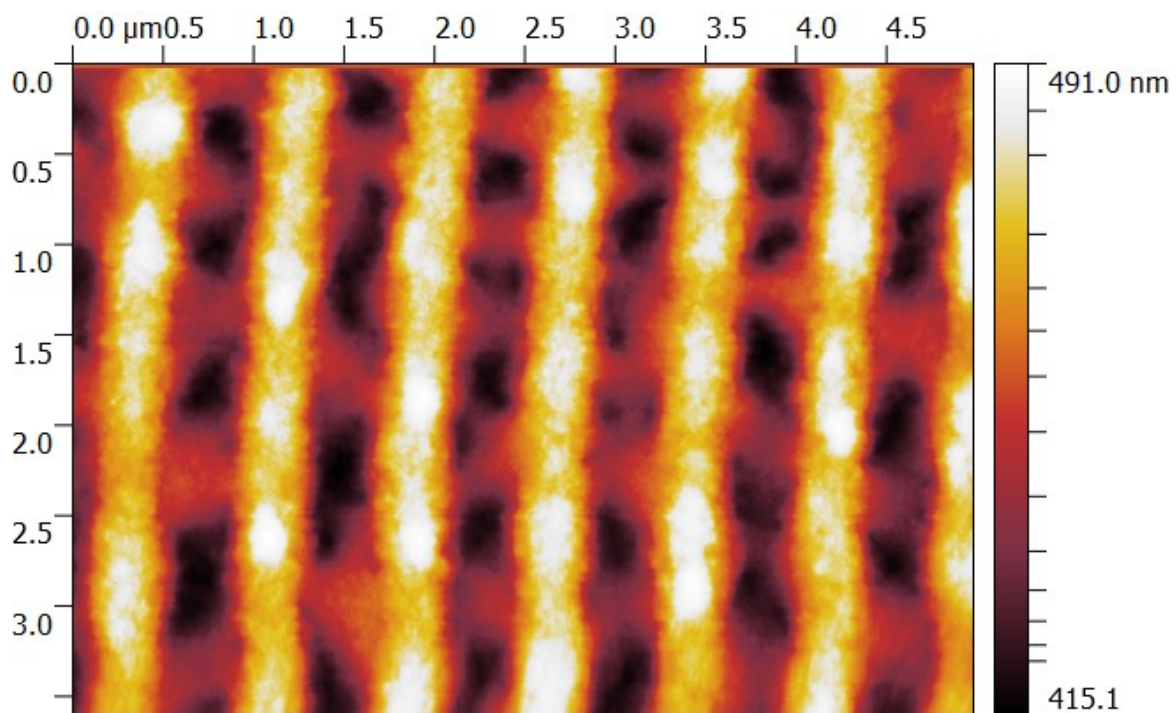


Figure A10.12 : Caractérisation de réseau par AFM pour la surface S_{NR2}

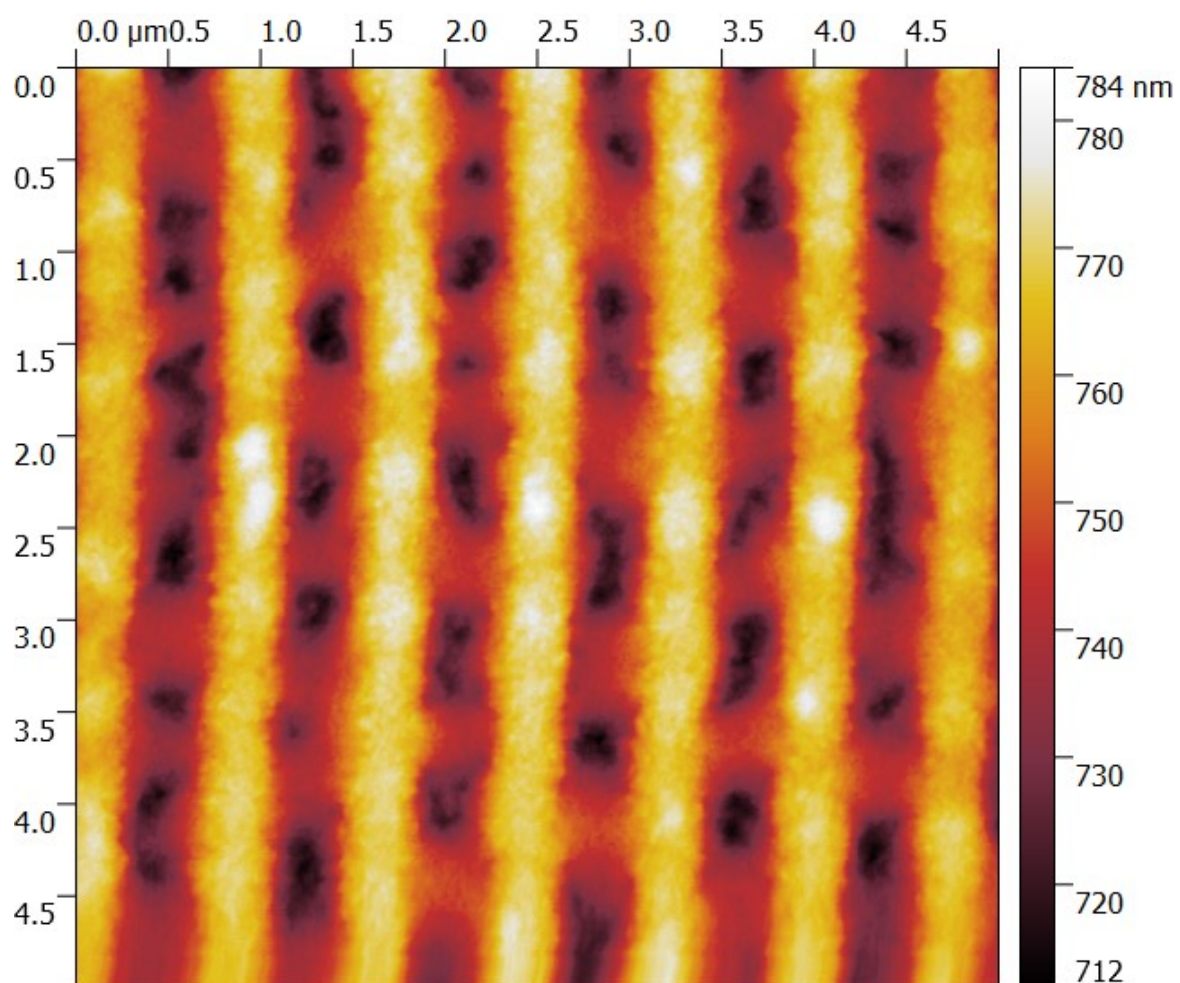
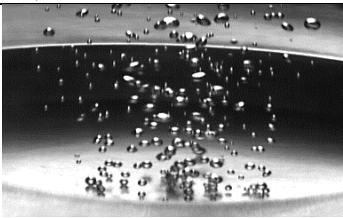
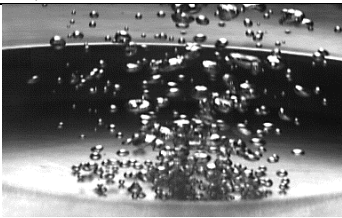
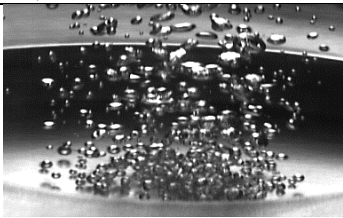
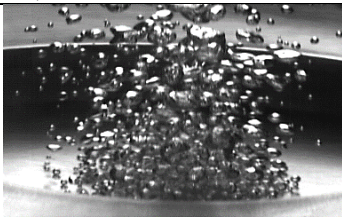
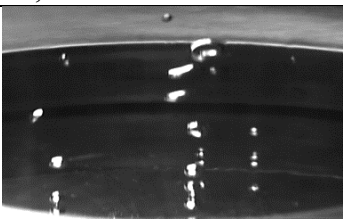
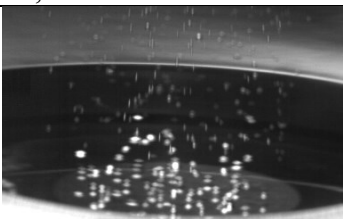
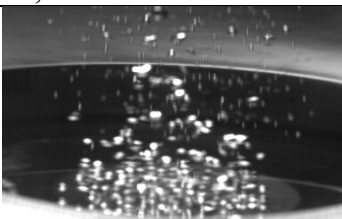
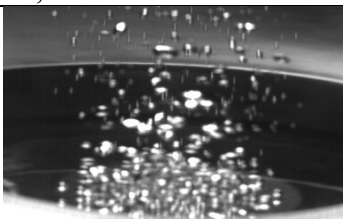
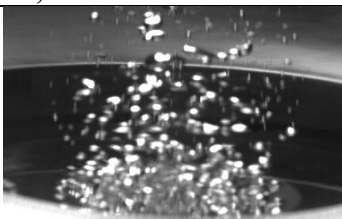
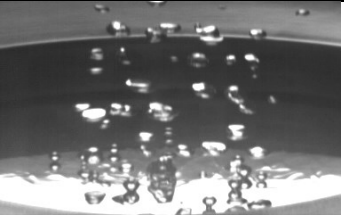
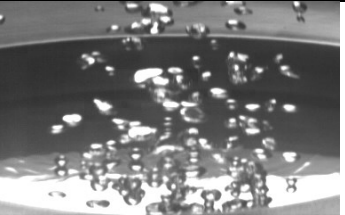
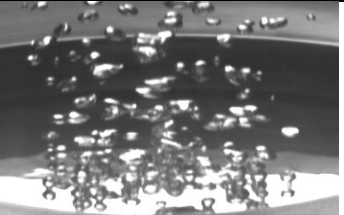
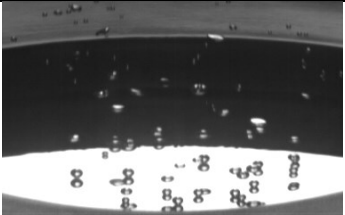
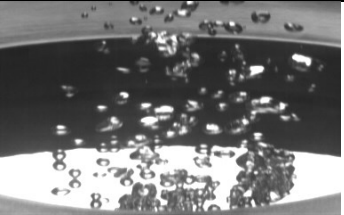
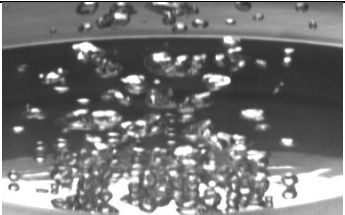
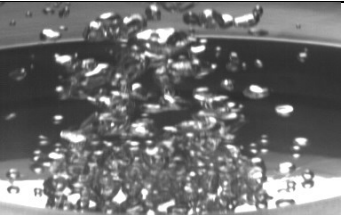
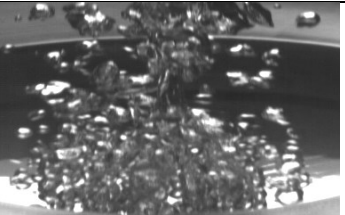
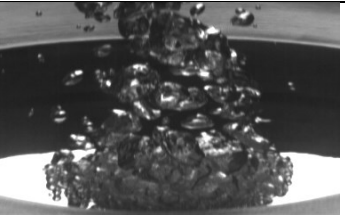
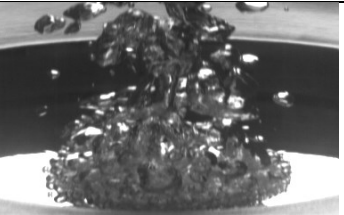


Figure A10.13 : caractérisation de réseau par AFM pour la surface S_{NR}

Annexe 11 : L'aspect de l'ébullition

Cet annexe compare à flux thermique imposé l'aspect de l'ébullition pour différents types d'échantillons, la température marquée sous la figure est celle mesurée T_m .

ϕ_m	2 W/cm ²	3 W/cm ²	3,6 W/cm ²	5 W/cm ²
Surface nano lisse S_{N2+}	 68,25°C	 71,47°C	 73,2°C	 76,7°C
Surface rugueuse S_{R1}	 72,81°C	 77,32°C	 78,9°C	 82,9°C
Surface lisse avec défauts S_{Ld1+}	 71,1°C	 75,27°C	 76,37°C	 77,5°C
Surface Avec nano réseau S_{NR1}	 69,5°C	 71,9°C	 72,76°C	 74°C

φ_m	2 W/cm ²	3 W/cm ²	3,6 W/cm ²	4,3 W/cm ²
Surface lisse avec cavités S _{C1}	 71°C	 76,02°C	 77,8°C	 76,7°C
Surface lisse avec cavités S _{C2}	 70,6°C	 73,06°C	 73,8°C	 74,36°C
φ_m	5 W/cm ²	6,6 W/cm ²	8,3 W/cm ²	10,3 W/cm ²
Surface lisse avec cavités S _{C1}	 80,2°C	 82,2°C	 83,55°C	 85,7°C
Surface lisse avec cavités S _{C2}	 74,7°C	 76°C	 77,55°C	 78,77°C



FOLIO ADMINISTRATIF

THESE DE L'UNIVERSITE DE LYON OPEREE AU SEIN DE L'INSA LYON

NOM : AL MASRI

DATE de SOUTENANCE : 07/07/2017

Prénoms : Mostafa

TITRE : Ebullition nucléée sur des surfaces ultra-polies : influence de la topographie et du revêtement sur le phénomène de nucléation

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : 2017LYSEI057

Ecole doctorale : MEGA de Lyon (Mécanique, Energétique, Génie Civil, Acoustique)

Spécialité : Thermique et énergétique

RESUME :

Une étude expérimentale est menée afin de comprendre le phénomène de nucléation lors de l'ébullition. Cette étude est menée sur des surfaces polies miroir ou ultra-polies en aluminium, l'acétone étant le fluide de travail. L'analyse est réalisée en fonction de la topographie de la surface liée au degré de polissage et en fonction du revêtement de la surface dans le but de modifier sa mouillabilité. L'étude a mis en avant trois catégories de comportement, fonctions de l'état de surface : les surfaces nano lisses, les surfaces nano lisses avec défauts et les surfaces rugueuses. Les bonnes caractéristiques obtenues avec des échantillons nano lisses comportant des défauts aléatoirement répartis ont conduit à la réalisation d'échantillons nano lisses avec des défauts de position et de taille contrôlés. Les résultats obtenus avec ces derniers échantillons présentent les meilleures performances. Une amélioration supérieure à un facteur deux par rapport aux surfaces rugueuses est observée, ce qui représente un gain substantiel.

Bien qu'il soit le fondement de la plupart des modèles théoriques, le nucléus à l'origine de la formation d'une bulle n'a jamais été observé expérimentalement car sa taille dépasse la capacité des moyens de mesure traditionnels. Dans ce mémoire, une méthode optique - basée sur la résonance de plasmons sur des surfaces comportant un réseau de diffraction - est utilisée dans le but d'étudier ce phénomène. Les expériences mettent en évidence la capacité de cette méthode à mesurer la variation de la température pariétale de l'échantillon avant le déclenchement de l'ébullition. Les mesures de résonance plasmon montrent qu'il n'y a pas de modification de la densité du fluide au voisinage de la paroi pour des surchauffes proches du déclenchement de l'ébullition. La nucléation est trop rapide pour être mesurée. Cependant, des premiers nuclei de condensation ont été détectés par cette méthode, ce qui constitue un résultat très prometteur.

MOTS-CLÉS : Bancs expérimentaux, nucléation homogène et hétérogène, déclenchement de l'ébullition nucléée, surface ultra polie, surface nanostructurée, cavité artificielle, ébullition nucléée en vase, transfert thermique par ébullition, mouillabilité, polissage, microscopie confocale, plasmon de surface, indice de réfraction, coefficient thermo-optique, condensation, évaporation, convection naturelle

Laboratoire de recherche : CETHIL (Centre d'Energétique et de Thermique de Lyon)

Directeur de thèse: LEFEVRE Frédéric

Président de jury : JOURLIN Yves

Composition du jury :

JOURLIN Yves	Professeur des Universités	Université de Saint-Etienne	Président
CANEY Nadia	Maître de Conférences HDR	Université Grenoble Alpes	Rapporteuse
MISCEVIC Marc	Maître de Conférences HDR	Université Paul Sabatier	Rapporteur
TADRIST Lounès	Professeur des Universités	Université d'Aix-Marseille	Examinateur
CIOULACHTJIAN Serge	Maître de Conférences	INSA-Lyon	Examinateur
LEFEVRE Frédéric	Professeur des Universités	INSA-Lyon	Directeur de thèse