



HAL
open science

Application de la Fluorescence Induite par Laser pour la caractérisation de gouttes surfondues – mesure de la température et de la fraction de glace

Alexandre Labergue, Mehdi Stiti, Fabrice Lemoine

► To cite this version:

Alexandre Labergue, Mehdi Stiti, Fabrice Lemoine. Application de la Fluorescence Induite par Laser pour la caractérisation de gouttes surfondues – mesure de la température et de la fraction de glace. 16ème Congrès Francophone de Techniques Laser pour la mécanique des fluides, CNRS, Centrale-Supélec, Université Paris Saclay, IRSN, Sep 2018, Dourdan, France. hal-02097814

HAL Id: hal-02097814

<https://hal.science/hal-02097814v1>

Submitted on 12 Apr 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.

Application de la Fluorescence Induite par Laser pour la caractérisation de gouttes surfondues – mesure de la température et de la fraction de glace

Alexandre LABERGUE, Mehdi STITI, Fabrice LEMOINE

LEMETA, UMR 7563, CNRS, Université de Lorraine, 54518 Vandoeuvre lès Nancy, France

Email auteur correspondant : alexandre.labergue@univ-lorraine.fr

Cette étude présente une nouvelle application de la technique de Fluorescence Induite par Laser (LIF) pour la mesure simultanée de la température et de la fraction de glace de gouttes surfondues. Le principe de la technique consiste à diluer un traceur thermodépendant dans le liquide à caractériser et de collecter le signal de fluorescence induit par une source laser. Pour s'affranchir de certains paramètres difficilement accessibles, une méthode ratiométrique est utilisée. Elle consiste à calculer le rapport des intensités fluorescentes mesurées simultanément sur deux bandes spectrales différentes. Une solution utilisant deux traceurs fluorescents (Rhodamine 560 et sulforhodamineB) a d'abord été sélectionnée conduisant à une sensibilité en température de 2.56%/°C. Un second rapport de fluorescence est ensuite introduit afin de caractériser l'état de la goutte (liquide, solide ou mixte), puis, avec la technique d'Imagerie par Résonance nucléaire (IRM), la nouvelle chaîne LIF ainsi réalisée permet également d'estimer la fraction de glace.

1 Introduction

Le givrage des aéronefs consiste en l'apparition de dépôt de glace sur les parois de l'aéronef quand ce dernier rencontre des gouttes surfondues, et se traduit par des dysfonctionnements plus ou moins graves [1]. Généralement, les avionneurs utilisent des souffleries givrantes pour tester et valider leurs systèmes de protection et de prévention contre le givrage. Les derniers incidents mettant en cause le givrage ont conduits à revoir les souffleries afin qu'elles puissent générer des gouttes surfondues de plus grandes tailles, ie supérieur à 50 μm . Néanmoins, même si ces nouvelles souffleries sont désormais opérationnelles, il n'est pas certain que les conditions givrantes ainsi reproduites soient représentatives des conditions aéronautiques réelles. Notamment, l'équilibre thermique des gouttes avec l'air ambiant n'est pas forcément assuré. Il est donc nécessaire de contrôler l'écoulement de ces souffleries et notamment l'état des gouttes surfondues. A ce jour, la technique de l'ILIDS permet de détecter la présence de cristaux de glace de gouttes surfondues et d'en donner une taille moyenne [1]. De même, le suivi du changement de phase liquide/solide a été observé par spectroscopie Raman [3, 4]. L'Imagerie par Résonance nucléaire (IRM) est actuellement la seule méthode qui permet d'estimer directement la fraction de glace [5, 6]. Par contre, il s'avère qu'aucune mesure de température de gouttes surfondues n'a encore été réalisée. Ainsi, la présente étude propose d'étendre la technique de Fluorescence Induite par Laser, plus généralement utilisée pour des gouttes en évaporation [7] ou impactant sur des surfaces chaudes [8, 9], afin de mesurer simultanément la température et la fraction de glace de gouttes surfondues.

2 Principes de la thermométrie par Fluorescence Induite par Laser

Le principe de la Fluorescence Induite par Laser (LIF) consiste à induire la fluorescence d'un traceur thermodépendant et préalablement dissous dans le liquide à caractériser (l'eau ici). Un modèle simplifié de la LIF consiste à introduire la sensibilité en température s (en %/°C). Ce coefficient ne dépend pas de la température mais uniquement du traceur utilisé et de la longueur d'onde. Le signal de fluorescence I_{fi} collecté dans un volume de mesure V_c sur une bande spectrale i à une température T peut s'écrire :

$$I_{fi} = K_i C V_c I_0 e^{s_i T} \quad (1)$$

avec I_0 l'intensité locale d'excitation laser, C la concentration en traceur fluorescent et K_i une constante qui dépend à la fois du traceur fluorescent et de la chaîne optique utilisée. Les paramètres I_0 et V_c étant généralement difficiles à obtenir, il est possible de simplifier ces constantes en collectant simultanément le signal de fluorescence sur deux bandes spectrales distinctes (respectivement I_{f1} et I_{f2}) et d'en déduire

un rapport :

$$R_{12} = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} = \frac{K_1 C_1}{K_2 C_2} e^{\dots} \quad (2)$$

dans le cas d'une méthode utilisant deux traceurs fluorescents. Cette méthode est notée la LIF deux couleurs deux traceurs (2c2dLIF). Les constantes K_i et C_i peuvent être supprimées en réalisant une mesure de référence R_{120} à une température T_0 connue :

$$\frac{R_{12}}{R_{120}} = e^{(s_1 - s_2)(T - T_0)} \quad (3)$$

Comme montré dans l'équation 1, la connaissance de la sensibilité en température $s_1 - s_2$ permet une mesure de température. La sensibilité en température est obtenue par une étape de calibration en température décrite ci-dessous.

3 Application au cas de gouttes surfondues

Différents tests menés sur la possibilité d'une mesure de température utilisant un seul traceur (LIF2c1d) nous ont conduits finalement à utiliser une solution à deux traceurs fluorescents (LIF2c2d) : mélange de rhodamine 560 ($C_{Rh560} = 0,5 \times 10^{-5}$ mol.L $^{-1}$) et de KitonRed ($C_{KR} = 0,5 \times 10^{-6}$ mol.L $^{-1}$). En effet, ces colorants ont une dépendance opposée vis à vis de la température et leurs spectres d'émission sont bien séparés, diminuant ainsi les conflits spectraux dus aux chevauchements des spectres de fluorescence [10]. La Figure 1 représente des spectres typiques du mélange pour différentes températures et normalisés avec la température la plus basse (ie à -7°C). La courbe en ronds noirs présente l'évolution de la sensibilité en température s en fonction de la longueur d'onde. Ainsi, les bandes spectrales de détection sélectionnées sont :

- Bande 1 [496; 517] nm : Seule la Rhodamine 560 a une contribution sur cette bande, l'intensité de fluorescence va donc décroître lorsque la température diminue. La fluorescence est partiellement absorbée par le Kitonred ainsi que par la Rhodamine560.
- Bande 2 [640; 660] nm : Seul le Kitonred a une contribution sur cette bande, l'intensité de fluorescence va donc augmenter lorsque la température diminue.

Cependant, il est également nécessaire de prendre en compte l'absorption d'un colorant par l'autre qui peut dépendre de la température ainsi que la longueur du chemin optique. Sur la Figure 2 sont donnés les spectres d'absorption et d'émission de chaque colorant. Il semble que la bande 1 puisse conduire à un tel conflit spectral : l'émission de la Rh560 peut être absorbée par elle-même ainsi qu'absorbée par le KR. Dans [11], les auteurs montrent que l'absorption du KR ne dépend pas de la température. Dans la présente étude, la LIF2c2d est appliquée au cas de gouttes. Par conséquent, les longueurs de chemin optique sont très faibles (de l'ordre de 100 μm) et l'absorption de la Rh560 par elle-même peut donc être négligée.

Le paramètre de sensibilité en température $s_1 - s_2$ est obtenu en réalisant une calibration en température qui consiste à mesurer le rapport R_{12} à différentes températures contrôlées. L'étape de calibration de la solution est réalisée sur une goutte suspendue à l'aide d'un dispositif expérimental décrit à la Figure 3. Le dispositif est composé d'une enceinte cylindrique réfrigérée à double enveloppe (diamètre intérieur 80 mm et 185 mm de hauteur) dans lequel un fluide caloporteur (Thermal HL80 JULABO ®) circule. Ce système permet de contrôler la température de l'air ambiant entre $+70^\circ\text{C}$ et -45°C . Le signal de fluorescence est induit par un laser continu vert ($\lambda = 532$ nm, Ventus LaserQuantum ®). La goutte (approximativement 2 mm) est suspendue à une aiguille de diamètre extérieur de 400 nm. Un thermocouple (type K et de diamètre 0,5 mm), placé au plus près de la goutte, permet de mesurer la température de l'air ambiant.

En réalisant des paliers de température très longs, nous faisons l'hypothèse que la goutte est à l'équilibre thermique avec le milieu ambiant. Le signal de fluorescence est collecté à angle droit au moyen d'un doublet achromatique (lentille frontale focale de 300 mm) et couplé à une fibre optique ayant un diamètre de cœur de 70 μm . Le signal de fluorescence est ensuite séparé sur les deux bandes spectrales au moyen d'une lame dichroïque séparatrice. La fluorescence est enfin détectée au moyen de deux tubes photomultiplicateurs avant d'être numérisée par une carte d'acquisition. La Figure 4 présente les résultats de la calibration en température. La rupture dans le comportement de la courbe observée vers

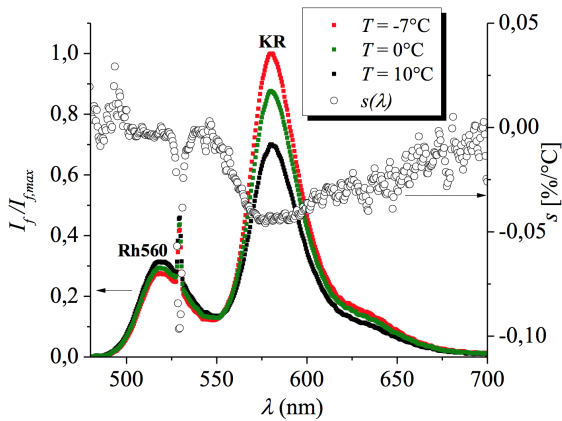


Figure 1: Spectres typiques du mélange KR/ Rh560 (axe gauche) pour différentes températures normalisés avec la température la plus basse et évolution de la sensibilité en température (axe droit) en fonction de la longueur d'onde.

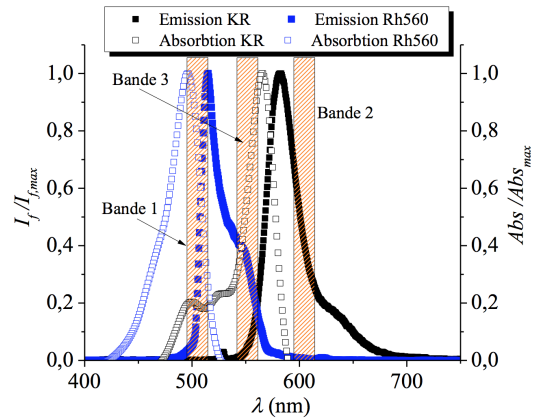


Figure 2: Spectres d'absorption et d'émission du KitionRed et de la Rhodamine560. Représentation des bandes spectrales de détection.

-17°C apparaît lorsque la goutte se solidifie (contrôlé visuellement). Cette modification du comportement sera exploitée en section 4. La sensibilité en température ainsi obtenue est de 2.56%/°C. Pour vérifier la validité de la calibration, des mesures similaires sont effectuées avec du mélange KR/Rh560/eau introduit dans une cuve de 600 μ L. La température est mesurée à l'aide d'un thermocouple (type K diamètre de 0,5 mm) directement plongé dans le mélange. Les mesures obtenues avec ce montage sont ajoutées sur la Figure 4 (points noirs) et se superposent sur celles obtenues avec la goutte suspendue.

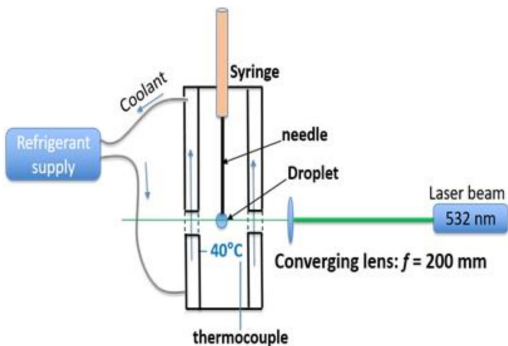


Figure 3: Montage expérimental pour la calibration en température à l'aide d'une goutte suspendue.

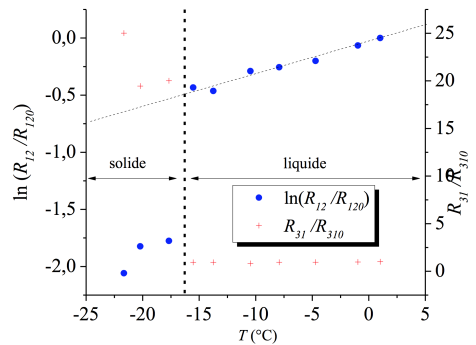


Figure 4: Axe gauche : calibration en température obtenue dans le cas d'une goutte suspendue et comparaison avec ceux obtenue dans une cuve. Axe droit: évolution du second rapport de fluorescence normalisé (à 0°C) obtenue dans le cas d'une goutte suspendue.

4 Etude du changement de phase et estimation de la fraction de glace

La calibration obtenue à la Figure 4 reste valide tant que l'eau reste à l'état surfondu. Il est donc nécessaire de pouvoir connaître dans quel état se trouve l'eau au moment où le rapport R_{12} est mesuré. La Figure 5 compare un spectre enregistré à l'état liquide et solide. Il apparaît une forte déformation lors du changement de phase, et plus particulièrement pour la Rh560 qui voit son intensité s'effondrer ($490 < \lambda < 550$ nm). L'idée est donc d'utiliser un second rapport de fluorescence suffisamment sensible au

changement de phase, mais moins à la température. L'introduction d'une troisième bande de détection (bande 3 [595 ; 615 nm], Figure 2) combinée à la bande 1 précédente répond à cette problématique : un second rapport de fluorescence R_{31} est ainsi utilisé. C'est la technique de LIF3c2d.

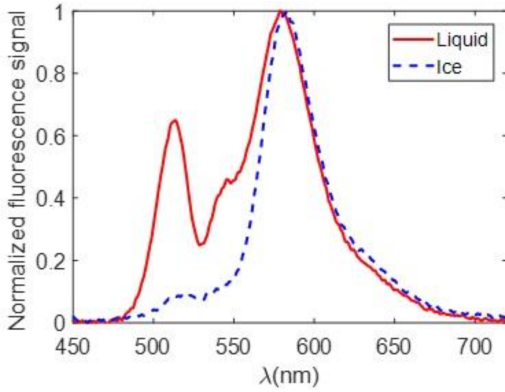


Figure 5: Spectres du mélange Kr/Rh560 mesuré en phase solide (glace) et en phase liquide.

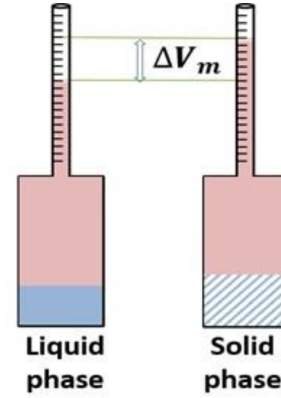


Figure 6: Cuve utilisée pour observer l'évolution du changement de phase lors du refroidissement de l'eau.

Sur la Figure 4 est décrit l'évolution du second rapport normalisé R_{31}/R_{310} obtenu avec une goutte suspendue et le dispositif de la Figure 3. Il apparaît clairement que ce second rapport est quasiment insensible à la température, puis, augmente brutalement lors du changement de phase (due à l'effondrement du pic de fluorescence de la Rh560, ie intensité I_{f1}).

L'introduction de ce second rapport ouvre par la même occasion de nouvelles perspectives. En particulier, il serait intéressant de pouvoir décrire la transition entre les deux plateaux décrit par R_{31} à la Figure 4. Cette transition est en effet l'image de l'apparition progressive de cristaux de glace dans l'eau surfondue. Ainsi, l'objectif est de poursuivre l'étude afin d'obtenir une relation entre le rapport R_{31} et la fraction de glace. Pour un volume d'eau donné, la fraction de glace χ peut être définie comme le rapport du volume solide (glace) V_s sur le volume d'eau total, ie à l'état liquide V_l et à l'état solide :

$$\chi = \frac{V_s}{V_l + V_s} \quad (4)$$

Comme l'apparition de cristaux de glace se traduit par une variation de volume, l'idée dans un premier temps est de corréler la variation d'un volume d'eau donné au rapport R_{31} . La transition avec la goutte n'a jamais pu être enregistrée du au trop petit volume d'eau. Ainsi, un montage spécifique est réalisé (Figure 6) : il s'agit d'une cuve contenant un volume d'eauensemencée en mélange Rh560/KR et complétée par de l'huile de silicone non miscible. Le dessus de la cuve est équipé d'un tube gradué en volume (mL). Cette cuve est ensuite introduite dans l'enceinte climatique précédente (Figure 3) de telle manière que le faisceau laser passe dans la zone inférieure contenant l'eau. Lors du refroidissement à différents paliers de température T , la variation de volume total ΔV_m est mesurée par caméra (erreur estimée à 10^{-2} mL). Ainsi la variation de volume de l'eau totale ΔV_e à chaque température T est déduite de la relation suivante :

$$\Delta V_m(T) = \Delta V_e(T) + \Delta V_h(T) \quad (5)$$

où ΔV_h est la variation de volume de l'huile (coefficient de dilatation $\text{kh} = 9,7 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$).

L'opération est réalisée pour trois volumes d'eau V_{oe} initiaux : 0.6, 1 et 2 mL. Par ailleurs, la sensibilité de R_{31} au changement de phase n'est justement pas supposée dépendre du volume d'eau initiale. Ainsi, une variation du volume d'eau total normalisée est introduite :

$$\Delta V_n = \frac{\Delta V_e}{\Delta V_{e,solide}} \quad (6)$$

où $\Delta V_{e,solide}$ correspond à la variation du volume d'eau obtenue après solidification intégrale de toute l'eau (ie 100% de glace). Les résultats correspondant sont reportés à la Figure 7 : il est y décrit l'évolution

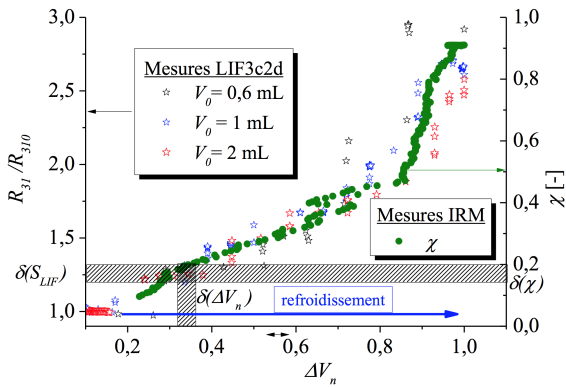


Figure 7: Axe gauche : évolution du second rapport de fluorescence en fonction de la variation de volume pour trois volumes d'eau initiaux. Axe droit : évolution de la fraction de glace obtenue par IRM en fonction de la variation de volume d'eau (utilisation de la cuvette Figure 6).

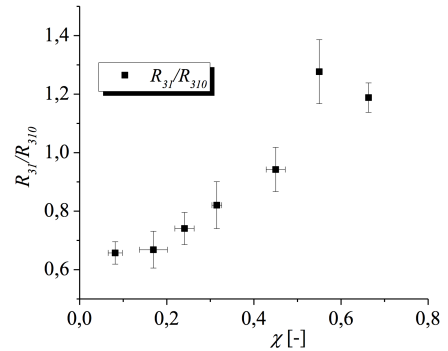


Figure 8: Courbe de calibration LIF/fraction de glace.

de R_{31}/R_{310} en fonction de ΔV_n pour les trois volumes d'eau initiaux ΔV_{0e} . Jusque $\Delta V_n \approx 0,8$, malgré une certaine dispersion des points, les trois expériences se superposent bien et suivent une même tendance. Ainsi, il existe bien une corrélation entre la variation du volume d'eau et le second rapport de fluorescence R_{31} . Cependant, la cuve de la Figure 6 ne permet pas, à priori, de mesurer directement le volume de glace et donc de déduire la fraction de glace χ :

$$\chi = \frac{V_s}{V_l + V_s} = \frac{V_s}{\Delta V_m + V_{0,e}} \quad (7)$$

Il est donc nécessaire d'utiliser un autre moyen pour accéder à la fraction de glace. Plus précisément, il s'agit d'employer l'Imagerie Résonance Magnétique nucléaire (IRM) dans les mêmes conditions expérimentales de refroidissement que pour la LIF avec la cuve précédente (Figure 6). Le lien entre fraction de glace χ et ΔV_n est ainsi obtenu. Puis, à l'aide des mesures LIF liant ΔV_n à R_{31} , la corrélation entre fraction de glace χ et R_{31} est ainsi déduite. Le principe de la RMN repose sur la mesure du temps de relaxation des protons ^1H contenu dans un milieu. En particulier, le temps de relaxation est plus court en phase solide qu'en phase liquide.

Ici, un spectromètre RMN (Biospec Bruker ®; 600 Mhz, 14.1 Tesla) équipé d'un système d'imagerie est employé. La cuve contenant 2 mL d'eau et toujours complétée en huile de silicone est fixée au centre de l'aimant du spectromètre RMN. Un écoulement d'air contrôlé en température (+70°C à -35°C) est également introduit au centre de l'aimant afin de refroidir l'eau et l'huile dans la cuve. Des images de la cuve sont enregistrées en réalisant des séquences de type RARE [6] pour différents paliers de température. La température de l'eau dans la cuve est contrôlée par une sonde optique (non métallique) plongée dans la cuve. Les images (4 cm × 4 cm) sont orientées verticalement et visualisent le milieu de la cuve. Le post-traitement des images consiste à calculer le déplacement de l'interface huile/eau afin de déduire la variation de volume puis à calculer la variation de l'intensité (réponse des protons ^1H différentes selon l'état liquide ou solide de l'eau) afin de déduire la fraction de glace. Les résultats (χ en fonction de ΔV_n) sont reportés à la Figure 7 (ronds verts). De la même manière, l'évolution de χ au-delà de 0,8 ne sont pas physiques (explication en dehors du cadre de la présente discussion) et ne sont donc pas tenu compte. Afin de diminuer la dispersion des points obtenus par LIF, des classes de variation de volume d'eau $\delta(\Delta V_n)$ sont utilisées. Le résultat final, ie correspondance R_{31}/R_{310} fraction de glace χ , est présenté à la Figure 8.

5 Application à des gouttes surfondues en écoulement

La nouvelle chaîne de LIF3c2d est enfin testée sur des gouttes surfondues en écoulement. Un dispositif expérimental est spécifiquement conçu (Figure 9) : il consiste en une seconde chambre climatique à double enveloppe de 79 cm de haut et de diamètre interne de 100 mm. Le même groupe froid est

utilisé pour refroidir l'air interne T_{amb} de l'enceinte jusque -45°C . La partie inférieure de l'enceinte est constituée d'un bloc équipé d'accès optiques (fenêtre en BK7 de 2 cm de diamètre) pour les mesures de LIF. Sur la partie supérieure est monté un générateur de gouttes monodisperses dont le diamètre d'injection des gouttes est modifiables en changeant la membrane de sortie. Par ailleurs, la température de l'eau à l'injection est ici régulée aux alentours de 0°C . Enfin, le volume de mesure pour la LIF est généré par une sonde d'émission laser LDA. Une lentille frontale de 300 mm est utilisée afin de déporter le point de croisement des faisceaux au niveau de l'axe principal de l'enceinte et donc à environ 79 cm de l'injection.

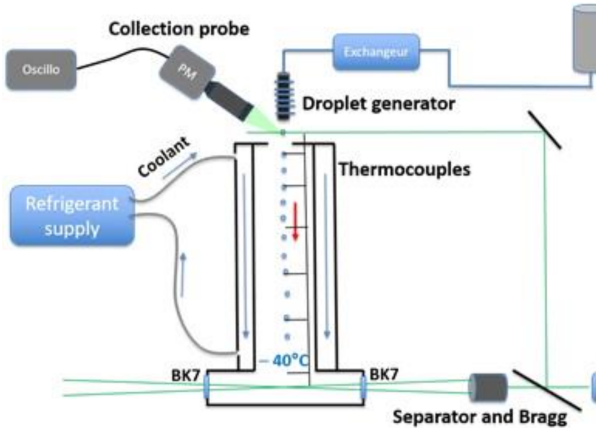


Figure 9: Dispositif expérimental pour la génération de gouttes surfondues en écoulement.

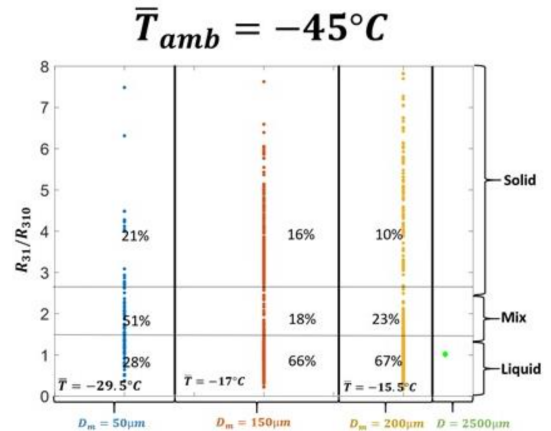


Figure 10: Caractéristiques de gouttes surfondues (température et fraction de glace) en écoulement dans un environnement froid ; influence de la taille initiale des gouttes.

La température de l'air ambiant est maintenue à -45°C (contrôle via 7 thermocouples insérés le long de l'enceinte). Puis, trois séries d'expérience sont réalisées pour trois diamètres d'injection des gouttes différents (membranes de diamètre $D_m = 50, 150$ et $200 \mu\text{m}$) et pour 1000 gouttes environ. Pour chacune des 1000 gouttes détectées, un tri est opéré selon la valeur du rapport normalisé R_{31}/R_{310} afin de déterminer l'état de la goutte : 100% liquide, 100% solide ou mixte. Les seuils de R_{31}/R_{310} sont déterminés à partir de la Figure 7. L'ensemble des résultats est donné à la Figure 10 où, pour un diamètre de membrane donné D_m , un point représente une goutte détectée. Les pourcentages correspondent non pas à la fraction de glace, mais à la proportion des 1000 gouttes qui sont liquides (ie toujours surfondues), solides ou mixtes. Comme attendu, la proportion de gouttes liquides augmente avec la taille des gouttes. Au contraire, la part de gouttes solides diminue avec le diamètre d'injection. Enfin, lorsque les gouttes sont liquides, il est possible d'en déduire leur température en utilisant le rapport R_{12} . Ici est donnée la température moyenne de toutes les gouttes liquides par diamètre de membrane. On observe bien un refroidissement plus important des gouttes quand le diamètre à l'injection diminue.

6 Conclusions

Une nouvelle chaîne LIF a été développée pour mesurer de manière simultanée la température et la fraction de glace de gouttes surfondues. La chaîne utilise deux colorants et trois bandes spectrales de détection afin de calculer deux rapports de fluorescence : un premier pour la température puis un second pour déterminer l'état de la goutte et la fraction de glace. D'autres mesures d'IRM sont à réaliser sur des gouttes afin de conforter la mesure de fraction de glace par LIF. Enfin, des mesures de températures seront entreprises avec une enceinte de plus petite hauteur. Cette configuration permet de conserver le caractère « train de gouttes » du jet et donc de pouvoir confronter les mesures avec un modèle d'évaporation de gouttes.

7 Remerciements

Les auteurs remercient l'agence nationale française pour son soutien financier à travers le projet ANR ASTRID NUAGE (ANR-15-ASTR-0003-01).

References

- [1] T. Cebeci, F. Kafyeke, Aircraft Icing, *Annual Review Fluid Mechanic*, 35(1) : 11-23, 2003
- [2] M. Brunel, G. Demange, M. Fromager, M. Talbi, H. Zapolsky, R. Patte, K. Ait Ameer, J. Jacquot-Kielar, S. Coetmellec, G. Gréhan, et B. Quevreur, Instrumentation for ice crystal characterization in laboratory using interferometric out-of-focus imaging, *Review of scientific instrumentation*, 88(8) : 83-108, 2017
- [3] I. Durickovic, R. Claverie, P. Bourson, M. Marchetti, J.M. Chassot, M.D. Fontana , Water-ice transition probed by Raman spectroscopy, *Journal of Raman Spectroscopy*, 42(6) : 1408-1412, 2011.
- [4] X. Xue, Z.-Z. He et J. Liu, Detection of water-ice phase transition based on Raman spectroscopy, *Journal of Raman Spectroscopy*, 44(7) : 1045-1048, 2013.
- [5] J.P. Hindmarsh, A.B. Russell, X.D. Chen, Measuring dendritic growth in undercooled sucrose solution droplets, *Journal of crystal growth*, 285(1-2) : 236-248, 2005.
- [6] J.P. Hindmarsh, D.I. Wilson, M.L. Johns, Using magnetic resonance to validate predictions of the solid fraction formed during recalescence of freezing drops, *International Journal of heat and mass transfer*, 48(5) : 1017-1021, 2005.
- [7] G. Castanet, L. Perrin, O. Caballina, F. Lemoine, Evaporation of closely-spaced interacting droplets arranged in a single row, *International Journal of Thermal and Science*, 93: 788-802, 2016.
- [8] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet et F. Lemoine, Spatially and temporally resolved measurements of the temperature inside droplets impinging on a hot solid surface, *Experiments in Fluids*, 58:96, 2017.
- [9] A.Labergue, J.-D.Pena-Carillo, M.Gradeck et F.Lemoine, Combined three-color LIF-PDA measurements and infrared thermography applied to the study of the spray impingement on a heated surface above the Leidenfrost regime, *International Journal of heat and mass transfer*, 104: 1008-1021, 2017.
- [10] W. Chaze, O. Caballina, G. Castanet et F. Lemoine, The saturation of the fluorescence and its consequences for laser-induced fluorescence in liquid flows, *Experiments in Fluids*, 57:4, 2016.
- [11] J. Coppeta and C. Rogers, Dual emission laser induced fluorescence for direct planar scalar behavior measurements', *Experiments in Fluids*, 25 (1): 1-15, 1998.