



HAL
open science

FLUCTUATIONS DE NON EQUILIBRE POUR L'ETUDE DES PROPRIÉTÉS DE TRANSPORT DES FLUIDES

Fabrizio Croccolo

► **To cite this version:**

Fabrizio Croccolo. FLUCTUATIONS DE NON EQUILIBRE POUR L'ETUDE DES PROPRIÉTÉS DE TRANSPORT DES FLUIDES. Physique [physics]. Université de Pau et des Pays de l'Adour, 2015. tel-02477110

HAL Id: tel-02477110

<https://hal.science/tel-02477110v1>

Submitted on 13 Feb 2020

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.

FLUCTUATIONS DE NON EQUILIBRE POUR L'ETUDE DES PROPRIÉTÉS DE TRANSPORT DES FLUIDES

MÉMOIRE DE SYNTHÈSE DES ACTIVITÉS DE RECHERCHE ET D'ENCADREMENT

présenté devant
l'Université de Pau et des Pays de l'Adour

pour l'obtention de
l'Habilitation à Diriger des Recherches

par
FABRIZIO CROCCOLO

École doctorale :
Sciences Exactes & leurs applications (ED211)

Spécialité :
PHYSIQUE

Habilitation soutenue le 01/12/2015 devant la Commission d'examen

Jury MM.

| | | |
|------------------------|--------------------------------|------------------------------|
| MOUNIR BOU-ALI | Professeur | University of Mondragon (ES) |
| LUCA CIPELLETTI | Professeur - Rapporteur | Université de Montpellier |
| BERNARD ROUSSEAU | Professeur - Rapporteur | Université de Paris Sud |
| VALENTINA SHEVTSOVA | Chercheuse - Rapporteur | Université de Brussels (BE) |
| GILLES PIJAUDIER-CABOT | Professeur | LFC-R – UPPA Anglet |
| GUILLAUME GALLIERO | Professor | LFC-R – UPPA Pau |

Université de Pau et des Pays de l'Adour
LFCR – UPPA – CNRS UMR5150
Campus Montaury, 64600 Anglet, France

Contents

| | |
|--|-----------|
| Table des matières | iv |
| Table des figures | v |
| Liste des tableaux | vi |
| 1 Curriculum vitæ | 1 |
| 2 Introduction générale | 7 |
| 3 Activités de recherches doctorales | 9 |
| Introduction. | 9 |
| 3.1 Résumé de la thèse d’université | 10 |
| 3.1.1 Actions | 11 |
| 3.1.2 Perspectives | 13 |
| 3.1.3 Mémoire de thèse | 15 |
| 4 Activités de recherches post-doctorales | 17 |
| Introduction. | 17 |
| 4.1 Développement de sources de plasma pour traitements de matériaux : Université de Milano-Bicocca (IT) | 20 |
| 4.1.1 Contexte | 20 |
| 4.1.2 Verrous scientifiques | 20 |
| 4.1.3 Actions | 20 |
| 4.1.4 Perspectives | 22 |
| 4.2 Analyse des matériaux par microscopie à balayage électronique et ionique : Université de Milano-Bicocca (IT) | 23 |
| 4.2.1 Contexte | 23 |
| 4.2.2 Verrous scientifiques | 23 |
| 4.2.3 Actions | 23 |
| 4.3 Techniques optiques de diffusion de la lumière dans le champ proche : Université de Milano-Bicocca (IT) | 25 |
| 4.3.1 Contexte | 25 |
| 4.3.2 Verrous scientifiques | 25 |
| 4.3.3 Actions | 26 |
| 4.4 Statistiques avancés : Université de Milano-Bicocca (IT) | 28 |
| 4.4.1 Contexte | 28 |
| 4.4.2 Actions | 28 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 4.5 | Mesures des propriétés de transport des mélanges binaires par interférométrie : Université de Pau et des Pays de l'Adour (FR) | 30 |
| 4.5.1 | Contexte | 30 |
| 4.5.2 | Verrous scientifiques | 30 |
| 4.5.3 | Actions | 31 |
| 4.5.4 | Perspectives | 33 |
| 4.6 | Mesures des propriétés de transport des mélanges binaires par diffusion de la lumière dynamique : Université de Fribourg (CH) | 34 |
| 4.6.1 | Contexte | 34 |
| 4.6.2 | Verrous scientifiques | 34 |
| 4.6.3 | Actions | 34 |
| 4.7 | La convection dans une couche fluide inclinée ; « Super Highway Convection » : Université de Fribourg (CH) | 37 |
| 4.7.1 | Contexte | 37 |
| 4.7.2 | Verrous scientifiques | 37 |
| 4.7.3 | Actions | 38 |
| 4.8 | Propriétés de transport haute pression et dans le confinement : Université de Pau et des Pays de l'Adour (FR) | 40 |
| 4.8.1 | Contexte | 40 |
| 4.8.2 | Verrous scientifiques | 40 |
| 4.8.3 | Actions | 41 |
| 4.8.4 | Perspectives | 44 |
| | Bibliographie. | 49 |
| 5 | Perspectives dans le moyen terme | 51 |
| 6 | Insertion dans l'unité de recherche d'appartenance | 53 |
| 6.1 | Place de ma recherche dans celle de mon unité | 53 |
| 6.1.1 | Laboratoire d'accueil | 53 |
| 6.1.2 | Équipe d'accueil <i>Géomécanique – Milieux Poreux</i> | 53 |
| 7 | Gestion administrative et financière | 57 |
| 7.1 | Obtention et gestion des contrats de recherche | 57 |
| 7.2 | Collaborations et réseaux | 68 |
| 7.2.1 | Collaborations internationales | 68 |
| 7.2.2 | Insertion dans un réseau international et/ou national | 70 |
| 7.2.2.1 | Associations | 70 |
| 7.2.2.2 | Réseaux | 70 |
| 7.3 | Organisation de manifestations scientifiques et diffusion en direction du public | 71 |
| 7.3.1 | Colloques ou congrès | 71 |
| 8 | Encadrement et co-encadrement d'étudiants | 73 |
| 9 | Tâches administratives et activités d'enseignement | 79 |
| 9.1 | Activités d'enseignement | 79 |

| | |
|--|-----------|
| 10 Liste des publications | 81 |
| 10.1 Revues internationales à comité de lecture | 81 |
| 10.2 Chapitres d'ouvrages scientifiques | 84 |
| 10.3 Productivité et citations | 84 |
| 11 Liste des communications | 85 |
| 11.1 Conférences invitées | 85 |
| 11.2 Communications avec actes et sélection sur résumé | 85 |
| 11.3 Communications sans actes avec sélection sur résumé | 86 |

List of Figures

| | | |
|------|---|----|
| 3.1 | Spectres de puissance 2D des fluctuations de non équilibre pour différentes cas de la transition entre Schlieren (a) et shadowgraph/ombroscopie (e). | 12 |
| 3.2 | Temps de corrélation τ en fonction du vecteur d'onde q | 13 |
| 4.1 | Montage expérimentale de la source de plasma inductive | 21 |
| 4.2 | Image FIB des surfaces de Polyéthylène (a) avant et (b) après le traitement plasma | 21 |
| 4.3 | Image de la machine à plasma inductif | 22 |
| 4.4 | Effet miroir ionique : d'abord un matériel isolant est chargé positivement par balayage d'un faisceau des ions à haute énergie, ensuite il est observé par balayage de faisceau des ions à basse énergie. On obtient alors une image 'miroir' de la chambre du microscope . | 24 |
| 4.5 | Spectres des fluctuations de densité en fonction du temps d'exposition pour quatre valeurs du vecteur d'onde | 26 |
| 4.6 | Représentation schématique du dispositif expérimental. | 27 |
| 4.7 | Graphe-arbre des corrélations de titre artificiels généré par le modèle à un paramètre. . . | 28 |
| 4.8 | Facteur de contraste optique de concentration en fonction de la pression. | 32 |
| 4.9 | Accélération du calcul par carte graphique GPU | 35 |
| 4.10 | Schéma d'analyse des données par ombroscopie dynamique avec algorithme DDA . . . | 35 |
| 4.11 | Évolution temporelle des figures de convection par ombroscopie avec (e) structure SHC. | 39 |
| 4.12 | Résumé visuel du papier EPJE 37 77 (2014). | 42 |
| 4.13 | Couverture du numéro de novembre 2014 du EPJE. | 43 |
| 4.14 | Temps de corrélation sous confinement. | 43 |
| 6.1 | Organigramme LFC-R au 1er janvier 2011. | 54 |
| 6.2 | Trombinoscope de l'équipe au 1er janvier 2013. | 55 |
| 7.1 | Image d'une centrale thermonucléaire et taille de l'enceinte du 'core'. | 60 |
| 7.2 | Panel d'analyse des images des ouvertures des fissures par corrélation d'images. | 62 |
| 7.3 | L'astronaute canadien Robert Thirsk installe SODI dans la GLOVEBOX à bord de l'ISS. | 64 |
| 10.1 | Nombre des articles publiés et des citations par an (du site ISI Web of Knowledge). . . . | 84 |

List of Tables

6.1 Collaborations au sein de l'IPRA 55

Chapter 1

Curriculum vitæ



Curriculum Vitae

PERSONAL DATA

Birth date: 03/12/1972
Birthplace: Milano (IT)
Status: Married, 3 sons
Military Service: Social Services from 02/1999 to 12/1999

EDUCATION

- Jan. '12: **Management** Course FOCAFRI (Haute Ecole de Gestion de Fribourg)
- Dec. '11: **B2** French pronunciation course by C. Cartron (University of Fribourg)
- Feb. '11: **B2** French course by P. Morand (University of Fribourg)
- Feb. '11: Course by F. Scheffold (University of Fribourg): Modern Light Microscopy
- Oct. '08 - May '09: **B2** English conversation course by A. Ferrara (University of Milano-Bicocca)
- 19 Jan. '06: **PhD in Physics**
- June '03: PhD course, by H.E. Roman (University of Milano): Stochastical Dynamics and Long Range Correlations with an introduction to Econophysics
- June '03: PhD course, by D. Galli (University of Milano): Computational Physics with introduction to Monte-Carlo simulations and Genetic Algorithms
- Nov. '02: Course, by R. Piazza (Polytechnic School of Milano): Fluid Dynamics
- 20 Sept. '01: **Degree in Physics** (106/110)
- July '91: High school - Liceo for Scientific Studies (certificate grade 41/60)

RESEARCH ACTIVITY

- From Nov. '12 to present: PostDoc Researcher – Laboratoire des Fluides Complexes et leurs Réservoirs – University of Pau (FR) – Prof. G. Pijaudiet-Cabot
- From Nov. '10 to Oct. '12: Marie-Curie IEF Fellowship – University of Fribourg (CH) “Dynamic Near Field Imaging” – Prof. F. Scheffold
- From Nov. '09 to Oct. '10: Post-Doc – University of Pau (FR) “Optical measurements of diffusion and Soret coefficients of multi-component mixtures across porous media and under high pressure” – Prof. G. Pijaudiet-Cabot
- From Jan. '07 to Oct. '09: Post-Doc - University of Milano-Bicocca (IT) “Development of diagnostics for plasma physics” – Prof. C. Riccardi
- From Dec. '05 to Dec. '06: Post-Doc - University of Milano-Bicocca (IT) “Development of plasma sources for material treatments” – Prof. C. Riccardi
- From Nov. '02 to Jan. '06: PhD - University of Milano (IT) “Dynamics of non-equilibrium fluctuations in free diffusion” – Prof. M. Giglio
- From Oct. '01 to Oct. '02: Grant owner - University of Milano (IT) “Development and testing of a Flowing-Junction cell for the study of non-equilibrium fluctuations in microgravity” – Prof. M. Giglio
- From Sept. '00 to Sept. '01: Laurea Degree Thesis - University of Milano (IT) “Design of Flowing-Junction cell for the study of non-equilibrium fluctuations in free diffusion processes in microgravity” – Prof. M. Giglio

AWARDS

- In 12/09 I've been awarded with a Marie Curie Fellowship (Intra-European Fellowship) Proposal Number: 251131, Acronym: DyNeFI. (184.000 €) The fellowship started on 1st November 2010 and will last for two years

CONSULTANCY ACTIVITY

- May '07: design and set-up of a Magnetic Tweezers microscope for DNA manipulation – Experimental Medicine Dept. University of Milano-Bicocca (IT)
- Feb. '05: writing of a part of a technical Proposal to European Space Agency – Carlo Gavazzi Space S.p.A. (IT)

RESEARCH SKILLS

- Extensive experience with scattering in the near field **optical techniques** such as Shadowgraph, Schlieren, both for static and dynamic light scattering measurements. Development of **algorithms for image analysis**. Experience in different interferometric techniques
- Experience in **European funding programs** in the FP7 PEOPLE framework
- Extensive experience in **experimental activities for fluid physics** experiments
- Extensive experience in **programming** in C/C++, Sage (Python), MatLab and LabView
- Extensive experience in **writing** scientific articles and technical reports and in presenting the results at international conferences
- Extensive experience in **teaching** to undergraduate students
- Considerable experience with the industrial world in defining requirements and specifications for the supply of services and materials and in technology transfer projects
- Considerable experience with a FIB/SEM microscope and basic knowledge of an AFM microscope

TEACHING ACTIVITY

- A.Y. 13/14 and 14/15: Course “ISA5: **Risk Management for Civil Engineering**” – University of Pau (FR) and TP “ISA4: **Fourier transforms**”
- A.Y. 12/13: **Teaching assistant** for the course “L3 : **Optique Ondulatoire**” – University of Pau (FR)
- A.Y. 10/11 and 11/12: **Teaching assistant** for the laboratory “**Laboratoire de Physique**” – University of Fribourg (CH)
- A.Y. 09/10: **Teaching assistant** for the laboratory “**Laboratoire de Physique**” – University of Pau (FR)
- A.Y. 08/09: **Teaching assistant** for the laboratory “**Measurement Techniques**” – University of Milano-Bicocca (IT) Biological Sciences Department
- A.Y. 08/09: **Teaching assistant** for the laboratory “**Informatics I**” – University of Milano-Bicocca (IT) Physics Department
- A.Y. 08/09 and 09/10: **Teaching assistant** for the course “**Physics I - Mechanics**” – University of Milano (IT) Physics Department
- A.Y. 08/09: **Teaching assistant** for the course “**Fundamentals of Mathematics**” – University of Milano-Bicocca (IT) Biological Sciences Department
- September 08: **Lecture Note** “Beam path modifications by insulating materials” - 1st International Summer School of Microscopy - University of Milano-Bicocca (IT)
- A.Y.s 06/07 and 07/08: **Teaching assistant** for the course “**Physics II**” – University of Milano-Bicocca (IT) Physics Department
- A.Y.s 02/03, 03/04, 04/05, 05/06 and 06/07: **Teaching assistant** for the course “**Physics**” and “**Medical Physics**”– University of Milano-Bicocca (IT) Medicine Department
- A.Y. 05/06: **Teaching assistant** for the course “**Fundamentals of Electromagnetism**” – Polytechnic School of Milano (IT) Biomedical Engineering
- A.Y. 05/06: **Teaching assistant** for the course “**Experimental Physics A**” – Polytechnic School of Milano (IT) Electronics Engineering

MAIN ORAL PRESENTATIONS

- 2-6 June 14, Bayonne (FR), 11th International Meeting on Thermodiffusion: About the relation between non-equilibrium fluctuations and Soret-driven convection
- 6-9 October 13, Bayreuth (DE), Nonlinear Dynamics 2013: Moving in a line, up and down an incline, **INVITED PRESENTATION**
- 4-8 June 12, Brussels (BE), 10th International Meeting on Thermodiffusion: Observing the Soret effect in a different direction
- 15 June 11, University of Montpellier (FR), Physics Dept.: Dynamics of non-equilibrium fluctuations in diffusion processes, **INVITED SEMINAR**
- 08 May 09, University of Fribourg (CH), Physics Dept.: Dynamic Light Scattering through Near Field Imaging, **INVITED SEMINAR**
- 7-11 July 08, Patras (GR), 10th High Temperature Plasma Processes: Transition between E-Mode and H-Mode in a cylindrical ICP reactor
- 16-19 June 08, Prague (CZ), 23rd Symposium on Plasma Physics and Technology: H-Mode Inductive Coupled Plasma for PVC surface treatment
- 17-21 June 07, Prague (CZ), VIII Multinational Congress of Microscopy: Mirror Effect with a Focused Ion Beam Microscope, oral presentation and **CHAIRING SESSION**
- 02 March 07, University of Milano (IT), Medicine Dept.: Shadowgraph technique for investigating liquid crystals and disordered systems, **INVITED SEMINAR**
- 7-12 August 05, Tomar (PT), ITPMSS IV: Effect of gravity on the dynamics of non equilibrium fluctuations in a free diffusion experiment
- 16-18 August 04, Amsterdam (NL), PCS 2004: Dynamics of gradient driven fluctuations in a free diffusion process
- 16-18 May 01, Torino (IT), National A.S.I. (Italian Space Agency) Workshop: New Flowing-Junction cell for the investigation of nonequilibrium fluctuations during diffusion processes in low gravity

MAIN POSTER PRESENTATIONS

- 4-8 June 12, Brussels (BE), 10th International Meeting on Thermodiffusion: Soret coefficient measurements close to a critical point
- 6-10 Septembre '11, Wien (AT), 8th Liquid Matter Conference : A novel optical approach to the Ludwig-Soret effect: Validating data close to the critical point of a binary mixture
- August 04, Amsterdam (NL), PCS 2004: Theoretical and Experimental Characterization of a Modified Schlieren Technique
- June 04, Genova (IT), 2004 INFMeeting (National Institute for Physics of Matter): Correlated Stock Model for Simulating an Artificial Market
- June 02, Bari (IT), 2002 INFMeeting (National Institute for Physics of Matter): Non-equilibrium Fluctuations in Micro-gravity

TUTORSHIP

- 11/12-02/15 PhD student C. Giraudet, University of Pau (FR) "Determination of diffusion and thermodiffusion coefficients in mixtures containing CO₂ and hydrocarbons"
- 07/14-10/14 Licence student S. Geretti, University of Milano (IT) "Investigation of non-equilibrium fluctuations in free-diffusion processes by means of near field optical techniques"
- 09/13-12/13 Licence student M. Italia, University of Milano (IT) "Experimental study of convection of n inclined fluid layer"
- 08/11 Summer Student G. Cerchiari, University of Fribourg (CH) "CUDA/C++ implementation of the Differential Dynamic Algorithm"
- 05/07 – 07/08: Master Student A. Quintini, University of Milano (IT) "Characterization of a low-pressure inductive plasma source"

LANGUAGES

- **Italian:** mother tongue
- **English:** I speak fluently and have an excellent understanding of written texts. I'm also able to write scientific texts of optimum quality
- **French:** I can fluently speak and read intermediate difficulty texts, fair writing skills
- **Russian:** I studied the basics of Russian language

MEMBERSHIP

- Member of the Optical Society of America (OSA)
- Member of the Italian Physics Society (SIF)

CONFERENCES

- **Co-Organizer** of the 11th International Meeting on Thermodiffusion – Bayonne (FR) 2-6 June 2014 <http://fc.univ-pau.fr/live/imt11>

EDITORIAL ACTIVITY

- **Advisory Editor** for SpringerPlus
- **Guest Editor** for a Topical Issue of the Eur. Phys. J. E
http://epje.epj.org/index.php?option=com_toc&task=topic&id=320
- **Referee** for: Phys. Rev. Lett., Phys. Rev. E, Optics Letters, Optics Express, Applied Optics, JOSA, Optics Communications, Annals of the New York Academy of Sciences, Journal of Chemical Physics, ...

PERSONAL WEBSITE

- <https://sites.google.com/site/fabriziocrocco/>

Chapter 2

Introduction générale

Mon parcours de recherche a eu son début par un stage de Laurea (durée de 1 an, niveau Master) suivi par un an de stage post-Master à l'Université de Milano (IT) (2000-2001) dans le laboratoire d'Optique et Micro-Gravité du M M. Giglio et M A. Vailati. Cette première activité expérimentale sur l'étude des fluides par des techniques optiques et liée à une expérience effectuée dans des conditions de micro-gravité a marqué fortement mon parcours de recherche. A l'époque, j'ai eu la possibilité, dès le début, de dessiner une expérience à 360°. Les études entreprises dans cette première expérience ont posé les bases pour entreprendre mes études doctorales dans le même laboratoire sur la thématique plus spécifique du développement des techniques optiques de diffusion de la lumière en champ proche pour étudier les fluctuations de non équilibre pendant un processus de diffusion libre dans un mélange binaire des liquides miscibles. Mon doctorat a eu une durée de trois ans et m'a permis d'obtenir des compétences de très haut niveau du point de vue expérimental surtout suite au développement de l'algorithme dynamique différentiel par lequel nous avons réussi à utiliser les techniques optiques déjà bien connues d'une façon dynamique et donc nous avons pu mesurer pour la première fois le comportement non-diffusif des fluctuations de non-équilibre du à la gravité.

Après 5 ans de travail sur des thèmes de base je souhaitais appliquer mes compétences dans un contexte plus proche au monde industriel mais encore lié à la recherche. J'ai donc profité de la possibilité de changer de sujet et de rejoindre le LabEx PLASMAPROMETEO qui a pour but le transfert technologique vers le monde industriel de la technologie du plasma froid pour les traitements de surface des matériaux. Dans ce laboratoire j'ai travaillé presque quatre ans en tant que postdoctorant sous la guidance de Mme C. Riccardi et j'ai développé plusieurs sources de plasma pour des traitements différents de matériaux. En parallèle j'ai servi comme utilisateur d'un microscope à balayage électronique et ionique pour analyser les échantillons traités avec la technologie du plasma, j'ai collaboré avec M H.E. Roman sur des sujets de statistique avancée et j'ai instauré une collaboration très importante avec le laboratoire du M F. Mantegazza du Département de Médecine de la même Université. Dans le cadre de cette dernière collaboration j'ai contribué au développement d'un nouvel algorithme pour l'utilisation des techniques optiques de manière dynamique qui permet d'analyser des temps caractéristiques très courts aussi bien que au développement d'une technique de diffusion de la lumière avec une source à cohérence longitudinale courte .

Après presque quatre sur le sujet du plasma appliqué aux traitements de surface de matériaux, j'ai réalisé que mon intérêt scientifique était plutôt l'étude des fluides et des techniques optiques concernées. En plus je voulais avoir des expériences de recherche internationales. J'ai donc choisi d'aller à l'Université de Pau et des Pays de l'Adour dans le laboratoire LFCR pour effectuer des mesures d'interférométrie sur l'effet Soret, un effet de séparation qui apparaît dans un mélange liquide après application d'une différence de température. J'ai donc travaillé pendant un an dans l'équipe géo-mécanique du laboratoire LFCR pour mesurer les coefficients de transport d'un mélange binaire de liquides dans un

milieu poreux à haute pression avec une technique d'interférométrie.

En décembre 2009 j'ai obtenu un financement européenne du type Marie Curie Intra European Fellowship pour mon projet « Dynamic Near Field Imaging (DyNeFI) ». En novembre 2010 j'ai donc rejoint le laboratoire « Soft Matter and Photonics » du M Scheffold à l'Université de Fribourg (CH) pour développer les techniques de diffusion de la lumière en champ proche pour des utilisations de type dynamique. Toujours en collaboration avec M H. Bataller de l'UPPA on a appliqué la technique du Shadowgraph dynamique à l'étude des fluctuations hors équilibre pour mesurer le propriétés de transport de mélanges liquides binaire. En plus on a pu effectuer une étude sur l'effet d'une tout petite inclinaison sur la stabilité à long terme des figures de convection obtenues en chauffant par le bas un mélange binaire à 'separation ratio' positif et observer pour la première fois la « Super-Highway Convection ». Cette étude a été publié sur le prestigieuse journal « Physical Review Letters ».

An novembre 2012 j'ai pu rejoindre à nouveau l'équipe d'Anglet du LFCR ou nous avons développé une cellule de thermodiffusion haute pression pour étendre la technique du Shadowgraph dynamique à des mesures en fonction de la pression ou dans des conditions supercritiques. Avec l'aide d'un doctorant (M C. Giraudet) que j'ai co-encadré, nous avons donc mesuré les propriétés de transport d'une mélange liquide binaire en fonction de la pression jusqu'à 20MPa. Ce mesures ont fait la une du journal Eur. Phys. J. E au mois du novembre 2014.

Par le biais d'une collaboration avec M J.M. Ortiz de Zárate de l'Universidad Complutense de Madrid nous avons développé la théorie des fluctuations de non-d'équilibre au cas d'un mélange ternaire en absence de confinement et de gravité.

Très récemment nous avons effectué plusieurs mesures pour déterminer l'effet du confinement sur la dynamique des fluctuations de non-équilibre. Ces mesures ont montré une concordance exceptionnelle avec les résultats de calculs théoriques aussi bien que de simulations issues d'une collaboration avec M J.M. Ortiz de Zárate de Madrid et M A. Donev de la Courant University de New York. A ce moment nous somme en train d'effectuer des mesures liée au projet ESA SJ10-SCCO en collaboration avec M M.M. Bou-Ali de l'Université de Mondragon (ES).

Chapter 3

Activités de recherches doctorales

Introduction

Mon stage de Laurea (durée de 1 an, niveau Master) s'est déroulée à l'Université de Milano (IT) (2000-2001) dans le laboratoire d'Optique et Micro-Gravité du M. M. Giglio et M. A. Vailati. Mon travail de recherche a porté sur le développement d'une cellule pour préparer la situation initiale d'une expérience de diffusion libre en micro-gravité. Le but était de mettre deux fluides miscibles en contact entre eux en les gardant séparés jusqu'au moment initial de l'expérience. Cette étude était liée au projet GRAD-FLEX qui a été lancé dans la mission FOTON M3 de l'ESA en 2007 pour étudier le comportement des fluctuations de non-équilibre de la concentration dans des processus diffusifs non affectés par la gravité. Cela a donc posé le défi ultérieur de préparer cette situation en conditions d'instabilité, quand le fluide plus dense se trouve au-dessus du fluide moins dense, pour montrer la applicabilité de la cellule aux conditions de micro-gravité où il n'y a pas l'effet de stabilisation. On a réussi à obtenir cela en utilisant la technique « flowing-junction » optimisée pour nos besoins. Après l'obtention de mon Laurea (équivalent au Master) j'ai continué cette activité en tant que boursier CNR (équivalent du CNRS) sur un an (2001-2002) pour compléter les tests de fonctionnement sur la cellule « flowing-junction » aussi bien que pour l'optimiser en fonction des exigences expérimentales optiques. Dans cette période j'ai exécuté des mesures Shadowgraph sur les fluctuations hors équilibre en utilisant la cellule développée qui ont montré le fonctionnement de l'ensemble du dispositif expérimental.

Le thème des fluctuations hors équilibre m'a paru très intéressant du point de vue scientifique, en plus j'avais compris que les techniques optiques en usage dans le laboratoire du M. Giglio avaient beaucoup des possibilités d'exploitation ; j'ai donc décidé de rester dans le même laboratoire pour ma thèse de Doctorat (2002-2006). Pendant cette période je me suis occupé plus directement des techniques optiques de diffusion de la lumière en champ proche aussi bien que du processus de la diffusion de masse entre liquides. Sur le thème de l'optique j'ai développé un algorithme dynamique différentiel qui m'a permis d'utiliser plusieurs techniques optiques de manière dynamique. Ce résultat était très important car il nous a permis de mesurer pour la première fois la fonction de corrélation temporelle à des angles très petits dans la gamme qui part de 10cm^{-1} . Avec cette technique on a pu obtenir un résultat très attendu pour nos études sur la diffusion. En fait on a observé également pour la première fois le comportement non diffusif des fluctuations de non-équilibre pour de fluctuations de taille plus grande qu'une valeur critique. Ce résultat a confirmé les prédictions théoriques faites dans les années 80 sur le sujet. Mon algorithme a été appliqué dans les années suivantes aux différentes techniques optiques pour des mesures dynamiques de type champ proche, comme la diffusion de rayons X et la microscopie optique aussi bien que confocale.

3.1 Résumé de la thèse d'université

Titre: Dynamics of Non Equilibrium Fluctuations in Free Diffusion
Titre en français: Dynamique de fluctuations de non équilibre en diffusion libre
Dates : 1er octobre 2002 – 20 janvier 2006 (3 ans)
Soutenance : 20 janvier 2006
Manuscrit : Télécharger le manuscrit
Jury:

| | | |
|-------------------|--------------------------------|---|
| MARZIO GIGLIO | Professeur - Directeur | Université de Milano (IT) |
| DAVID S. CANNELL | Professeur - Rapporteur | University of California Santa Barbara (US) |
| FABIO FERRI | Chercheur- Rapporteur | Université de l'Insubria - Como (IT) |
| GUIDO PARRAVICINI | Professeur - Président | Université de Milano (IT) |
| ALBERTO VAILATI | Professeur | Université de Milano (IT) |

Lieu : Optics and Microgravity Laboratory,
 Université de Milano (IT)
 Via Celoria 16, 20133 Milano (IT).
<https://sites.google.com/site/albertovailati/>

Directeurs : Marzio GIGLIO (retraité), Professeur (marzio.giglio@unimi.it)
 Alberto VAILATI, Associated Professor (alberto.vailati@unimi.it)

Collaborateurs : David S. CANNELL (retraité), Professeur, University of California, Santa Barbara (US) (david@physics.ucsb.edu)
 Dorian Brogioli, Chercheur (dbrogioli@gmail.com)

Bourses : Bourse sur sélection de l'Ecole Doctorale de Milano.

Mots-clefs : diffusion de la lumière dynamique, fluctuations de non équilibre, algorithme dynamique différentiel, diffusion de masse, fonction de corrélation temporelle, effet de la gravité.

Résumé :

Fluctuations in a fluid in macroscopic equilibrium state have been widely investigated both theoretically and experimentally since the first decades of the 20th century. The most used experimental technique has been light scattering due to the direct access to sample structure factor, which is the fundamental tool to describe fluctuations in fluids. In the latest decades attention has moved to the fluctuations in fluids driven outside thermodynamic equilibrium by an applied macroscopic gradient. Both simple fluids and fluid mixtures have been investigated by applying a vertical, stabilizing, uniform temperature gradient to a horizontal slab of sample, which is the simplest way to generate non-equilibrium fluctuations, and the static structure factor has been investigated by light scattering techniques. The earliest experiments showed the strong divergence with a power law q^{-4} in the fluctuations intensity as the wave vector q was decreased, in net contrast with the equilibrium behaviour in which the intensity was measured to be q -independent. The q^{-4} divergence resulted in a strong increase of the scattering intensity for the smallest observable scattering angles in some case as large as 3 or 4 orders of magnitude.

The refinement of optical techniques and in particular the acquired ability to investigate smaller wave vectors, let scientists detect the stabilizing effect of gravity on the fluctuations, which was that of making the intensity constant for wave vectors smaller than a critical value q_c related to fluid properties and gravity. Moreover theory was further developed to account for time-dependent gradients like that of the free diffusion experiment in which a mixture is mechanically prepared with an initial strong concentration gradient and mass diffusion relaxes the system to the homogeneous state.

The dynamics of non-equilibrium fluctuations have been studied by the theoretical point of view and it was derived that the temporal correlation function of fluctuations should be an exponential decay with characteristic time depending on the wave vector. For wave vectors larger than the critical value q_c , the time constant should be the usual diffusive one, which has been experimentally tested. For wave vectors smaller than the critical value the time constant should be limited by the effect of gravity, but no experimental check was available since none had been able to apply any dynamic technique for wave vectors smaller than typical critical values, of the order of 100 cm^{-1} .

The subject of this thesis is the experimental investigation of the dynamics of non-equilibrium fluctuations in free diffusion processes. To get access to the temporal correlation function at wave vectors smaller than the critical ones for our samples, a new processing has been used, in fact we have applied the structure factor approach to get a statistical procedure that can be applied to images grabbed through a shadowgraph or a Schlieren or other optical techniques. The development of this procedure led to the writing of a custom-made software able to extract the temporal correlation function of the investigated sample out of the images.

Experiments have been performed on free-diffusing samples and the temporal correlation function of non-equilibrium fluctuations have been recovered as a function of the wave vector showing the non-diffusive decay behaviour below the critical wave vector thus confirming for the first time theoretical predictions and giving evidence that the temporal correlation function of non-equilibrium fluctuations is an exponential decay within experimental accuracy. Other experiments are foreseen as a development of this work to investigate the dynamics of non-equilibrium fluctuations in different diffusive processes like that of a single fluid under the effect of a temperature gradient or a binary mixture in the same conditions to analyse the behaviour of both thermal and concentration fluctuations.

Moreover it will be very much interesting to analyse the dynamics when analogous experiments will be performed in a micro-gravity environment, like in the GRADFLEX experiment that is scheduled to be flown on the Foton M3 Russian vector in 2007. The dynamical technique here introduced is well suited to study the dynamics of slow processes; therefore future experiments can be foreseen on gels or glass-like systems.

3.1.1 Actions

- Dans une configuration Schlieren, un système de lentilles forme une image des variations d'indice de réfraction d'un échantillon transparent sur un détecteur matriciel lorsque une masque d'intensité est positionné dans le plan de Fourier de la lentille qui collecte la lumière pour effectuer le filtrage spatial requis. En l'absence de la masque, la technique résultante est celle de l'ombroscopie. Les deux méthodes fournissent des informations différentes sur l'indice de réfraction des liquides transparents et peuvent être utilisées tant à des fins de visualisation qu'à des mesures de diffusion de la lumière. Dans ce papier nous décrivons l'effet de la masque d'intensité sur la fonction de transfert de la technique, à savoir sa capacité à détecter différentes fréquences spatiales et montrons comment les cas particuliers de shadowgraph, Schlieren, et la transition entre les deux peuvent être dérivées. Nous présentons également des données expérimentales qui concordent avec nos prévisions (voir Fig. 3.1).

- **Fabrizio Croccolo** and Doriano Brogioli. *Quantitative Fourier analysis of schlieren masks: the transition from shadowgraph to schlieren*. Appl. Opt., **50** 3419 (2011) ([→ web](#)).

- Nous rapportons les résultats d'une étude expérimentale sur les propriétés statiques et dynamiques

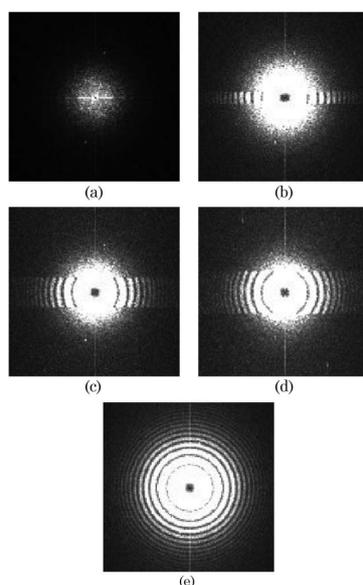


Figure 3.1 – Spectres de puissance 2D des fluctuations de non équilibre pour différents cas de la transition entre Schlieren (a) et shadowgraph/ombroscopie (e).

des fluctuations de la concentration dans un mélange de glycérol et d'eau pendant un processus de diffusion libre. La méthode de l'ombroscopie a été utilisée pour mesurer à la fois l'intensité et la fonction de corrélation temporelle des fluctuations pour des vecteurs d'onde si petits à être inaccessibles à la diffusion de la lumière dynamique classique. Pour un fluide soumis à un gradient de concentration verticale stabilisant, les fluctuations sont prédites avoir un temps de corrélation qui augmente avec la diminution de vecteur d'onde q , pour les vecteurs d'onde plus petits qu'un vecteur d'onde critique q_c , déterminées par la gravité et les propriétés du fluide. Ce comportement est dû à la force de flottabilité agissant sur les fluctuations. Nous constatons que pour les vecteurs d'onde plus petits que q_c , les temps de corrélation varient de la manière diffusif normale $1/Dq^2$, où D est le coefficient de diffusion de masse. En outre, pour $q \leq q_c$ nous constatons que les fluctuations de longueur d'onde plus grande décroissent plus rapidement que les fluctuations de longueur d'onde plus courtes, à savoir, le comportement est non diffusif, comme prévu.

- **Fabrizio Croccolo**, Doriano Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Non-diffusive decay of gradient driven fluctuations in a free-diffusion process*. Phys. Rev. E, **76** 41112 (2007) ([→ web](#)).

- La diffusion est communément considérée comme un processus homogène à l'échelle mésoscopique, n'étant guidée que par les mouvements aléatoires de molécules du fluide. Au contraire des fluctuations très intenses de grande longueur d'onde accompagnent toujours les processus de diffusion. En présence de la gravité, les fluctuations d'un fluide contenant un gradient stabilisant sont affectées par deux procédés différents: la diffusion, qui les dissout et la force de flottabilité, qui les amortit. Ces phénomènes affectent à la fois l'amplitude globale des fluctuations et leur dépendance temporelle. Pour le cas de la diffusion libre, la fonction de corrélation temporelle des fluctuations de concentration est prévue être une décroissance exponentielle avec le temps de corrélation fonction du vecteur d'onde q . Pour les fluctuations de grand vecteur d'onde, la diffusion domine, et le temps de corrélation est prévu être $1/(Dq^2)$. Pour les fluctuations de petit vecteur d'onde, les forces gravitationnelles ont le temps de jouer un rôle important, et le temps de corrélation est prévu être proportionnelle à q^2 . Les effets de la gravité et de la diffusion sont comparables

pour un vecteur d'onde q_c critique déterminée par les propriétés des fluides et la gravité (voir Fig. 3.2). Nous avons utilisé une technique quantitative dit shadowgraph dynamique pour obtenir la fonction de corrélation temporelle d'un mélange de LUDOX® et d'eau en diffusion libre. Cette technique permet de mesurer simultanément la fonctions de corrélation avec une bonne statistique pour plusieurs vecteurs d'onde en même temps. Nous avons étudié des vecteurs d'onde aussi petits que 70cm^{-1} , ce qui est très difficile à obtenir avec les techniques dynamiques de diffusion de la lumière ordinaires. Nous présentons des résultats sur la transition du comportement diffusif des fluctuations au régime dans lequel la gravité est dominante.

- **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Effect of gravity on the dynamics of nonequilibrium fluctuations in a free-diffusion experiment*. Annals of the New York Academy of Sciences, **1077** 365 (2006) (\rightarrow web).

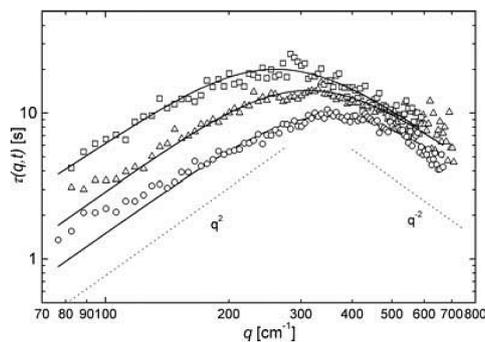


Figure 3.2 – Temps de corrélation τ en fonction du vecteur d'onde q .

- Nous avons utilisé une forme d'interférométrie Schlieren pour mesurer l'amplitude quadratique moyenne et la fonction d'autocorrélation temporelle des fluctuations de concentration entraînés par la présence d'un gradient pendant la diffusion libre d'une solution d'urée dans de l'eau. Après acquisition et traitement des séquences d'images séparées dans le temps le plus court de moins que le temps de corrélation d'intérêt, nous avons pu mesurer simultanément la dynamique à un certain nombre de différents vecteurs d'onde. La technique est très similaire à la méthode de shadowgraph, qui a été utilisé pour effectuer des mesures similaires, mais la méthode Schlieren a l'avantage que la fonction de transfert est vecteur d'onde indépendante plutôt que oscillatoire.

- **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Use of dynamic schlieren interferometry to study fluctuations during free diffusion*. App. Opt., **45** 2166 (2006) (\rightarrow web).

3.1.2 Perspectives

Le développement de l'algorithme dynamique différentiel (DDA) a permis d'utiliser le shadowgraph aussi bien que le Schlieren d'une façon dynamique. Cet algorithme est plus général et peut bien être appliqué à tout technique de visualisation pour retirer la fonction de corrélation temporelle des fluctuation du contraste optique. En plus cet algorithme est très robuste et puissante car il rejete automatiquement tous les contributions de mouvements bas fréquence qui, au contraire, ont un impact très négatif sur les algorithmes classiques de calcul de la fonction de corrélation temporelle. C'est pour ces raisons que il a été appliqué avec succès à la microscopie optique (Cerbino et Trappe, PRL 2008; Wilson et al., PRL 2011), à la technique 'Near Field Scattering' (Ferri et al., APL 2008), à la microscopie confocale

(Lu et al., PRL 2012). Avec cet algorithme on a pu mesurer pour la première fois la dynamique des fluctuations de non-équilibre dans le régime gravitationnel ce qui a posé les bases pour les expériences en micro-gravité de GRADFLEX (Vailati et Cannell).

Liste des publications afférentes aux activités doctorales

– Revues internationales à comité de lecture

2011

1. **Fabrizio Croccolo** and Dorian Brogioli. *Quantitative Fourier analysis of schlieren masks: the transition from shadowgraph to schlieren*. Appl. Opt., **50** 3419 (2011) ([→ web](#)).

2007

2. **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Non-diffusive decay of gradient driven fluctuations in a free-diffusion process*. Phys. Rev. E, **76** 41112 (2007) ([→ web](#)).

2006

3. **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Effect of gravity on the dynamics of non equilibrium fluctuations in a free diffusion experiment*. Annals of the New York Academy of Sciences, **1077** 365 (2006) ([→ web](#)).
4. **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Use of dynamic schlieren interferometry to study fluctuations during free diffusion*. App. Opt., **45** 2166 (2006) ([→ web](#)).

– Chapitres d'ouvrages scientifiques

2008

1. **Fabrizio Croccolo**, Roberto Cerbino, Alberto Vailati and Marzio Giglio. *Non-equilibrium fluctuations in diffusion experiments* in Anomalous fluctuation phenomena in complex systems: Plasmas, Fluids and Financial Markets. 2008: 185-210 ISBN: 978-81-308-0255-8 Editors: Claudia Riccardi and H. Eduardo Roman (Chapitre sur invitation) ([→ web](#)).

– Communications avec actes et sélection sur résumé

*Orateur

2005

1. **Fabrizio Croccolo***, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Effect of gravity on the dynamics of non equilibrium fluctuations in a free diffusion experiment – Congrès Interdisciplinary Transport Phenomena in Microgravity and Space Sciences IV, 7-12 août 2005, Tomar (PT)*. Actes engconfintl 2005, cdrom.

3.1. Résumé de la thèse d'université

2. **Fabrizio Croccolo***, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. Gravitational effects on the dynamics of non-equilibrium fluctuations in free diffusion processes – Congrès MMD-Meeting. Matter, Materials and Devices, 22-25 juin 2005, Genova (IT). Actes CNR 2005, cdrom.

2004

3. **Fabrizio Croccolo***, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. Dynamics of gradient driven fluctuations in a free diffusion process – Congrès Photon Correlation Spectroscopy, Optical Society of America, 16-18 août 2004, Amsterdam (NL). Actes OSA 2004, cdrom.

3.1.3 Mémoire de thèse

2006

1. **Fabrizio Croccolo**. Dynamics of Non Equilibrium Fluctuations in Free Diffusion. Université de Milano (IT), Jan. 2006. Anglais.

Chapter 4

Activités de recherches post-doctorales

Introduction

Après 5 ans de travail sur des thèmes expérimentaux je souhaitais appliquer mes compétences dans un contexte plus proche du monde industriel mais encore relié à la recherche. J'ai donc profité de la possibilité de changer de sujet et de rejoindre le LabEx PLASMAPROMETEO qui a pour but le transfert technologique vers le monde industriel de la technologie du plasma froid pour les traitements de surface des matériaux. Encadré par Mme C. Riccardi j'ai développé plusieurs sources de plasma pour des traitements différents. J'étais aussi l'utilisateur et le co-responsable d'un microscope à balayage électronique et ionique pour analyser les échantillons traités avec la technologie du plasma. En particulier, j'ai développé et étudié une source de plasma de type inductif, et j'ai étudié la transition entre les modes inductif et capacitif et les instabilités entre les deux. Les mesures expérimentales sur ce thème ont été effectuées dans le cadre du stage de Master de Mlle A. Quintini (co-encadré avec Mme C. Riccardi). On a aussi montré que la même source de plasma peut être utilisée pour la manipulation superficielle de matériaux plastiques pour obtenir une couche conductrice sur un matériau isolant qui donne des possibilités d'applications dans le secteur de la photovoltaïque organique.

Pendant mon doctorat j'avais suivi un cours de statistique avancée par M H.E. Roman que j'avais trouvé très intéressant, surtout pour les affinités entre les comportements de fluides et d'autres systèmes complexes, comme ceux étudiés par l'écono-physique ou la science du trafic. J'ai donc instauré une collaboration avec M H.E. Roman qui a conduit au développement d'un modèle à paramètre unique pour la génération des valeurs de titres de Bourse avec des corrélations croisées similaires à celles du marché réel. Plus tard on a aussi collaboré au développement d'un modèle de trafic dans des conditions de circulation très denses.

Pendant mon postdoc à l'Université de Milano-Bicocca j'ai eu aussi la possibilité de poursuivre mon intérêt pour les techniques optiques de diffusion de la lumière en champ proche par une collaboration avec le laboratoire du M F. Mantegazza du Département de Médecine. Dans le cadre de cette collaboration j'ai contribué au développement d'un nouvel algorithme pour l'utilisation des techniques optiques de manière dynamique qui permet d'analyser des temps caractéristiques très courts. Comme application de cet algorithme on a développé un dispositif spécifique pour des mesures à très grand angle (Tilted Laser Microscopy) avec lequel on a fait des mesures en champ proche de façon dépolarisée pour obtenir des informations sur des particules anisotropes. Plus tard on a développé une technique de diffusion de la lumière avec une source à cohérence longitudinale courte qui nous permet d'obtenir des informations de type diffusion de la lumière statique avec une source de lumière peu cohérente. Cette technique a aussi le grand avantage d'éliminer de façon spontanée la diffusion multiple de la lumière et est donc optimale pour des mesures de diffusion de la lumière sur des échantillons opaques.

Le milieu scientifique de la physique du plasma appliqué aux traitements de surface de matériaux ne

me paraissant pas suffisamment stimulant, j'avais aussi compris que mon intérêt scientifique était plutôt l'étude des fluides et des techniques optiques concernées. En plus je voulais avoir des expériences de recherche internationales. J'ai donc choisi d'aller à l'Université de Pau et des Pays de l'Adour dans le labo LFC pour faire des mesures sur l'effet Soret à haute pression et dans des milieux poreux avec une technique d'interférométrie sous la guide de M H. Bataller. Ces mesures ont pour but la compréhension du comportement de liquides de type pétrolier dans le gisement où les conditions de pression, de température, et de porosité sont responsables de la redistribution des hydrocarbures dans les roches. Il est donc indispensable de comprendre l'influence de différents paramètres sur le processus de diffusion et l'effet Soret. On a donc lancé une campagne de mesures pour comprendre comment le coefficient Soret change en fonction de la pression dans un milieu poreux. A l'époque aucune étude n'existait sur l'influence de la pression sur l'effet Soret, aussi car il est expérimentalement très compliqué de faire des expériences à des pressions de l'ordre de dizaines de MPa. La technique d'interférométrie exige aussi la connaissance préalable des facteurs de contraste des fluides à étudier. Etant donné que ces valeurs ne sont pas présentes dans la littérature, au début on a mesuré les facteurs de contraste de l'indice optique dans un mélange binaire en fonction de la pression, et on a montré une décroissance exponentielle avec la pression qui est, en partie, expliquée par la théorie de l'indice optique de Loyenga, extension de la théorie de Lorentz-Lorenz, mieux connue. Ensuite on a pu mesurer le coefficient Soret en fonction de la pression et on a montré une faible diminution de celui-ci en fonction de la pression. Nous avons aussi développé une méthode pour obtenir des informations sur le milieu poreux à partir de la mesure du coefficient Soret.

Mon intérêt pour les techniques optiques m'avait aussi motivé à présenter en 2009 un projet appelé « Dynamic Near Field Imaging (DyNeFI) » ou « Imagerie dynamique en champ proche » pour l'obtention d'une Bourse Marie Curie Intra European Fellowship. Ce financement consiste en une bourse postdoctorale pour réaliser le projet du candidat dans un laboratoire choisi au moment de la demande. Après des contacts avec le laboratoire « Soft Matter and Photonics » du M Scheffold à l'Université de Fribourg (CH) j'ai trouvé une bonne complémentarité entre mes compétences et ceux du M Scheffold et son groupe. En décembre 2009 j'ai obtenu le financement et donc en novembre 2010, tout après avoir terminé mon stage à Pau, j'ai rejoint l'Université de Fribourg pour ma deuxième expérience internationale. Dans le cadre de ce projet j'ai développé les techniques de diffusion de la lumière en champ proche pour des utilisations de type dynamique. L'algorithme dynamique différentiel qu'on utilise demande un gros travail au niveau computationnel car il passe par une analyse statistique d'un grand nombre d'images. On a donc travaillé sur l'implémentation d'un logiciel de nouvelle génération qui bénéficie du calcul parallèle aujourd'hui faisable sur des cartes graphiques (langage C++/ CUDA). A ce projet a participé un stagiaire d'été, Giovanni Cerchiari, que j'ai encadré. En appliquant la technique du Shadowgraph dynamique à l'étude des fluctuations hors équilibre nous avons démontré la possibilité de mesurer les propriétés de transport de mélanges liquides binaire, notamment nous avons pu mesurer le coefficient Soret aussi bien que le coefficient de diffusion massique pour trois mélanges de référence.

La technique du Shadowgraph est bien adaptée pour la visualisation des figures de convection qui s'installe dans un fluide lorsque le système est soumis à un stress thermique suffisamment élevé. Nous avons donc pu effectuer une étude sur l'effet d'une toute petite inclinaison sur la stabilité à long terme des figures de convection obtenues en chauffant par le bas un mélange binaire à 'separation ratio' positif. La petite inclinaison en effet n'impacte pas l'état convectif dans un premier temps, mais elle a des fortes conséquences si on attende plusieurs fois le temps diffusif de la cellule. A des temps longs, la petite inclinaison agit comme une rupture de symétrie additionnelle et modifie les figures de convection. Le système, pour des petites valeurs du numéro de Rayleigh solutale a une circulation unique avec la même taille que son contenant, donc une structure globale. Pour des valeurs plus élevée du numéro de Rayleigh solutale le système échange la chaleur sur des colonnes de fluide montants ou descendants, donc une structure locale. Pour une valeur très précise du numéro de Rayleigh solutale les deux structures

coexistent et les colonnes s'organisent et se disposent sur des lignes parallèles se déplaçant en directions opposées. Le mouvement de ces colonnes rappelle ce de voitures qui se déplacent en files opposées sur une autoroute, dont le nom de « Super-Highway Convection » ou SHC.

Après avoir complété mon projet DyNeFI j'ai eu l'opportunité de revenir à l'Université de Pau avec un support postdoc par le CNRS. J'ai donc intégré à nouveau l'équipe d'Anglet du LFCR où nous avons développé une cellule de thermodiffusion haute pression pour étendre la technique du Shadowgraph dynamique à des mesures en fonction de la pression. Avec l'aide d'un doctorant (M Cédric Giraudet) que j'ai co-encadré, nous avons donc mesuré les propriétés de transport d'un mélange liquide binaire en fonction de la pression jusqu'à 20MPa. Par le biais d'une collaboration avec le Pr Ortiz de Zárate de l'Universidad Complutense de Madrid nous avons développé la théorie des fluctuations de la concentration de hors d'équilibre au cas d'un mélange ternaire en absence de confinement et de gravité. J'ai aussi co-encadré un étudiant pour son stage de Licence 3 avec le Prof Vailati à l'Université de Milano (IT). Ses travaux ont permis d'étudier l'effet d'une petite inclinaison sur les patterns de convection obtenus en chauffant par le haut un mélange binaire à 'separation ratio' négatif. Dans ce cas, même si l'impact de l'inclinaison a été bien mis en évidence, aucun jeu des paramètres expérimentaux n'a pas évincé un pattern de convection similaire à la Super-Highway Convection.

Très récemment nous avons effectué plusieurs mesures pour déterminer l'effet du confinement sur la dynamique des fluctuations de hors équilibre. Ces mesures ont montré une concordance exceptionnelle avec les résultats de calculs théoriques aussi bien que de simulations issues d'une collaboration avec le Pr Ortiz de Zárate and Pr Aleksandar Donev de la Courant University de New York.

4.1 Développement de sources de plasma pour traitements de matériaux : Université de Milano-Bicocca (IT)

4.1.1 Contexte

Après mon Doctorat j'ai intégré le LabEx PLASMAPROMETEO sous la guide de Mme C. Riccardi pour le développement des sources de plasma froid pour des traitements de la surface des différents matériaux. Cette activité a été fortement expérimentale et a appuyé en partie sur le stage de Master d'un an de l'étudiante Mlle A. Quintini que j'ai co-encadré avec Mme Riccardi.

4.1.2 Verrous scientifiques

Le plasma est le quatrième état de la matière, considéré différent de l'état gazeuse pour le fait que les molécules en partie ionisées répondent aux sollicitations d'un champ électro-magnétique externe. Dans le cas des plasma froids la pourcentage des ions dans le plasma est très petite est donc le plasma a plusieurs caractéristiques typiques d'un gaz normal. Dans un plasma il y a beaucoup d'énergie disponible et donc il y a la possibilité d'effectuer des réactions chimie qui ne sont pas énergiquement possible dans l'état gaz. C'est bien pour cela qu'on parle d'une 'chimie du plasma' comme un sujet d'étude séparé de la chimie classique. Une utilisation possible de cette super-chimie est dans le domaine des traitements de matériaux. Le plasma est en fait idéal pour permettre des réactions chimie autrement interdites sur la surface d'un matériel en lui donnant des nouvelles propriétés de surface. Pour citer quelques exemples dans les laboratoire PLASMAPROMETEO on a développé des techniques pour rendre hydrophobes des tissus tels que le cuir, le marbre, le bois et beaucoup d'autres. Mes activités expérimentales ont porté sur le développement d'une source de plasma inductive et d'une source à micro-onde. La première a été utilisée pour la création d'une couche conductive sur un film polymérique pour des application dans le champ des panneaux photovoltaïques de nouvelle génération (eco-compatibles). La source micro-ondes a été utilisé pour la carbonisation d'un précurseur de la fibre de charbon comme possible alternative à la méthode classique de fabrication.

4.1.3 Actions

- Nous avons développé une source de plasma à induction en montant une antenne de 550cm de long en radio-fréquence (RF) autour d'une chambre à vide cylindrique en quartz (hauteur 40cm, diamètre 10cm, voir Fig.4.1) évacué par une pompe rotative à une pression résiduelle d'environ 0.1Pa. Le plasma est produit dans un flux de gaz à basse pression. Le travail expérimental à compris une phase de caractérisation de la source de plasma pour bien comprendre le couplage inductif entre l'antenne et le gaz, Ar en basse pression dans la gamme 10 à 100Pa. L'état de plasma a été caractérisé par des sondes de Langmuir et la spectroscopie d'émission optique pour relier les propriétés physiques du plasma aux modifications induits sur la surface. La source a été utilisée pour des traitements au plasma sur un film de PVC, afin d'obtenir une couche conductrice sur la surface du matériel. Nous rapportons un retrait préférentiel de chlore et une génération superficielle de liaisons doubles C = C. L'imagerie de la surface de l'échantillon avec un microscope FIB / SEM a révélé une conductivité partielle et la présence de groupements bidimensionnels de rayon moyen d'environ 200nm.

- **Fabrizio Croccolo**, Ruggero Barni, Stefano Zanini, A. Palvarini and Claudia Riccardi. *Material surface modifications with an inductive plasma*. Journal of Physics: Conference Series, **100** 62023 (2008) (→ web).

- On présente une étude détaillée de la polymérisation par greffage de phosphate de méthacrylate

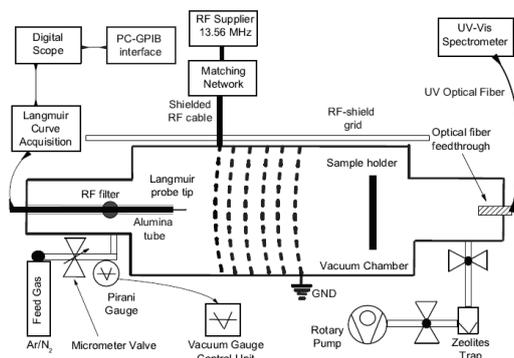


Figure 4.1 – Montage expérimentale de la source de plasma inductive

d'éthylène glycol (EGMP) sur des substrats de polyéthylène (PE) induit par un plasma d'argon. Le procédé comprend quatre étapes: (a) pré-activation de substrats de PE par plasma; (b) immersion dans une solution d'EGMP; (c) greffage-polymérisation induite par plasma d'argon; (d) lavage et séchage des échantillons. On étudie l'influence des paramètres de la solution et du plasma sur l'efficacité du procédé, évaluées en termes de quantité de polymère greffé et homogénéité de la couverture (voir Fig.4.2). Le greffage-polymérisation d'EGMP induite par plasma est étudié par des analyses de pondération de l'échantillon, des mesures d'angle de contact, de attenuated-total-reflection-infrared (ATR-IR) et de X-ray photoelectron spectroscopic (XPS). Enfin, on évalue les propriétés ignifuges des substrats du PE modifiés par de mesures d'indice limite d'oxygène (LOI). - Stefano Zanini, Claudia Riccardi, Marco Orlandi, Claudia Colombo and **Fabrizio Croccolo**. *Plasma-induced graft-polymerisation of ethylene glycol methacrylate phosphate on polyéthylène films*. *Polymer Degradation and Stability*, **93** 1158 (2008) (→ web).

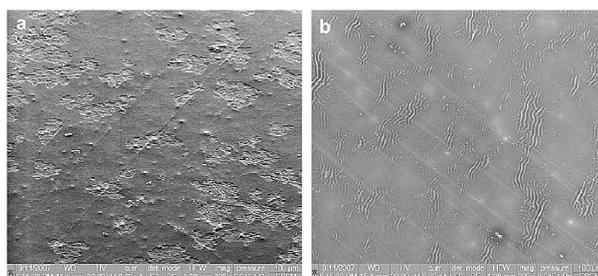


Figure 4.2 – Image FIB des surfaces de Polyéthylène (a) avant et (b) après le traitement plasma

- Une machine à plasma à couplage inductif a été modifiée pour appliquer des puissances de l'ordre de 1 kW, et fonctionner en modalité inductive (voir Fig.4.3). Le plasma est généré en appliquant une haute fréquence de 13,56 MHz à une antenne de $\lambda/4$ à l'extérieur de la chambre à plasma dans des conditions de basse pression. Le gaz de travail est l'argon à une pression comprise dans la gamme de 10 à 100 Pa. Avec cette source d'alimentation, nous avons effectué un traitement par plasma sur un film de PVC. En particulier, l'effet du plasma est l'élimination sélective de l'hydrogène et du chlore de la surface de l'échantillon. L'action du plasma de puissance élevée sur l'échantillon a été révélée être beaucoup plus efficace que celui de basse puissance. Des résultats similaires à ceux obtenus avec la machine de faible puissance à environ 300 W pendant 120 minutes, ont été

obtenus avec la source de haute puissance à environ 600 W pendant 30 min. La génération d'une couche superficielle conductrice et des doubles liaisons C = C ont été obtenus. Les échantillons ont été étudiés par spectroscopie ATR, microscopie FIB / SEM et mesures micro-électrique, qui ont révélé le changement en conductivité.

- **Fabrizio Croccolo**, Antonella Quintini, Ruggero Barni, M. Ripamonti, Antonio Malgaroli, and Claudia Riccardi **Fabrizio Croccolo**. *H-mode inductive coupling plasma for PVC surface treatment*. Eur. Phys. J. D, **54** 477 (2009) (\rightarrow web).



Figure 4.3 – Image de la machine à plasma inductif

- Une source de plasma à couplage inductif a été appliquée précédemment à un traitement de surface d'une matière plastique dans des conditions de puissance modérés. Dans ces conditions, le couplage entre l'antenne et le plasma est capacitif et est habituellement dénommé E-mode. La machine a été modifiée pour fonctionner à des puissances de travail jusqu'à 1 kW, fournissant ainsi un véritable couplage inductif, dite H-mode. Le plasma est généré en appliquant une haute fréquence de 13,56 MHz à une antenne $\lambda/4$ enroulée à l'extérieur d'un tube de quartz. La chambre à plasma est évacuée par une pompe rotative à environ 0,1 Pa et finalement alimentée en argon à des pressions de travail dans la gamme de 1 à 100 Pa. Dans le présent travail on étudie la transition de couplage du mode capacitif au mode inductif par des méthodes électriques et optiques. Les deux méthodes sont comparées, et les expériences montrent que la transition se produit à la diminution des niveaux de puissance dans la plage comprise entre 100 et 200 W, tandis que la pression est augmentée de 1 à 100 Pa. Le pourcentage de puissance qui est délivrée au plasma est étudiée aussi, et semble être proportionnelle à la puissance d'entrée.

- **Fabrizio Croccolo**, Antonella Quintini, Ruggero Barni, and Claudia Riccardi. *Transition between E-mode and H-mode in a cylindrical inductively coupled plasma reactor*. High Temp. Mat. Proc., **14** 119 (2010) (\rightarrow web).

4.1.4 Perspectives

Ces études ont permis au LabEx PLASMAPROMETEO de se doter d'une source de plasma froid inductive pour compléter la dotation de sources basse pression de l'équipe. Cette source a été caractérisé et nous avons montré la possibilité de son utilisation pour la création d'une couche conductive sur un film de poly(vinyl-chloride) (PVC). Ces résultats se sont montrés très promettant pour une utilisation industriel du plasma pour le traitement de matériaux plastiques.

4.2 Analyse des matériaux par microscopie à balayage électronique et ionique : Université de Milano-Bicocca (IT)

4.2.1 Contexte

Pendant ma permanence au LabEx PLASMAPROMETEO je me suis occupé de l'exécution des mesures de microscopie des matériaux traités par la technologie plasma par moi même ou par mes collègues. L'utilisation d'une telle machine n'étant pas simple, j'ai suivi une formation initiale de six mois par le Pr Marziale Milani du département de matériaux de l'Université de Milano-Bicocca et par le personnel de l'entreprise FEI. Le microscope FIB/SEM est en fait partagé entre les deux groupes de l'Université. J'ai travaillé régulièrement un jour par semaine ou plus sur cet appareil et j'ai analysé des dizaines d'échantillons. J'ai aussi effectué des expériences sur le fonctionnement du microscope et j'ai détecté l'effet miroir pour les ions et développé une méthode pour tester le fonctionnement d'un des détecteurs à l'intérieur du microscope.

4.2.2 Verrous scientifiques

Une des techniques modernes pour étudier la surface d'un matériel est la microscopie à balayage électronique permettant d'obtenir des informations spécifiques sur une couche d'épaisseur variable de tous les matériaux conductifs. L'idée de base est de balayer une faisceau d'électrons sur la surface d'un matériel et de mesurer les électrons qui sont ensuite diffusés. Les molécules du matériel interagissent avec les électrons du faisceau selon différents paramètres. Tout d'abord selon leur disposition spatiale, ce qui permet d'obtenir des images de la surface du matériel analysé. Dans le cadre du LabEx PLASMAPROMETEO l'analyse de la surface des matériaux avant et après traitement par plasma permet de mieux comprendre l'effet du traitement. L'utilisation du microscope a aussi emmené à la détection de certains phénomènes liés au fonctionnement du microscope même, surtout ce qu'on a baptisé 'effet miroir ionique'.

4.2.3 Actions

- En utilisant le faisceau ionique d'un microscope Focused Ion Beam (FIB) / Scanning Electron Microscopy (SEM) pour examiner des échantillons non conducteurs, on observe une image miroir très similaire à celle qui est couramment obtenue avec le faisceau d'électrons et le même échantillon. À notre connaissance, c'est la première observation de ce qui peut être appelé "Ion Mirror Effect". Cet effet est produit par une charge positive déposée sur l'échantillon par balayage d'un faisceau des ions de haute énergie (30 kV) et ultérieurement une formation d'image par des ions de faible énergie (5 kV). L'explication proposée est que d'abord une charge positive est emprisonnée dans l'échantillon et, éventuellement, les ions de faible énergie sont déviés par la charge et frappent la surface de la chambre du microscope d'une façon très similaire à ce qui se passe dans le "Electron Mirror Effect". L'image miroir est produite après la détection des électrons produits par l'interaction entre les ions et les matériaux de la chambre (voir Fig.4.4).
- **Fabrizio Croccolo**, and Claudia Riccardi **Fabrizio Croccolo**. *Observation of the ion-mirror effect during microscopy of insulating materials*. Journal of Microscopy, **229** 39 (2008) (→ web).
- Nous avons développé une technique permettant de tester le bon fonctionnement d'un détecteur d'électrons du type 'solid-state back-scattered electron detector' (SSBSD). La méthode prévoit l'utilisation d'un échantillon non conducteur pour pouvoir accumuler au préalable une charge sur lui d'une façon similaire à la procédure qu'on utilise pour obtenir une image 'miroir'. Ensuite un faisceau de basse énergie est envoyé sur l'échantillon et les électrons rétro-diffusés sont observés



Figure 4.4 – Effet miroir ionique : d’abord un matériel isolant est chargé positivement par balayage d’un faisceau des ions à haute énergie, ensuite il est observé par balayage de faisceau des ions à basse énergie. On obtient alors une image ‘miroir’ de la chambre du microscope

par le détecteur SSBSD.

- **Fabrizio Croccolo**, and Claudia Riccardi **Fabrizio Croccolo**. *Passive Mirror Imaging through a Solid-State Back-Scattered Electron Detector*. *Microscopy Today*, **16** 40 (2008) (→ web).

4.3 Techniques optiques de diffusion de la lumière dans le champ proche : Université de Milano-Bicocca (IT)

4.3.1 Contexte

Pendant mon postdoc à l'Université de Milano-Bicocca j'ai eu aussi la possibilité de poursuivre mon intérêt pour les techniques optiques de diffusion de la lumière en champ proche par une collaboration avec le laboratoire du M. F. Mantegazza du Département de Médecine. Dans le cadre de cette collaboration j'ai contribué au développement d'un nouvel algorithme pour l'utilisation des techniques optiques de manière dynamique qui permet d'analyser des temps caractéristiques très courts. Comme application de cet algorithme on a développé un dispositif spécifique pour des mesures à très grand angle (Tilted Laser Microscopy) avec lequel on a fait des mesures en champ proche de façon dépolarisée pour obtenir des informations sur des particules anisotropes. Plus tard on a développé une technique de diffusion de la lumière avec une source à cohérence longitudinale courte qui nous permet d'obtenir des informations de type diffusion de la lumière statique avec une source de lumière peu cohérente. Cette technique a aussi le grand avantage d'éliminer de façon spontanée la diffusion multiple de la lumière et est donc optimale pour des mesures de diffusion de la lumière sur des échantillons opaques.

4.3.2 Verrous scientifiques

Les techniques de diffusion de la lumière ont été utilisées dans les dernières décades dans une grande variété d'expériences allant du fondamental à la physique appliquée, à la matière molle et à la bio-physique. Les techniques de diffusion de la lumière en champ proche sont une famille de techniques optiques visant à fournir des informations équivalentes aux techniques classiques pour un large éventail des valeurs de vecteur d'onde, et d'échelles de temps. Le point clé de la technique est la capacité d'obtenir des informations par enregistrement de la lumière dans le champ proche par le biais d'une caméra pixelisée, ainsi effectuer une sorte d'imagerie de l'échantillon. Les données quantitatives sont finalement obtenues par une analyse statistique par des transformées de Fourier des images acquises, ce qui nécessite des algorithmes et de logiciels très efficaces. Applications quantitatives de cette famille ont été proposées dans la dernière décennie et comprennent Near Field Scattering, Shadowgraph et Schlieren étant utilisé pour les mesures quantitatives à la fois statique et dynamique. Les différentes techniques correspondent aux différents régimes de vecteur d'onde et exigent des set-ups optiques légèrement différents. Une des premières suggestions pour l'utilisation de cette technique pour des mesures dynamiques (DyNeFI) utilisé un algorithme dynamique différentiel sur des images shadowgraph, et a été suivi par une grande variété de set-ups optiques comprenant différentes sources de lumière cohérente allant de la lumière visible laser, à la lumière blanche, aussi bien qu'aux rayons X. Cet algorithme a été démontré d'être bien adapté pour les échantillons avec une dynamique lente (échelles de temps jusqu'à 0.01s) étant limitée par la fréquence d'acquisition du capteur CCD. Il se trouve que cela peut être facilement utilisé dans des expériences avec des gels, des transitions vitreuses, des systèmes arrêtés de macromolécules, des dispersions, des vésicules ou des dispersions, ou des fluctuations de grand taille. Le grand avantage d'un instrument de champ proche par rapport aux machines DLS classiques est la possibilité de mesurer de nombreux vecteurs d'onde (ordre de 10^3 valeurs différentes du module de vecteur d'onde) avec d'excellentes statistiques (10^3 échantillons indépendants pour chaque vecteur d'onde) d'un seul coup, ainsi ouvrant la possibilité d'étudier les systèmes non-ergodiques. Un autre avantage remarquable est l'immunité complète aux problèmes de lumière parasite ('stray light') et la capacité de fournir des mesures absolues sans effectuer de mesures d'étalonnage.

4.3.3 Actions

- Les techniques de diffusion de la lumière en champ proche constituent une famille des techniques de diffusion en pleine expansion. On a récemment démontré qu'ils sont appropriées pour effectuer des mesures dynamiques. Nous rapportons ici un algorithme, d'abord suggéré par Oh et al. (Phys. Rev. E 69, 21106 (2004)), sur la base de l'évaluation du spectre en fonction du temps d'exposition (ETDS, voir Fig.4.5), ce qui permet de mesurer la dynamique rapide d'une suspension colloïdale à l'aide d'un simple appareil de diffusion de la lumière en champ proche et d'une caméra CCD à basse vitesse d'acquisition. L'algorithme consiste à acquérir des spectres statique en champ proche à différents temps d'exposition, de sorte que les temps de décroissance mesurés sont limitées par la durée d'exposition de la caméra et non pas par son débit d'images. Le montage expérimental est basé sur un microscope modifié, où la lumière diffusée dans le champ proche est recueillie par un objectif commercial, mais (contrairement aux microscopes classiques) la source lumineuse est un laser He-Ne, augmentant la sensibilité de l'instrument. L'appareil et l'algorithme ont été validés sur des systèmes modèles de nano-particule sphérique standard de taille entre 80 et 400nm.
 - Doriano Brogioli, **Fabrizio Croccolo**, Valeria Cassina, Domenico Salerno and Francesco Mantegazza. *Nano-particle characterization by using Exposure Time Dependent Spectrum and scattering in the near field methods: how to get fast dynamics with low-speed CCD camera*. Optics Express, **16** 20272 (2008) (→ web).

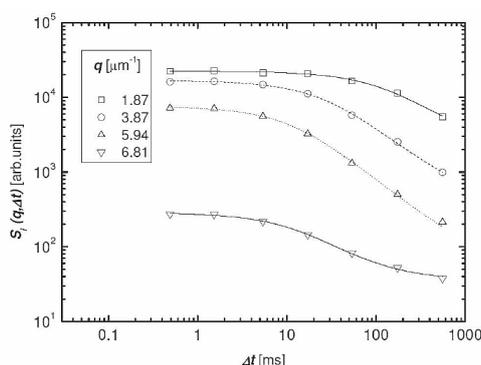


Figure 4.5 – Spectres des fluctuations de densité en fonction du temps d'exposition pour quatre valeurs du vecteur d'onde

- Les techniques de diffusion de la lumière sont largement utilisés dans de nombreux domaines de la physique de la matière molle. Habituellement, ces procédés sont basés sur l'étude de la lumière diffusée dans le champ lointain. Récemment, une nouvelle famille de systèmes de détection en champ proche a été développée principalement pour l'étude de la diffusion de la lumière à petit angle. Ces techniques sont basées sur la détection de l'intensité lumineuse à proximité de l'échantillon, où la lumière diffusée dans des directions différentes se mélange, mais peut être distinguée par transformée de Fourier. Nous rapportons ici les premières mesures de diffusion de la lumière dynamique en champ proche obtenant à la fois la lumière polarisée et dépolarisée. Entre les avantages de cette procédure sur la détection traditionnelle en champ lointain, on cite : l'immunité aux problèmes de 'stray light' et la possibilité d'obtenir un grand nombre d'échantillons statistiques pour de nombreux vecteurs d'onde différentes en une seule mesure instantanée. En utilisant la technique proposée, nous avons mesuré les coefficients de diffusion de translation et de rotation des particules colloïdales en forme de tige. Les données obtenues sont en très bon accord avec les données acquises avec un appareil traditionnel de diffusion de la lumière.

- Dorian Brogioli, Domenico Salerno, Valeria Cassina, Stefano Sacanna, Albert A. Philipse, **Fabrizio Croccolo** and Francesco Mantegazza. *Characterization of anisotropic nano-particles by using depolarized dynamic light scattering in the near field*. Optics Express, **17** 1222 (2009) (→ web).

- Quand un faisceau laser cohérent passe par un échantillon aléatoire (par exemple une suspension colloïdale), la lumière diffusée présente des taches caractéristiques nommées 'speckles'. Si la cohérence temporelle de la source lumineuse est trop court, les taches disparaissent, et on perd la possibilité d'effectuer une détection homodyne ou hétérodyne ou de la spectroscopie à corrélation de photons. Ici, nous étudions la dispersion d'un soi-disant «faisceau à cohérence inclinée», à savoir un faisceau court cohérence modifié de telle sorte que le champ est cohérente à l'intérieur de dalles qui sont inclinées par rapport aux fronts d'onde (voir Fig.4.6). Nous montrons qu'un tel faisceau génère des taches 'speckle' et peut être utilisé pour la détection hétérodyne, en dépit de sa cohérence temporelle courte. En outre, nous montrons que le signal hétérodyne n'est pas affectée par la diffusion multiple. Nous suggérons que le phénomène présenté ici peut être utilisé comme un moyen de réaliser des mesures de diffusion hétérodyne avec tout rayonnement court cohérence, y compris les rayons-X.

- Dorian Brogioli, Domenico Salerno, **Fabrizio Croccolo**, Roberto Ziano and Francesco Mantegazza. *Speckles generated by skewed, short-coherence light beams*. New J. Phys., **13** 123007 (2011) (→ web).

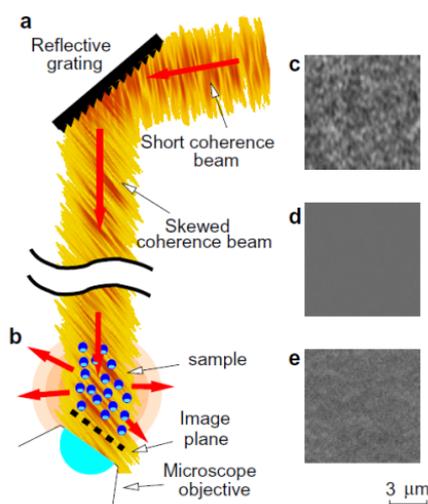


Figure 4.6 – Représentation schématique du dispositif expérimental.

- La technique 'Photon correlation spectroscopy' (PCS) est basé sur la mesure de la corrélation temporelle de l'intensité de la lumière diffusée par l'échantillon étudié. Une configuration typique nécessite une source de lumière cohérente temporellement. Ici, nous montrons que une source de lumière à court cohérence peut être utilisé aussi bien, à condition que ses propriétés de cohérence sont convenablement modifiées. Il en résulte une «faisceau à cohérence inclinée» permettant de rétablir les exigences de cohérence. Cette approche permet de surmonter la nécessité du filtrage de faisceau, qui réduit fortement sa luminosité totale.

- Domenico Salerno, Dorian Brogioli, **Fabrizio Croccolo**, Roberto Ziano and Francesco Mantegazza. *Photon correlation spectroscopy with incoherent light*. Opt. Expr., **19** 26416 (2011) (→ web).

4.4 Statistiques avancés : Université de Milano-Bicocca (IT)

4.4.1 Contexte

Depuis mon Doctorat j'ai développé une collaboration avec M Eduardo H. Roman, un expert sur les thèmes de la statistique avancée. Ensemble nous avons développé un étude sur les corrélations entre les titres de la bourse aussi bien que un modèle qui simule le comportements des véhicules dans une situation de circulation à densité très élevée. Ce modèle décrit très bien les fluctuations de la vitesse des voitures aussi bien que le phénomène appelé 'stop-and-go' facilement visible dans de condition de circulation importante.

4.4.2 Actions

- On propose un modèle simple pour simuler les corrélations croisées d'un marché de nombreux titres de bourse. Les corrélations entre titres sont initialement considérés dans le contexte d'un modèle à un paramètre, dans lequel est présent un terme dominant à tous les titres. Les résultats sont comparés à ceux des données réelles du marché correspondant à un ensemble de 445 titres issues de l'index Standard and Poors 500. Le modèle est ensuite développé en introduisant une volatilité stochastique au sein de chaque série temporelle en utilisant un schéma auto-régressif. Ce marché artificiel reproduit les queues épaisses observées empiriquement dans la fonction de distribution des variations de prix logarithmiques et, plus important, conduit à des corrélations croisées supplémentaires entre la série chronologique, en meilleur accord avec le comportement réel du marché (voir Fig.4.7).

- H. Eduardo Roman, Mattia Albergante, Marco Colombo, **Fabrizio Croccolo**, Francesco Marini and Claudia Riccardi. *Modeling cross-correlations within a many-assets market*. Phys. Rev. E, **73** 36129 (2006) (→ *web*).

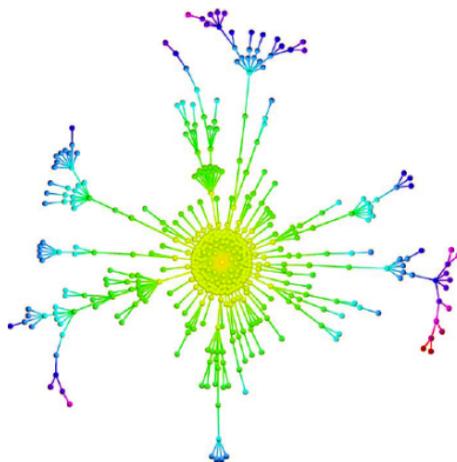


Figure 4.7 – Graphe-arbre des corrélations de titre artificiels généré par le modèle à un paramètre.

- Nous revisitons un modèle de voiture simple, en l'adaptant pour simuler la dynamique de la circulation à haute densité. Des simulations dans l'espace continué et temps discret sont présentés pour le cas d'une seule voie de circulation, en utilisant des conditions aux bords périodiques. Les paramètres du modèle sont extraites de données empiriques pour la vitesse moyenne des voitures

en fonction de la densité pour des densités plus élevées que 50 véhicules par kilomètre. L'évolution temporelle de l'ensemble des voitures est étudié après différents types de perturbations aléatoires produisant de fortes fluctuations de vitesse dans tous les cas, ce dernier caractérisé par des fonctions de distribution de probabilité présentant des queues épaisses. Nous essayons ensuite d'étudier le phénomène de 'stop-and-go' tout au long de la voie en absence de perturbations en supposant une vitesse de coupure d'arrêt, et de trouver le comportement résultant de l'ensemble à la fois dans l'espace et le temps.

- H. Eduardo Roman, **Fabrizio Croccolo** and Claudia Riccardi. *Extreme fluctuation events in a simple high-density traffic model*. *Physica A*, **387** 5575 (2008) ([→ web](#)).

4.5 Mesures des propriétés de transport des mélanges binaires par interférométrie : Université de Pau et des Pays de l'Adour (FR)

4.5.1 Contexte

Le milieu scientifique de la physique du plasma appliqué aux traitements de surface de matériaux ne me paraissant pas suffisamment stimulant, j'avais aussi compris que mon intérêt scientifique était plutôt l'étude des fluides et des techniques optiques concernées. En plus je voulais avoir des expériences de recherche internationales. J'ai donc choisi d'aller à l'Université de Pau et des Pays de l'Adour dans le laboratoire LFCR pour faire des mesures sur l'effet Soret à haute pression et dans des milieux poreux avec un technique d'interférométrie sous la guide de M H. Bataller. Ces mesures aient pour but la compréhension du comportement de liquides de type pétrolier dans le gisement où les conditions de pression, de température, et de porosité sont responsables de la redistribution des hydrocarbures dans les roches. Il est donc indispensable de comprendre l'influence de différents paramètres sur le processus de diffusion et l'effet Soret. On a donc lancé une campagne de mesures pour comprendre comment le coefficient Soret change en fonction de la pression dans un milieu poreux. A l'époque aucune étude n'existait sur l'influence de la pression sur l'effet Soret, aussi car il est expérimentalement très compliqué de faire des expériences à des pressions de l'ordre de dizaines de MPa. La technique d'interférométrie exige la connaissance préalable des facteurs de contraste optiques des fluides à étudier. Étant donné que ces valeurs ne sont pas présentes dans la littérature, d'abord nous avons mesuré les facteurs de contraste de l'indice optique dans un mélange binaire en fonction de la pression, et nous avons montré une décroissance exponentielle avec la pression qui est, en partie, expliquée par la théorie de l'indice optique de Loyenga, extension de la théorie de Lorentz-Lorenz, mieux connue. Ensuite on a pu mesurer le coefficient Soret en fonction de la pression et on a montré une faible diminution de celui-ci en fonction de la pression. Nous avons aussi développé une méthode pour obtenir des informations sur le milieu poreux à partir de la mesure du coefficient Soret.

4.5.2 Verrous scientifiques

Les phénomènes de diffusion sont des mécanismes de transport omniprésents dans la nature et jouent un rôle clef dans différents processus industriels. La diffusion isotherme de masse est sans doute le mécanisme de transport le mieux connu et compris, les équations ayant été établies au milieu du 19^{ème} siècle et son interprétation microscopique datant du début du 20^{ème} siècle. Tout aussi important mais bien moins connue est la thermodiffusion, qui a lieu quand un mélange fluide est soumis à un gradient de température. Lorsqu'un gradient de température est appliqué à un mélange homogène, il s'ensuit un flux de masse, produisant une séparation des composés. Même si la thermodiffusion, nommée aussi effet Soret, a été découverte il y a plus de 150 ans, la compréhension fondamentale du phénomène n'est pas complète de nos jours. Différents modèles existent, mais il n'y a pas une théorie unifiée qui prédise la valeur des coefficients de thermodiffusion pour des mélanges multiconstituants ou des suspensions colloïdales, ni même le signe qui peut changer en fonction de différents paramètres. Cette lacune est en partie attribuable à une manque de données expérimentales, particulièrement pour des mélanges ternaires.

Les mesures des coefficients de thermodiffusion et Soret nécessitent (parfois) un environnement absent de convection afin de ne pas produire des mouvements collectifs qui affectent la mesure. L'essentiel des données expérimentales a été établi jusqu'à maintenant sur des mélanges binaires, compte tenu des techniques expérimentales disponibles de nos jours. De même, ces systèmes sont plus simples à traiter d'un point de vue de l'analyse comme pour la modélisation. Cependant, beaucoup de mélanges liquides d'intérêt scientifique ou technologique, comme le pétrole ou les fluides biologiques, se composent de plus

de deux constituants. Compte tenu de degrés de liberté supplémentaires, les mélanges multiconstituants sont beaucoup plus compliqués à traiter que des binaires. Avec l'objectif à long terme de comprendre la thermodiffusion de mélanges multiconstituants, un nombre d'études sur des mélanges ternaires a été réalisé très récemment. Ces résultats restent rares et pas toujours en accord. Pour cette raison, le projet DCMIX (Diffusion Coefficients in ternary MIXtures) a été mis au point pour établir des valeurs de coefficients de diffusion et de thermodiffusion de mélanges ternaires de référence pour développer les théories et les modèles numériques. Le projet DCMIX provient de la fusion des propositions AO-2009-858 et AO-2009-1056 faites lors des appels à projet de l'ESA de novembre 2009 dans la thématique « Physique des Fluides et Sciences des Matériaux ». Il a pour objectifs le développement des techniques expérimentales pour mesurer les propriétés de transport de mélanges ternaires et l'application de ces techniques sur des liquides de référence pour des expériences à bord de l'ISS, grâce à l'équipement SODI, afin de bénéficier d'un environnement absent de convection, (par interférométrie optique, l'analyse des cinétiques et des amplitudes des variations des indices de réfraction dans les échantillons permet d'obtenir les valeurs des coefficients recherchés). Dans ce projet plusieurs campagnes de mesures sont prévues. Les expériences DCMIX1 et DCMIX2 ont déjà eu lieu. Les mélanges de DCMIX3 sont en attente d'être livrés à bord de l'ISS suite à l'accident d'Orbital-3. Les mélanges pour l'expérience DCMIX4 sont en cours de discussion par le Topical Team « Diffusion in non-metallic mixtures » de l'ESA, et dont le LFCR de l'UPPA fait partie. Dans le cadre du projet DCMIX l'équipe animé par H Bataller a le but d'effectuer des mesures des coefficients des transport des mélanges binaires dans de conditions dites 'de gisements', c'est-à-dire haute pression et dans des milieux poreux. C'est bien pour cela que en 2008 M Bataller a développé une cellule haute pression pour faire des mesure d'interférométrie pour lesquelles il avait obtenu un financement qui a permis de me recruter en 2009 avec un support postdoc d'un an intégré par une subvention de l'ESA.

4.5.3 Actions

- Nous présentons une technique pour déterminer la valeur de la tortuosité d'un milieu poreux en effectuant une expérience de séparation dans une cellule de thermodiffusion. Une différence de température est appliqué à un mélange binaire dans un milieu poreux tandis que son indice de réfraction est mesuré au moyen d'une interféromètre Mach-Zehnder. L'indice de réfraction présente une variation rapide due au gradient thermique et une plus lente en raison de la séparation provoquée par l'effet Soret. Ainsi, nous sommes en mesure de déduire le coefficient de diffusion de masse de l'échantillon D^* dans le milieu poreux. En connaissant la valeur du coefficient de diffusion dans le milieu libre D et la simple relation entre les deux valeurs $D^* = D/\tau$, nous pouvons calculer la tortuosité du milieu poreux. Des essais expérimentaux sur deux échantillons distincts montrent un bon accord dans les deux valeurs mesurées, mais aussi que la diffusion dans un volume qui est en partie libre et en partie remplie d'un milieu poreux n'est pas bien décrite par notre formule théorique.
- **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Gilles Pijaudier-Cabot. *Determination of the Tortuosity of a Porous Medium by Means of A Thermodiffusion Cell*. AIP Conf. Proc., **1254** 157 (2010) (\rightarrow web).
- Dans le présent travail des mélanges binaires de concentrations variables de deux hydrocarbures miscibles, 1,2,3,4-tétrahydronaphtalène (THN) et de n-dodécane (n-C12), sont soumis à une pression croissante allant jusqu'à 50MPa afin d'étudier la dépendance de que l'on appelle le facteur de contraste de concentration (CF), à savoir, $(\partial n/\partial c)_{p,T}$, en fonction de la pression. L'indice de réfraction est mesuré à l'aide d'un interféromètre de Mach-Zehnder. L'installation et la procédure expérimentale sont validés avec différents fluides purs dans la même gamme de pression. L'indice de réfraction du mélange THN-n-C12 varie à la fois en fonction de la pression et de la

concentration. Le CF est trouvé diminuer de façon exponentielle lorsque la pression est augmentée (voir Fig.4.8). Les valeurs mesurées de l'indice de réfraction et les CF de concentration sont comparés avec les valeurs obtenues par deux prédictions théoriques différents, la formule bien connue de Lorentz-Lorenz et une alternative proposé par Looyenga. Alors que les indices de réfraction mesurés conviennent très bien avec les prévisions données par Looyenga, les CF de concentration mesurées montrent des écarts de ce dernier de l'ordre de 6% et plus du double pour les prédictions de Lorentz-Lorenz.

- **Fabrizio Croccolo**, M.-A. Arnaud, Didier Begué and Henri Bataller. *Concentration dependent refractive index of a binary mixture at high pressure*. J. Chem. Phys., **135** 34901 (2011) (\rightarrow web).

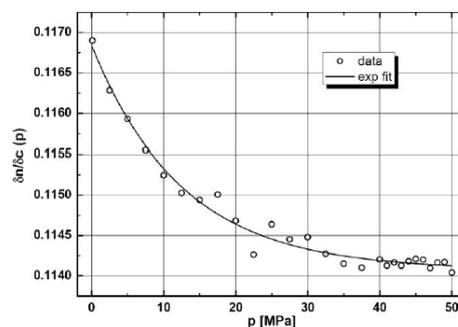


Figure 4.8 – Facteur de contraste optique de concentration en fonction de la pression.

- Une cellule de thermodiffusion est développée pour réaliser des expériences sur des mélanges binaires Soret à haute pression et en présence d'un milieu poreux. La cellule est validée par la réalisation d'expériences à la pression atmosphérique. Les expériences sont effectuées en appliquant des gradients de température à des mélanges binaires en vue de déterminer leur facteur de contraste optique thermique. Ces mesures fournissent une première démonstration de la bonne reproductibilité de ce type de mesures après étalonnage.

- **Fabrizio Croccolo**, Frédéric Plantier, Guillaume Galliero, Gilles Pijaudier-Cabot, M.Z. Saghir, Frank Dubois, Stefan Van Vaernbergh, François Montel and Henri Bataller. *Note: Temperature derivative of the refractive index of binary mixtures measured by using a new thermodiffusion cell*. Rev. Sci. Instrum., **82** 126105 (2011) (\rightarrow web).

- Une cellule de thermodiffusion est utilisée pour effectuer des expériences Soret sur des mélanges binaires à haute pression et en présence d'un milieu poreux. La cellule est validée à la pression atmosphérique avec des mélanges toluène / hexane et tétrahydronaphtalène / dodécane. La séparation de masse suit un comportement de diffusion lorsque la cellule est remplie d'un milieu poreux. Au moins trois fois le temps de relaxation est nécessaire pour avoir une bonne estimation des coefficients Soret. La tortuosité du milieu poreux a été évaluée à l'état transitoire de la séparation de masse et en utilisant des valeurs acceptées du coefficient de diffusion. Enfin, des expériences à haute pression ont été réalisées avec le système tétrahydronaphtalène / dodécane. Dans ces expériences, une diminution du coefficient Soret et de la tortuosité du milieu poreux ont été mesurées en fonction de la pression.

- Cédric Giraudet, **Fabrizio Croccolo**, Guillaume Galliero, Gilles Pijaudier-Cabot, Stefan Van Vaernbergh, M.Z. Saghir, François Montel and Henri Bataller. *Thermodiffusion of the tetrahydronaphthalene and dodecane mixture under high pressure and in porous medium*. Comptes Rendus Mécanique, **341** 340 (2013) (\rightarrow

web).

4.5.4 Perspectives

Le laboratoire LFCR fait aussi partie du projet SCCO et a été choisi pour coordonner la mission internationale SCCO/SJ10 (coopération ESA/CNSA). L'objectif est d'étudier, en condition de microgravité et sous haute pression, la thermodiffusion de 3 mélanges ternaires "académiques" et de 3 mélanges d'intérêt pétrolier. Les partenaires industriels de cette mission sont TOTAL et PetroChina. La mission a démarré en septembre 2014 et pour une durée de 3 ans. Le LFCR a le privilège de coordonner l'ensemble des mesures au sol à effectuer pour comparaison et validation des mesures en microgravité. Récemment nous avons montré que l'étude de la diffusion dynamique de la lumière des fluctuations de non équilibre (NEFs) du champ de concentration établi par effet Soret, permet d'obtenir, avec grande précision les coefficients de diffusion de masse et Soret de mélanges binaires. , Nous avons effectué ce travail avec un montage de shadowgraphie dans lequel nous avons positionné une cellule de thermodiffusion adaptée. Par ces travaux, nous avons montré que l'analyse dynamique des NEFs est une technique de choix pour l'étude de l'effet Soret. L'avantage principal de cette technique est qu'elle ne nécessite pas la mesure préalable des facteurs de contrastes optiques des mélanges, à la différence des autres techniques optiques. Plus récemment nous avons développé une cellule de thermodiffusion haute pression en milieu libre pour pouvoir étudier l'effet Soret en fonction de la pression par la même technique expérimentale.

4.6 Mesures des propriétés de transport des mélanges binaires par diffusion de la lumière dynamique : Université de Fribourg (CH)

4.6.1 Contexte

Mon intérêt pour les techniques optiques m'avais aussi motivé à présenter en 2009 un projet appelé « Dynamic Near Field Imaging (DyNeFI) » ou « Imagerie dynamique en champ proche » dans le cadre du FP7 de la communauté européenne pour l'obtention d'une Bourse Marie Curie Intra European Fellowship. Ce financement consiste en une bourse postdoctorale pour réaliser le projet du candidat dans un laboratoire choisi au moment de la demande. Après des contacts avec le laboratoire « Soft Matter and Photonics » du M Scheffold à l'Université de Fribourg (CH) j'ai trouvé une bonne complémentarité entre mes compétences et ceux du M Scheffold et son groupe. En décembre 2009 j'ai obtenu le financement et donc en novembre 2010, tout après avoir terminé mon stage à Pau, j'ai rejoint l'Université de Fribourg pour ma deuxième expérience internationale. Dans le cadre de ce projet j'ai développé les techniques de diffusion de la lumière en champ proche pour des utilisations de type dynamique.

L'algorithme dynamique différentiel qu'on utilise demande un gros travail au niveau computationnel car il passe par une analyse statistique d'un grand nombre d'images (de l'ordre de 10Go). On a donc travaillé sur l'implémentation d'un logiciel de nouvelle génération qui bénéficie du calcul parallèle aujourd'hui faisable sur des cartes graphiques (langage C++/ CUDA). A ce projet a participé un stagiaire d'été, Giovanni Cerchiari, que j'ai encadré. En appliquant la technique du Shadowgraph dynamique à l'étude des fluctuations hors équilibre nous avons démontré la possibilité de mesurer les propriétés de transport de mélanges liquides binaire, notamment nous avons pu mesurer le coefficient Soret aussi bien que le coefficient de diffusion massique pour trois mélange de référence en collaboration avec M H. Bataller du LFCR.

4.6.2 Verrous scientifiques

Pendant mon période à l'Université de Fribourg (CH) j'ai développé l'idée de mesurer les propriétés de transport des mélanges binaires par un étude des fluctuations de non équilibre de la concentration par ombroscopie dynamique. Les fluctuations de la concentration dans de conditions de non équilibre deviennent corrélées à grande échelle est très intense. De plus leur dynamique peut être caractérisée très finement en étudiant la fonction de corrélation temporelle en fonction du vecteur d'onde q , comme on le peut faire par ombroscopie dynamique ou on sépare les différents vecteurs par analyse de Fourier des images. La technique à été développée pendant mon Doctorat et grâce à cela nous avons pu observer le comportement diffusif des fluctuations de petite taille aussi bien que le comportement des fluctuations plus grandes guidé par la gravité. Par le premier on peut en déduire le coefficient de diffusion de masse du mélange, et par le deuxième on peut en déduire le coefficient Soret du mélange. Cette application des techniques optiques de champ proche comme l'ombroscopie dynamique est un des buts de mon projet Marie Curie DyNeFI.

4.6.3 Actions

- Nous présentons une implémentation de l'analyse des données dynamiques de diffusion en champ proche (NFS) en utilisant un processeur graphique. Nous introduisons un système de gestion de données optimisé limitant ainsi le nombre d'opérations nécessaires. Dans l'ensemble, nous réduisons le temps de traitement de quelques heures à quelques minutes, pour des conditions expérimentales typiques (voir Fig.4.9). Le temps de traitement, qui était auparavant l'étape limitante dans ces expériences, est actuellement comparable au temps d'acquisition de données. Notre approche est applicable à diverses méthodes NFS dynamiques, y compris shadowgraph, Schlieren et

microscopie dynamique différentielle.

- Giovanni Cerchiari, **Fabrizio Croccolo**, Frédéric Cardinaux and Frank Scheffold. *Note: Quasi-real-time analysis of dynamic near field scattering data using a graphics processing unit.* Rev. Sci. Instrum., **83** 106101 (2012) (\rightarrow web).

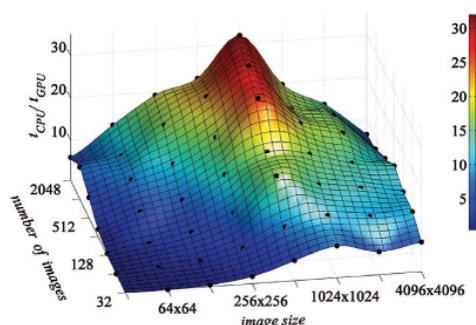


Figure 4.9 – Accélération du calcul par carte graphique GPU

- Nous utilisons la diffusion dynamique de la lumière en champ proche pour mesurer la dynamique de fluctuations de non d'équilibre de la concentration à l'état stationnaire de la séparation Soret (voir Fig.4.10). L'analyse révèle que au-dessus d'un vecteur d'onde de seuil q_c , la dynamique est pilotée par la diffusion tandis que pour tout vecteurs d'onde plus petites, la gravité domine. A partir des mesures, nous extrayons le coefficient de diffusion de masse et Soret. La comparaison de nos résultats avec la littérature donne un bon accord confirmant que la technique expérimentale peut être considéré comme une bonne approche pour l'étude des processus de thermodiffusion.
 - **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *A light scattering study of non equilibrium fluctuations in liquid mixtures to measure the Soret and mass diffusion coefficient.* J. Chem. Phys., **137** 234202 (2012) (\rightarrow web).

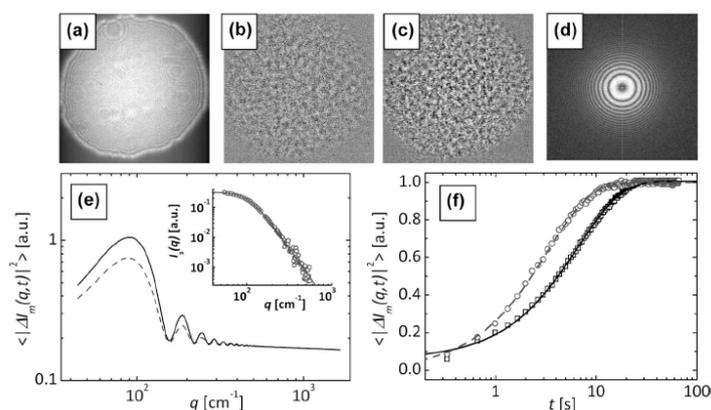


Figure 4.10 – Schéma d'analyse des données par ombroscopie dynamique avec algorithme DDA

- Nous présentons des résultats préliminaires de diffusion de la lumière en champ proche (NFS) concernant l'analyse du spectre de puissance statique et le temps de relaxation en fonction du vecteur d'onde pour des fluctuations de non-équilibre (NEF). Le but de ces mesures est d'obtenir

des informations sur les coefficients Soret et de diffusion de masse d'un mélange binaire pendant un processus de thermodiffusion. En particulier, nous montrons comment l'interaction entre les fluctuations et la force de gravité donne lieu à une longueur d'onde critique qui fournit des informations supplémentaires sur le coefficient Soret. Nous suggérons que l'analyse quantitative peut être réalisée au moyen de cette technique optique non invasif. Dans notre installation, l'échantillon est observé parallèlement au gradient de température imposée, étant ainsi insensible à un profil d'indice de réfraction le long de l'axe vertical, tandis que dans le même temps, nous sommes en mesure de détecter la lumière diffusée par les fluctuations de l'indice de réfraction dans des plans horizontaux. Nous utilisons l'ombroscopie en raison des très petits vecteurs d'onde que nous visons à analyser. À partir d'une analyse différentielle des images acquises, on obtient à la fois le spectre de puissance statique et la dynamique des NEFs. Comme expérience preuve de principe, nous présentons des mesures des coefficient de diffusion de masse et Soret sur un mélange liquide de tétrahydronaphtalène / n-dodécane.

- **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Henri Bataller. *Mass transport properties of the tetrahydronaphthalene/n-dodecane mixture measured by investigating non-equilibrium fluctuations*. *Comptes Rendus Mécanique*, **341** 378 (2013) (→ *web*).

4.7 La convection dans une couche fluide inclinée ; « Super Highway Convection » : Université de Fribourg (CH)

4.7.1 Contexte

La technique du Shadowgraph est bien adaptée pour la visualisation des figures de convection qui s'installe dans un fluide lorsque le système est soumis à un stress thermique suffisamment élevé. Avec le même système optique utilisé pour les mesures de thermodiffusion, nous avons pu effectuer aussi une étude sur l'effet d'une toute petite inclinaison sur la stabilité à long terme des figures de convection obtenues en chauffant par le bas un mélange binaire à 'separation ratio' positif. La petite inclinaison en effet n'impacte pas l'état convectif dans un premier temps, mais elle a des fortes conséquences si on attende plusieurs fois le temps diffusif de la cellule. A des temps longs, la petite inclinaison agit comme une rupture de symétrie additionnelle et modifie les figures de convection. Le système, pour des petites valeurs du numéro de Rayleigh solutale montre une circulation unique avec la même taille que son conteneur, donc une structure globale. Pour des valeurs plus élevées du numéro de Rayleigh solutale le système échange la chaleur sur des colonnes de fluide montants ou descendants, donc une structure locale. Pour une valeur très précise du numéro de Rayleigh solutale les deux structures peuvent coexister et les colonnes s'organisent et se disposent sur des lignes parallèles se déplaçant en directions opposées. Le mouvement de ces colonnes rappelle ce de voitures qui se déplacent en files opposées sur une autoroute, dont le nom de « Super-Highway Convection » ou SHC. J'ai aussi co-encadré un étudiant pour son stage de Licence 3 avec le Prof Vailati à l'Université de Milano (IT). Ses travaux ont permis d'étudier l'effet d'une petite inclinaison sur les patterns de convection obtenus en chauffant par le haut un mélange binaire à 'separation ratio' négatif. Dans ce cas, même si l'impact de l'inclinaison a été bien mis en évidence, aucun jeu des paramètres expérimentaux n'a pas permis d'obtenir un pattern de convection similaire à la Super-Highway Convection.

4.7.2 Verrous scientifiques

Les mouvements collectifs sont présents partout dans la nature et ils sont très utilisés dans les activités industrielles. Un fluide isotherme et homogène à l'état d'équilibre montre une vitesse moyenne des particules égale à zéro et des petites fluctuations de ses variables thermodynamiques autour de ses valeurs moyennes. Si le système est emmené hors équilibre, les fluctuations de non équilibre résultantes sont très amplifiées et peuvent servir comme mécanisme de rupture de symétrie pour faire débiter la convection, état dans lequel la vitesse moyenne du fluide n'est plus zéro. La façon classique de perturber un fluide est de le chauffer par le bas ainsi générant une stratification verticale de sa densité. Cela provoque une force de flottabilité, par le principe d'Archimède, qui pousse les couches plus chaudes et plus légères du fluide vers le haut. Ce mouvement est par contre prévenu par le mouvement opposé des couches plus froides et plus lourdes du fluide vers le bas, jusqu'à quand un seuil est atteint. Ce seuil est bien identifié par le numéro de Rayleigh (Ra) critique dépendant des propriétés du fluide, de son épaisseur et de la différence de température appliquée. Ceci est le cas de la convection de Rayleigh-Bénard (RBC, de l'anglais) qui a été étudiée pour plusieurs décades. Dans ce contexte on peut identifier différents régimes, dont le régime turbulent qui a des implications technologiques très importantes. De plus la forme que le fluide prend est un sujet de recherche très intéressant en soi : le fluide s'organise différemment selon les paramètres du fluide aussi bien que du conteneur pour minimiser le panorama énergétique. Les figures de convection sont facilement observables par des techniques de visualisation comme l'ombroscopie et beaucoup de travail expérimental, théoriques aussi bien que numériques ont été effectués à ce sujet dans le dernier siècle. Des mécanismes similaires sont présents lors d'un mélange binaire, pour lequel la situation est plus compliquée car, à l'occasion de l'application d'un gradient thermique, les différents

composants du mélange se séparent par effet Soret. Par exemple il peut jouer un rôle majeur dans la distribution finale de composantes d'un mélange d'huiles dans un réservoir géothermique ou il peut être utilisé pour séparer des composants d'un fluide biologique. Du point de vue de la convection, le résultat de l'effet Soret est simplement qu'il génère une stratification de densité additionnelle à celle donnée par le profil de température. Le gradient de densité résultant de l'effet Soret peut avoir la même direction que celui ayant origine de la température ou l'opposée, en dépendance du signe du coefficient Soret. La convention utilisée est telle que pour un coefficient Soret positive le composant plus lourd préfère le froid et donc le gradient de densité donné par l'effet Soret va se rajouter au gradient de densité lié au profile de température. Encore on peut voir que si l'on chauffe un mélange avec Soret positif par le bas il faut considérer la somme des deux profils de densité pour définir la stabilité du mélange. On peut avoir le cas où le mélange est n'as pas atteinte le seuil donné par la température, mais la force déstabilisant liée à la concentration est suffisant pour générer de la convection dans l'échantillon. Plusieurs possibilités se présentent : entre autre on peut obtenir la convection en chauffant une mélange à Soret négatif par le haut (stabilité thermique mais instabilité solutal) en observant des figures de convection classiques appelées 'spokes patterns'. Le mécanisme de rupture de symétrie générant la convection peut être induit expérimentalement par d'autres façons. Entre autres le conteneur peut être incliné par rapport à la direction de la force de gravité, ou le système peut être mis en rotation ou bien en oscillation. Toutes ces méthodes ont été étudiées expérimentalement aussi bien que théoriquement ; l'influence du tilt a été détectée pour des angles plus grands que 15° . Récemment nous avons étudié la stabilité d'un mélange fluide à coefficient Soret positif pour des valeurs du numéro de Rayleigh plus petit que la valeur de seuil. Le système été soumis à une inclinaison très petite de l'ordre de quelques milli radians (moins que 1°) qui n'était pas censé affecter l'état convectif. En effet les figures de convection carrées observées dans un premier temps étaient bien ce qu'on s'attende, mais ces figures se sont modifiées pour de temps plus grands. La transition dépende de l'angle d'inclinaison aussi bien que de la différence de température. Par exemple : pour des petites valeurs du numéro de Rayleigh (petites différences de température) les figures de convection disparaissent dans le long terme après instauration de la 'circulation à large échelle' (LSC, de l'anglais Large Scale Circulation) ; dans ce cas c'est la structure globale de grande échelle qui est gagnante. De l'autre côté ; pour des grandes valeurs du numéro de Rayleigh les carrés se déplacent parallèlement au champ résiduel ; c'est donc la structure locale, la colonne, qui résulte énergétiquement favorite. A la limite entre ces deux cas la structure locale et globale peuvent coexister dans la nouvelle figure de convection SHC. En fait les colonnes se réorganisent et forment des files parallèles se déplaçant en directions alternées, comme les voitures dans une autoroute. L'effet d'une petite inclinaison a été aussi étudié dans une dispersion colloïdale de particules de silice avec un coefficient Soret négatif. Même si on a pu constater un effet important de l'inclinaison pour ce mélange, dans ce cas on n'a pas pu détecter la SHC.

4.7.3 Actions

- Les mouvements de convection dans une couche de fluide sont affectés par son orientation par rapport au champ gravitationnel. Nous étudions la stabilité à long terme d'une couche stressée thermiquement d'un mélange liquide binaire et montrons que la formation de motif est fortement affectée par des inclinaisons marginaux aussi petites que quelques milliradians. À petits nombres de Rayleigh, le transfert de masse est dominée par le flux à grande échelle induit par cisaillement, pour des grands nombres de Rayleigh, il est dominé par convection solutal. A la transition, l'équilibre entre les flux solutal et le cisaillement donne lieu à des lignes de colonnes se déplaçant dans des directions opposées le long de voies parallèles comme des voitures dans une autoroute (voir Fig.4.11).

- **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *Effect of a Marginal Inclination on Pattern For-*

mation in a Binary Liquid Mixture under Thermal Stress. Phys. Rev. Lett., 111 014502 (2013) (→ web).

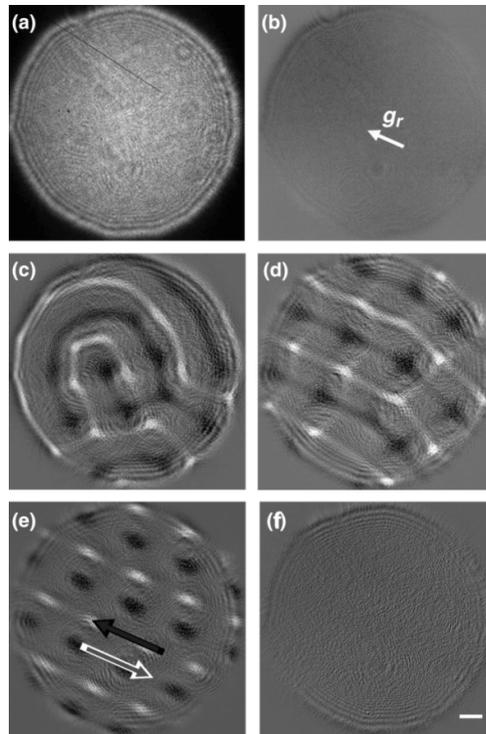


Figure 4.11 – Évolution temporelle des figures de convection par ombroscopie avec (e) structure SHC.

- La convection dans une couche de fluide inclinée est affectée par la présence d'une composante de l'accélération de gravité perpendiculaire au gradient de densité qui entraîne le mouvement de convection. Dans ce travail, nous étudions la convection solutale d'une suspension colloïdale caractérisé par un coefficient Soret négatif. La convection est induite par chauffage de la suspension par le haut au grand nombre de Rayleigh solutal (de l'ordre de $10^7 - 10^8$). Nous montrons que, en présence d'une inclinaison de la cellule marginale autour de quelques dizaines de mrad, l'isotropie du motif est cassée et les motifs convectifs tendent à s'aligner dans la direction de l'inclinaison. Aux inclinaisons intermédiaires de l'ordre de 30mrad des motifs carrés sont obtenus. Pour une inclinaison de l'ordre de 70mrad le flux de cisaillement déterminé par l'inclinaison donne lieu à un mouvement collectif des feuilles de fluide alignées parallèlement à la direction d'inclinaison.
 - Matteo Italia, **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *Inclined layer convection in a colloidal suspension with negative Soret coefficient at large solutal Rayleigh numbers. Eur. Phys. J. E, 37 101 (2014) (→ web).*
- Un nouveau papier est actuellement en cours de préparation. Il s'agit d'une version longue du PRL publié en 2013. Dans ce papier on va, bien entendue, décrire plus en détaille les expériences effectuées sur la SHC, mais surtout nous allons décrire la transition qui a lieu quand le fluide s'organise et passe de l'état convection en figures carrées à la disposition SHC. En effet le système passe d'une configuration 'carrée' à une configuration 'hexagones'.
 - **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *TBD. à soumettre à Phys. Rev. E*

4.8 Propriétés de transport haute pression et dans le confinement : Université de Pau et des Pays de l'Adour (FR)

4.8.1 Contexte

Après avoir complété mon projet DyNeFI j'ai eu l'opportunité de revenir à l'Université de Pau avec un support postdoc par le CNRS. J'ai donc intégré à nouveau l'équipe 'Géomécanique – Milieux Poreux' d'Anglet du LFCR où nous avons développé une cellule de thermodiffusion haute pression pour étendre la technique du Shadowgraph dynamique à des mesures en fonction de la pression. Avec l'aide d'un doctorant (M Cédric Giraudet) que j'ai co-encadré, nous avons donc mesuré les propriétés de transport d'un mélange liquide binaire en fonction de la pression jusqu'à 20MPa. Par le biais d'une collaboration avec M J.M. Ortiz de Zárate de l'Universidad Complutense de Madrid nous avons développé la théorie des fluctuations de la concentration de hors d'équilibre au cas d'un mélange ternaire en absence de confinement et de gravité. Très récemment nous avons effectué plusieurs mesures pour déterminer l'effet du confinement sur la dynamique des fluctuations de non équilibre dans un mélange binaire. Ces mesures ont montré une concordance exceptionnelle avec les résultats de calculs théoriques aussi bien que de simulations issues d'une collaboration avec M J.M. Ortiz de Zárate and M A. Donev de la Courant University de New York.

4.8.2 Verrous scientifiques

Les phénomènes de diffusion sont des mécanismes de transport omniprésents dans la nature et jouent un rôle clef dans différents processus industriels. La diffusion isotherme de masse est l'un des mécanismes de transport les mieux connus et compris, les équations ayant été établies au milieu du 19^{ème} siècle et son interprétation microscopique date du début du 20^{ème} siècle. Tout aussi important mais bien moins connue est la thermodiffusion, qui apparait quand un mélange est soumis à une différence de température. Il s'ensuit un flux de masse induit par la différence de température, produisant une séparation de ses composés. Même si la thermodiffusion, ou effet Soret, a été découverte il y a plus de 150 ans, la compréhension fondamentale du phénomène n'est pas complète de nos jours. Ainsi il n'existe pas encore une théorie unifiée qui prédise la valeur ni le signe des coefficients pour des mélanges multiconstituants ou des suspensions colloïdales. Cette lacune est en partie attribuable au manque de données expérimentales, particulièrement pour des mélanges ternaires, voir pour plus de composés. Les mesures de coefficients de thermodiffusion nécessitent un environnement absent de convection afin de ne pas produire des courants qui affecterait la précision des mesures.

Aujourd'hui nous avons établie une base de données solide pour les mélanges binaires, par des techniques expérimentales différentes. Cependant, de nombreux liquides d'intérêt scientifique ou technologique, comme le pétrole ou les fluides biologiques, se composent de plus de deux constituants. Compte tenu de degrés de liberté supplémentaires, les mélanges multiconstituants sont beaucoup plus compliqués à traiter que les binaires. Avec l'objectif à long terme de comprendre la thermodiffusion de mélanges multiconstituants, un nombre d'études sur des mélanges ternaires a été réalisé très récemment et a fait l'objet d'une série des articles qui constituent le 'benchmark de Bayonne'. Une partie des mesures présentées ont été effectuées par le biais du projet DCMIX mis au point avec l'Agence Spatiale Européenne pour effectuer des mesures des coefficients de transport de masse de mélanges ternaires en conditions de microgravité. Le Laboratoire des Fluides Complexes et leurs Réservoirs (LFCR) de l'Université de Pau et des Pays de l'Adour fait partie de l'équipe scientifique qui conseille l'Agence Spatiale Européenne dans la réalisation scientifique et technique du projet (Topical Team : Diffusion in non-metallic fluids. Le laboratoire a récemment eu le rôle de coordinateur du projet international SCCO-SJ10, pour la détermination en condition de microgravité des propriétés de transports de mélanges à

base de CO₂. Les partenaires industriels sont TOTAL, QinetiQ et PetroChina, en collaboration avec les Agences Spatiales Européenne et Chinoise. Dans la cadre de ces projets, nous sommes intéressés à réaliser, avec des techniques de diffusion dynamique de la lumière des mesures sur Terre des coefficients de diffusion et de thermodiffusion des mélanges ternaires.

4.8.3 Actions

- La thermodiffusion dans un mélange binaire d'hydrocarbures a été étudié expérimentalement et numériquement dans une cavité poreuse. La séparation du mélange binaire toluène/n-hexane 50% w/w induite par une différence de température à la pression atmosphérique a été effectuée dans une nouvelle cellule de thermodiffusion. La partie interne de la cellule est remplie d'un milieu poreux cylindrique prise en sandwich entre deux couches de liquide du même mélange binaire d'hydrocarbures. Les mesures expérimentales sont en très bon accord avec les estimations théoriques pour les coefficients de diffusion de masse et thermodiffusion. Afin de comprendre les différents régimes qui se produisent dans les différentes parties de la cellule, une simulation numérique complète du transitoire de la séparation solutale du mélange binaire a été effectuée. Les résultats numériques ont montré que les espèces qui sont plus légères, de n-hexane ont migré vers la surface chaude, tandis que les espèces plus denses, ce qui est le toluène, ont migré vers la surface froide. En outre, il a été constaté un bon accord entre les mesures expérimentales et les calculs numériques pour la séparation solutale entre la surface chaude et froide pour différentes valeurs de la porosité du milieu. En outre, nous avons utilisé les résultats numériques pour analyser avec précision les régions de convection et de diffusion dans la cellule.
- A. Ahadi, Cédric Giraudet, H. Jawad, **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and M.Z. Saghir. *Experimental, theoretical and numerical interpretation of thermodiffusion separation for a non-associating binary mixture in liquid/porous layers*. Int. J. of Thermal Sciences, **80** 108 (2014) (→ web).
- Nous présentons, sur la base de la théorie 'fluctuating hydrodynamics', les calculs théoriques pour des fluctuations de concentration dans un mélange ternaire soumis à un gradient de température fixe (voir Fig.4.12). Les gradients de composition sont générés par la thermo-diffusion (effet Soret). Nous négligeons la gravité aussi bien que le confinement (conditions aux limites), mais considérons une matrice de diffusion complètement générique, comprenant les effets de la contre-diffusion. On retrouve, comme dans le cas de mélanges binaires, une amplification importante de l'intensité des fluctuations de concentration de non-équilibre, qui est proportionnel au carré du gradient et inversement proportionnel à la quatrième puissance du vecteur d'onde, q^{-4} . Les résultats de cette étude sont asymptotiquement corrects pour des fluctuations de grande q , alors que pour les vecteurs d'onde plus petits l'effet de la gravité et du confinement doivent être intégrés. Une comparaison avec les travaux antérieurs de la littérature est présentée.
- José María Ortiz de Zárate, Cédric Giraudet, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**. *Non-equilibrium fluctuations induced by the Soret effect in a ternary mixture*. Eur. Phys. J. E, **37** 77 (2014) (→ web).
- Dans un mélange fluide binaire soumis à la gravité et à un gradient de concentration stabilisant, les fluctuations de concentration de non-équilibre interagissent à longue distance. Bien que le gradient conduit à une amplification de l'intensité des fluctuations d'équilibre respectives, l'effet de la gravité est un amortissement de fluctuations plus grandes qu'une taille "caractéristique". Cet amortissement est visible à la fois dans le spectre de puissance de fluctuations comme montré par une analyse statique et dans la fonction de corrélation temporelle comme montré par la diffusion dynamique de lumière. Un aspect de la taille "caractéristique" peut être apprécié par l'analyse



Figure 4.12 – Résumé visuel du papier EPJE **37** 77 (2014).

dynamique; en fait, au vecteur d'onde "caractéristique" q^* on peut observer un maximum de la constante de temps des fluctuations marquant la fluctuation plus persistante du système. En outre dans l'analyse statique une taille "caractéristique" peut être extraite à partir du vecteur d'onde de croisement. Selon les concepts théoriques communs, les deux résultats doivent être les mêmes. Dans le présent travail, nous apportons la preuve d'une différence systématique de la taille "caractéristique" observée expérimentalement par des mesures statiques ou dynamiques. Notre observation souligne donc la nécessité d'une théorie plus raffinée pour les fluctuations de concentration de non-équilibre.

- **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *Static versus dynamic analysis of the influence of gravity on concentration non equilibrium fluctuations*. Eur. Phys. J. E, **37** 105 (2014) (→ web).

- Les coefficients de diffusion de masse et Soret à haute-pression pour le mélange binaire équimassique de 1,2,3,4-tétrahydronaphtalène et n-dodécane sont obtenus à partir de l'analyse dynamique de la diffusion de la lumière de fluctuations de non-équilibre de la concentration à l'état stationnaire de la séparation Soret. Un set-up shadowgraph à haute pression a été développé pour étudier la thermodiffusion dans un milieu libre entre la pression atmosphérique et 20MPa. Les résultats à la pression atmosphérique montrent un excellent accord avec les valeurs de référence. Résultats à haute pression pour le coefficient de diffusion de masse confirment les prédictions théoriques donnée par l'équation de Leffler-Cullinan. En outre le calcul du coefficient de thermodiffusion permet également la comparaison avec les résultats expérimentaux précédents avec, encore une fois, très bon accord. Ce papier a obtenu la couverture du numéro de novembre 2014 de EPJE (voir Fig.4.13).

- **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *High-pressure mass transport properties measured by dynamic near-field scattering of non-equilibrium fluctuations*. Eur. Phys. J. E, **37** 107 (2014) (→ web).

- Editorial de la 'Topical Issue' : Dans cette 'Topical Issue' nous traitons le sujet de la thermodiffusion ; un phénomène, appelé aussi effet Ludwig-Soret, qui décrit le couplage entre un gradient de température et les flux massiques résultants. Découvert il y a plus de 150 ans, aucune explication théorique unique est encore disponibles, et les données expérimentales ne sont pas exhaustive. Compte tenu de la tendance récente à étudier la thermodiffusion dans les systèmes ternaires, une mesure de référence a été établie dans cette 'Topical Issue' par six équipes différentes pour les propriétés de transport de masse du même mélange ternaire à la fois en microgravité et sur terre.

- **Fabrizio Croccolo**, and Henri Bataller. *Editorial: Thermal non-equilibrium phenomena in multi-component*

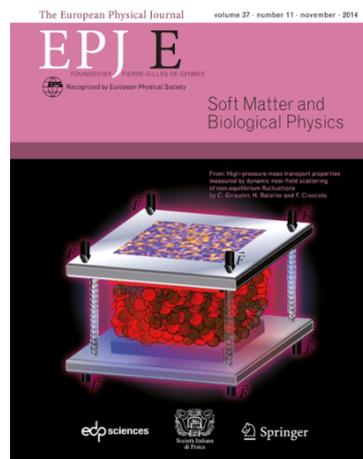


Figure 4.13 – Couverture du numéro de novembre 2014 du EPJE.

fluids. Eur. Phys. J. E, **38** 31 (2015) (\rightarrow web).

- Les fluctuations dans un fluide sont fortement affectées par la présence d'un gradient macroscopique qui les rend à longue portée et amplifie leur intensité. Alors que les fluctuations à petite échelle présentent des durées de vie diffusifs, les fluctuations de plus grande échelle vivent courte à cause de la gravité, ce qui est théoriquement et expérimentalement bien connu. Nous explorons ici des fluctuations de taille encore plus grande, comparable à celle du système dans le sens du gradient, et trouvons l'évidence d'un ralentissement dramatique de leur dynamique. Pour ces fluctuations fortement confinés on retrouve un comportement diffusif, mais avec un coefficient de diffusion dépendant du nombre de Rayleigh solutal. Les résultats des expériences de shadowgraph dynamiques sont complétées par des calculs théoriques et des simulations numériques sur la base de l'hydrodynamique fluctuante, et un excellent accord est trouvé (voir Fig.4.14). L'étude de la dynamique des fluctuations hors équilibre permet de sonder et mesurer la concurrence des processus physiques tels que la diffusion, la flottabilité et le confinement; à savoir les ingrédients inclus dans le nombre de Rayleigh, ce qui, en fait, est le paramètre de contrôle du système.

- Cédric Giraudet, Henri Battaler, Yifei Sun, Aleksandar Donev, José María Ortiz de Zárate and **Fabrizio Croccolo**. *Slowing-down of non-equilibrium concentration fluctuations in confinement*. Soumis (\rightarrow web).

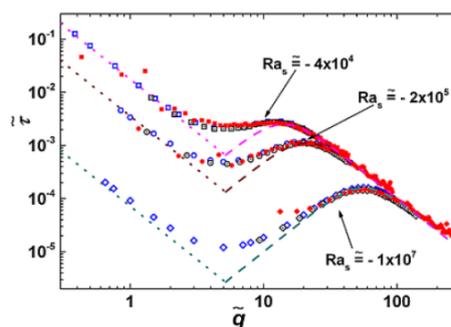


Figure 4.14 – Temps de corrélation sous confinement.

4.8.4 Perspectives

En ce moment nous sommes en train de faire des mesures sur les mélanges binaires liées au projet SJ10-SCCO. Le but est de bien caractériser les composantes des mélanges ternaires qui sont dit 'académiques' dans ce projet pour arriver à mesurer les ternaires dans les deux années à venir. Pour arriver à ce résultat il faudra d'abord développer la théorie de fluctuations de non-équilibre au cas d'une mélange ternaire incluant l'effet de la gravité. Ce développement est prévue ce faire dans l'automne 2015, quand un étudiant du M Ortiz de Zarate va passer trois mois dans nos laboratoires. Après cette étape nous souhaitons pouvoir analyser les données brut des analyses à effectuer sur les mélanges ternaires du projet SJ10-SCCO aussi bien que du DCMIX 1, 2 et 3. Dès nos analyses préliminaires nous sommes convaincus que le mélange ternaire idéale pour calibrer une technique de mesure donnée doit comprendre des colloïdes pour avoir des 'eigenvalues' de la matrice des coefficients de diffusion de masse très bien séparés. Nous avons donc planifié d'effectuer des mesures sur des mélange binaires et ternaires incluant des colloïdes et de proposer telle mélange au 'Topical Team' de DCMIX pour l'expérience DCMIX4 et de proposer notre candidature pour le pilotage de cette expérience spatiale. Nous sommes convaincus que l'étude des fluctuations de non-équilibre par dynamic Shadowgraph peut devenir une des techniques de choix pour l'étude des propriétés de transport de mélanges ternaires. Cela donc va nous positionner comme un des groupe de référence à niveau mondiale pour l'étude de ces phénomènes. En plus nous somme actuellement le seul groupe en mesure d'effectuer de mesure en condition de haute pression. Nous avons donc l'intérêt à étudier des fluides en condition super-critiques ou gazeux, ce qui est une défi expérimentale très importante. D'une autre coté nous avons bien caractérisé l'effet du confinement sur les fluctuations de non-équilibre dans une configuration de pores plans parallèles. Nous somme maintenant intéressés à étudier cet effet dans un milieu poreux modèle pour mieux comprendre comment les propriétés de transport de fluides sont impactées par le confinement.

Liste des publications afférentes aux activités postdoctorales

– Revues internationales à comité de lecture

2015

1. Guillaume Galliero, Henri Bataller, **Fabrizio Croccolo**, Romain Vermorel, Pierre-Arnaud Artola, Bernard Rousseau, Velisa Vesovic, M. Mounir Bou-Ali, José María Ortiz de Zárate and François Montel. *Impact of thermodiffusion on the initial vertical distribution of species in hydrocarbon reservoirs*. (soumis).
2. Cédric Giraudet, Henri Bataller, Yifei Sun, Aleksandar Donev, José María Ortiz de Zárate and **Fabrizio Croccolo**. *Slowing-down of non-equilibrium fluctuations in confinement*. (soumis).
3. **Fabrizio Croccolo** and Henri Bataller. *Editorial: Thermal non-equilibrium phenomena in multi-component fluids*. Eur. Phys. J. E, **38** 31 (2015) (→ web).

2014

4. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *Erratum: A light scattering study of non equilibrium fluctuations in liquid mixtures to measure the Soret and mass diffusion coefficient [J. Chem. Phys. 137, 234202 (2012)]*. J. Chem. Phys., **141** 219902 (2014) (→ web).
5. Cédric Giraudet, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**. *High-pressure mass transport properties by dynamic near field scattering of non-equilibrium fluctuations*. Eur. Phys. J. E, **37** 107 (2014) (→ web).
6. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *Static versus dynamic analysis of the influence of gravity on concentration non equilibrium fluctuations*. Eur. Phys. J. E, **37** 105 (2014) (→ web).
7. Matteo Italia, **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *Inclined layer convection in a colloidal suspension with negative Soret coefficient at large solutal Rayleigh numbers*. Eur. Phys. J. E, **37** 101 (2014) (→ web).
8. José María Ortiz de Zárate, Cédric Giraudet, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**. *Non-equilibrium fluctuations induced by the Soret effect in a ternary mixture*. Eur. Phys. J. E, **37** 77 (2014) (→ web).
9. Amirhossein Ahadi, Cédric Giraudet, H. Jawad, **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and M.Ziad Saghier. *Experimental, theoretical and numerical interpretation of thermodiffusion separation for a non-associating binary mixture in liquid/porous layers*. Int. J. of Thermal Sciences, **80** 108 (2014) (→ web).

2013

10. **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *Effect of a marginal inclination on pattern formation in a binary liquid mixture under thermal stress*. Phys. Rev. Lett., **111** 014502 (2013) (→ web).
11. **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Henri Bataller. *Mass transport properties of the tetrahydro-naphthalene/n-dodecane mixture measured by investigating non equilibrium fluctuations*. C. R. Mécanique, **341** 378 (2013) (→ web).

12. Cédric Giraudet, **Fabrizio Croccolo**, Guillaume Galliero, Gilles Pijaudier-Cabot, Stefan Van Vaerenbergh, M. Ziad Saghir, Francois Montel and Henri Bataller. *Thermodiffusion of the tetrahydronaphthalene and dodecane mixture under high pressure and in porous medium*. C. R. Mécanique, **341** 340 (2013) (\rightarrow web).

2012

13. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *A light scattering study of non equilibrium fluctuations in liquid mixtures to measure the Soret and mass diffusion coefficient*. J. Chem. Phys., **137** 234202 (2012) (\rightarrow web).
14. Giovanni Cerchiari, **Fabrizio Croccolo**, Frédéric Cardinaux and Frank Scheffold. *Note: Quasi-real-time analysis of dynamic near field scattering data using a graphics processing unit*. Rev. Sci. Instrum., **83** 106101 (2012) (\rightarrow web).

2011

15. Domenico Salerno, Dorian Brogioli, **Fabrizio Croccolo**, Roberto Ziano and Francesco Mantegazza. *Photon correlation spectroscopy with incoherent light*. Opt. Expr., **19** 26416 (2011) (\rightarrow web).
16. Dorian Brogioli, Domenico Salerno, **Fabrizio Croccolo**, Roberto Ziano and Francesco Mantegazza. *Speckles generated by skewed, short-coherence light beams*. New J. Phys., **13** 123007 (2011) (\rightarrow web).
17. **Fabrizio Croccolo**, Frédéric Plantier, Guillaume Galliero, Gilles Pijaudier-Cabot, M. Ziad Saghir, Frank Dubois, Stefan Van Vaerenbergh, Francois Montel and Henri Bataller. *Note: Temperature derivative of the refractive index of a binary mixtures by using a new thermodiffusion cell*. Rev. Sci. Instrum., **82** 126105 (2011) (\rightarrow web).
18. **Fabrizio Croccolo**, Marc-Alexandre Arnaud, Didier Bégué and Henri Bataller. *Concentration dependent refractive index of a binary mixture at high pressure*. J. Chem. Phys., **135** 034901 (2012) (\rightarrow web).
19. **Fabrizio Croccolo** and Dorian Brogioli. *Quantitative Fourier analysis of schlieren masks: the transition from shadowgraph to schlieren*. App. Opt., **50** 3419 (2011) (\rightarrow web).

2010

20. **Fabrizio Croccolo**, Antonella Quintini, Ruggero Barni and Claudia Riccardi. *Transition between E-Mode and H-Mode in a cylindrical Inductively Coupling Plasma reactor*. High Temperature Material Processes, **14** 119 (2010) (\rightarrow web).

2009

21. **Fabrizio Croccolo**, Antonella Quintini, Ruggero Barni, Maddalena Ripamonti, Antonio Malgaroli and Claudia Riccardi. *H-Mode Inductive Coupling Plasma for PVC Surface Treatment*. Eur. Phys. J. D, **54** 477 (2009) (\rightarrow web).
22. Dorian Brogioli, Domenico Salerno, Valeria Cassina, Stefano Sacanna, Albert P. Philipse, **Fabrizio Croccolo** and Francesco Mantegazza. *Characterization of anisotropic nano-particles by using depolarized dynamic light scattering in the near field*. Opt. Expr., **17** 1222 (2009) (\rightarrow web).

2008

23. Dorian Brogioli, **Fabrizio Croccolo**, Valeria Cassina, Domenico Salerno and Francesco Mantegazza. *Nano-particle characterization by using Exposure Time Dependent Spectrum and scattering in the near field methods: how to get fast dynamics with low-speed CCD camera*. *Opt. Expr.*, **16** 20272 (2008) ([→ web](#)).
24. H. Eduardo Roman, **Fabrizio Croccolo** and Claudia Riccardi. *Extreme fluctuation events in a simple high-density traffic model*. *Phys. A*, **387** 5575 (2008) ([→ web](#)).
25. Stefano Zanini, Claudia Riccardi, Marco Orlandi, Claudia Colombo **Fabrizio Croccolo**. *Plasma-induced graft-polymerization of ethylene glycol methacrylate phosphate on polyethylene film*. *Pol. Deg. and Stab.*, **93** 1158 (2008) ([→ web](#)).
26. **Fabrizio Croccolo** and Claudia Riccardi. *Observation of the Ion-Mirror Effect during microscopy of insulating materials*. *J. Microsc.*, **229** 39 (2008) ([→ web](#)).

2006

27. H. Eduardo Roman, Mattia Albergante, Marco Colombo, **Fabrizio Croccolo**, Francesco Marini and Claudia Riccardi. *Modeling cross-correlations within a many-assets market*. *Phys. Rev. E*, **73** 36129 (2006) ([→ web](#)).

– Conférences invitées

*Orateur

2016

1. **Fabrizio Croccolo***, *Microgravity in a thin layer*. IMT12, International Meeting on Thermodiffusion, 30 May - 3 June 2016, Madrid (ES) ([→ web](#)).

2014

2. **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati*, *Counterflow, in a row! Super-highway convection in an inclined liquid mixture*. IMT11, International Meeting on Thermodiffusion, 2-6 June 2014, Bayonne (FR) ([→ web](#)).

2013

3. **Fabrizio Croccolo***, Frank Scheffold and Alberto Vailati, *Moving in a line: up and down an incline*. Pattern Creation in Nature and Materials, 6-9 October 2013, Bayreuth (DE) ([→ web](#)).

– Communications avec actes et sélection sur résumé

2010

1. **Fabrizio Croccolo**, Henri Battaller*, Frédéric Plantier and Gilles Pijaudier-Cabot, *Measurement of thermodiffusion coefficient for binary hydrocarbon fluid mixtures in porous medium*. IMT9, International Meeting on Thermodiffusion, 7-11 June 2010, Toulouse (FR) ([→ web](#)).

– Communications sans actes avec sélection sur résumé

2015

1. Cédric Giraudet, Henri Bataller, Yifei Sun, Aleksandar Donev, José Maria Ortiz de Zárate and **Fabrizio Croccolo***, *Confinement effect on the dynamics of concentration non-equilibrium fluctuations*. 19th Symposium on Thermophysical Properties, 21-26 June 2015, Boulder, CO (USA) (→ *web*).
2. Cédric Giraudet*, Henri Bataller, Gilles Pijaudier-Cabot and **Fabrizio Croccolo**, *Transport properties of the Tetrahydronaphthalene and n-Dodecane mixture at high pressure*. 19th Symposium on Thermophysical Properties, 21-26 June 2015, Boulder, CO (USA) (→ *web*).

2014

3. **Fabrizio Croccolo***, Cédric Giraudet and Henri Bataller, *About the relation between non-equilibrium fluctuations and Soret-driven convection*. IMT11, International Meeting on Thermodiffusion, 2-6 June 2014, Bayonne (FR) (→ *web*).
4. Cédric Giraudet*, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**, *Experimental and numerical investigation of thermodiffusion on a CH₄/CO₂ mixture close to the critical plait point*. IMT11, International Meeting on Thermodiffusion, 2-6 June 2014, Bayonne (FR) (→ *web*).

2012

5. **Fabrizio Croccolo***, Henri Bataller and Frank Scheffold, *Observing the Soret effect in a different direction*. IMT10, International Meeting on Thermodiffusion, 4-8 June 2012, Bruxelles (BE) (→ *web*).

Participations à des travaux d'expertise

Reviewer pour divers journaux internationaux :

1. Physical Review Letters,
2. Physical Review E,
3. Journal of Chemical Physics,
4. European Journal of Physics E,
5. Optics Letters,
6. Optics Express,
7. Applied Optics,
8. Optics Communications,
9. Chinese Optics Letters,
10. Micron,
11. Experimental Thermal and Fluid Science,

12. International Journal of Heat and Mass Transfer,
13. Microgravity - Science and Technology,
14. International Journal of Thermal Science.

Chapter 5

Perspectives dans le moyen terme

Pendant 3 années de doctorat puis 9 années de postdoc, j'ai acquis des compétences qui peuvent être divisées en deux grandes branches. D'un côté, j'ai appris à développer des instruments optiques pour mesurer les propriétés de la lumière diffusée par un fluide dans des conditions de non-équilibre ; de l'autre côté, j'ai appris à comparer cette information aux théories disponibles et en déduire des valeurs fines de propriétés de transport de l'échantillon. Cette approche m'a permis d'observer différents phénomènes se produisant dans un fluide dans des conditions de non-équilibre, comme la diffusion de masse et la flottabilité pendant ma thèse, ou l'effet Soret et le confinement, par la suite. Une variété d'aspects expérimentaux étaient nécessaires pour produire des expériences précises ou réduire les données, tels que le contrôle de température à 1mK, le contrôle de la pression jusqu'à 50 MPa, des montages optiques raffinés, ou des logiciels par GPU très exigeant, etc. À l'heure actuelle, je prévois un certain nombre d'applications futures qui vont guider la plupart de mes activités de recherche dans les 3/5 prochaines années.

1. Nous avons observé l'impact drastique du confinement sur des échantillons contenus dans un récipient de 0.7mm. Nous sommes intéressés à l'étude de ce qui se passe dans des systèmes très confinés dans l'ordre de centaines ou dizaines de microns, où le confinement devrait, selon la théorie, masquer totalement l'effet de la gravité. Des résultats préliminaires montrent ce comportement dans un récipient de 200 microns, mais nous tenons à diminuer l'épaisseur pour arriver à la condition appelée « pores planes parallèles ».
2. L'effet de confinement n'a pas été étudié, ni expérimentalement ni théoriquement, dans un système 3D réel comme un milieu poreux. Je souhaite mener des expériences sur un matériau poreux et transparent modèle pour dévoiler le comportement du fluide dans une matrice poreuse. Un dispositif expérimental a été conçu pour inclure un verre Vycor qui est poreux et transparent, avec des pores ouverts et isotropes de 7 nm de rayon. Un autre matériau modèle qui peut être étudié est simplement un dépôt de billes de verre de taille souhaitée. Les deux types de milieux poreux sont intéressants pour étudier différentes tailles des pores.
3. Nos mesures ont été essentiellement réalisées sur des mélanges de liquides binaires, mais la communauté internationale de la thermodiffusion fait en ce moment un grand effort pour étudier des mélanges multi-composants, à partir de ternaires. Grâce à la collaboration avec le Prof Ortiz de Zarate de Madrid nous avons commencé à développer la théorie de fluctuations hors équilibre dans les ternaires, et des expériences préliminaires ont été réalisées, mais nous avons besoin d'effectuer des expériences systématiques sur des mélanges ternaires pour atteindre la maturité nécessaire dans ce sujet. Comme déjà indiqué, après les résultats des premières expériences dans l'espace au sein de la mission DCMIX1 à bord de l'ISS, l'étude de mélanges ternaires de 3 fluides

moléculaires est un défi encore ouvert. Nous allons proposer de réaliser de nouvelles expériences en microgravité (DCMIX4) sur un mélange ternaire composé de deux fluides moléculaires et un polymère, comme le mélange hexane/toluène/polystyrène. Des expériences préliminaires seront bientôt menées pour fournir des informations supplémentaires pour la définition du mélange pour cette nouvelle expérience dans l'espace (déjà acceptés par l'ESA, échantillon à définir).

4. Comme nous sommes impliqués dans l'expérience spatiale SCCO-SJ10, nous allons effectuer des expériences sur les mélanges méthane/pentane/décane à des pressions jusqu'à 40 MPa.
5. Nous avons déjà effectué des mesures sur le mélange CO₂/CH₄ à l'état gazeuse aussi bien que super-critique (à publier) dont les résultats ne peuvent pas être pleinement exploités en raison de limitations techniques de notre installation expérimentale. À savoir le taux d'acquisition de notre caméra CCD n'est pas assez petit pour analyser la dynamique de NEFs de concentration. Néanmoins, il devrait être assez intéressant d'étudier le comportement de NEFs dans les différentes phases ainsi que lors des transitions de phase et près de comportements critiques. Ceci est une partie de mes études futures sous condition d'obtenir un financement pour une caméra à haute vitesse. Un nouveau projet sera présenté à un des futurs appels à projet de l'UE du type H2020 FET.
6. À l'heure actuelle, à l'aide d'un doctorant, nous avons conçu un dispositif expérimental pour étudier le comportement d'une phase gazeuse qui est poussé à travers un milieu poreux saturé, afin de modéliser le transport de la vapeur à travers le mur de béton d'une centrale nucléaire après un accident important du type Fukushima. Dans ce cas, la technique optique de shadowgraph est utilisée comme un outil quantitatif pour évaluer le déplacement de la phase vapeur dans le milieu poreux saturé.

Chapter 6

Insertion dans l'unité de recherche d'appartenance

6.1 Place de ma recherche dans celle de mon unité

6.1.1 Laboratoire d'accueil

Le Laboratoire des Fluides Complexes et leurs Réservoirs (LFC-R, UMR5150) est une unité mixte de recherche de l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, du CNRS et de TOTAL SA dirigée par Gilles Pijaudier-Cabot. Depuis 2011, le laboratoire est structuré en cinq groupes de recherches fortement multidisciplinaires : Colloïdes et interfaces, Propriétés de Transport, Comportement de Phase, Géomécanique - Milieux Poreux, Réservoirs Géologiques. Il positionne son activité scientifique sur des thématiques liées principalement au génie pétrolier dans la combinaison fluides/réservoirs difficiles. Reconnu par les sections 9, 10 et 18 du CNRS, le laboratoire est rattaché principalement à l'INSIS et de façon secondaire à l'INSU. Le LFC-R fait partie de l'Institut Pluridisciplinaire de Recherche Appliquée dans le domaine du génie pétrolier (IPRA FR2952). Créée en 2005, l'IPRA allie des compétences relevant de trois disciplines scientifiques différentes : les mathématiques, les géosciences et les sciences de l'ingénieur. Son originalité réside dans cette association qui lui offre l'avantage de disposer de savoir-faire complémentaires permettant d'aborder à la fois les études expérimentales et théoriques. Elle regroupe trois laboratoires de l'Université de Pau et des Pays de l'Adour (LFC-R UMR5150, LMAP UMR5142 et SIAME EA4581). En plus de son réseau local au travers de l'IPRA, le laboratoire fait partie de réseaux régionaux comme l'Institut Carnot ISIFoR qui regroupe un ensemble de compétences dans le domaine de l'ingénierie durable des ressources fossiles, couvrant les géosciences, les mathématiques, la chimie et les sciences de l'ingénieur. Le laboratoire fait également partie du groupe national de recherche « Mécanique et Géosciences » (GdR MeGe), du réseau international « ALERT Geomaterials » et du groupe de recherche international GDR-I « Multi-scale Materials Under the Nanoscope ». Le LFC-R assure ainsi un environnement multidisciplinaire parfait pour mener à bien mes actions de recherches en terme de moyens complémentaires (expérimentaux ou numériques), de compléments d'expertises et d'activités scientifiques.

6.1.2 Équipe d'accueil *Géomécanique – Milieux Poreux*

Le groupe « Géomécanique – Milieux Poreux » piloté par Gilles Pijaudier-Cabot, s'intéresse au couplage entre endommagement par microfissuration et fissuration, et la perméation dans les géomatériaux. La poromécanique des milieux poreux et micro-poreux sert de lien entre le comportement mécanique et les propriétés de transport. Le groupe développe à cette fin des méthodes expérimentales de caractérisation

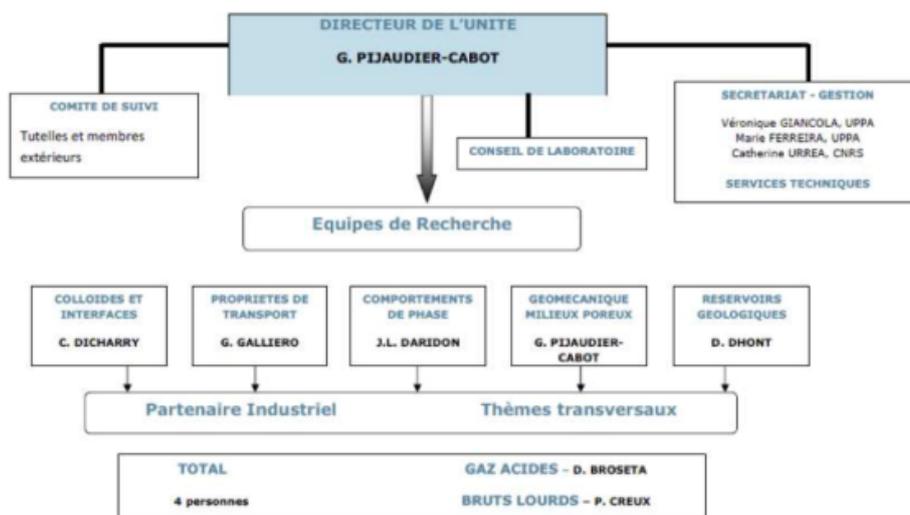


Figure 6.1 – Organigramme LFC-R au 1er janvier 2011.

de l'adsorption et du transport en milieu poreux et aussi des modèles théoriques et numériques basés sur la simulation moléculaire, Monte Carlo et dynamique moléculaire. Les aspects liés à la non saturation des milieux poreux sont abordés dans le contexte de l'acoustique physique. Ces approches ont des applications dans le cadre des Tight Gas Reservoirs, des Gas Shales et des Coal Bed Methane, ainsi que dans le stockage géologique. Le groupe est composé de 9 permanents, 2 Professeurs, 6 Maîtres de Conférences et 1 Ingénieur de recherche CNRS (voir figure 6.2).

Ma première expérience dans cette équipe date du novembre 2009 quand j'ai laissé l'Italie pour mon premier Post-Doc à l'étranger acceptant l'offre de M Henri Bataller (Maître de Conférences dans l'équipe) pour m'occuper des mesures de propriétés de transport dans des mélanges binaires dans un milieu poreux sous haute pression par interférométrie. Le sujet été financé par l'Université de Bordeaux et l'Agence Spatiale Européenne (en anglais European Space Agency, ou ESA) en liaison au projet "Diffusion Coefficients in ternary MIXtures" (DCMIX) auquel le laboratoire LFCR participe pour ce qui concerne l'exécution des mesure sur terre. A la fin du 2010 je suis parti pour effectuer mon projet 'DyNeFI' avec un financement européen Marie Curie Intra European Fellowship (IEF) à effectuer à l'Université de Fribourg (CH) sous la guide du Prof Frank Scheffold un des plus éminents scientifiques mondiales pour ce qui concerne les techniques optiques de diffusion de la lumière. Dans le cadre de ce projet j'ai effectué des expériences pour montrer la possibilité d'utiliser les techniques dynamiques que j'avais développé pendant mon doctorat pour obtenir des mesures fiables des propriétés de transport de mélanges binaire. Ces mesures ont été publiées en collaboration avec M H Bataller du LFCR. A la fin de ces deux années j'ai réintégré la même équipe avec un support initiale du CNRS en tant que chercheur CDD pour faire des mesures de propriétés de transport des mélanges binaires sous haute pression.

6.1. Place de ma recherche dans celle de mon unité



Figure 6.2 – Trombinoscope de l'équipe au 1er janvier 2013.

| Personnels | Statut | Thématique personnelle |
|---|--------|--|
| Collaborations au sein de l'équipe | | |
| Gilles Pijaudier-Cabot | PR | Écoulement des fluides dans des milieux poreux |
| David Grégoire | MC | Écoulement des fluides dans des milieux poreux |
| Henri Bataller | MC | Propriétés de transport de fluides |
| Collaborations au sein du laboratoire | | |
| Guillaume Galliero | PR | Propriétés de transport de fluides |
| Collaborations avec d'autres laboratoires de l'IPRA | | |
| Christian Laborderie (SIAME) | PR | Propagation des fissures dans le béton |
| Claire Lawrence (SIAME) | MC | Propagation des fissures dans le béton |

Table 6.1 – Collaborations au sein de l'IPRA

Chapter 7

Gestion administrative et financière

7.1 Obtention et gestion des contrats de recherche

Projet 1

Intitulé: Analyse dynamique des fluctuations de non-équilibre de mélanges liquides ternaires

Financeur: Centre National D'Etudes Spatiales (CNES)

Montant : 10K€

Rôle: co-proposant

Porteur principal: Henri Bataller (UPPA)

Durée: 2015

Description: Avec l'objectif à long terme de comprendre la diffusion et la thermodiffusion de mélanges multiconstituants, un nombre d'études sur des mélanges ternaires a été réalisé récemment. Ces résultats restent rares et pas toujours en accord. Pour cette raison, le projet DCMIX (Diffusion Coefficients in ternary MIXtures) de l'ESA a été mis au point pour établir des valeurs de coefficients de diffusion, de thermodiffusion et Soret de mélanges ternaires de référence pour développer les théories et les modèles numériques. Le projet DCMIX a pour objectifs le développement des techniques expérimentales pour mesurer les propriétés de transport de mélanges ternaires et l'application de ces techniques sur des liquides de référence pour des expériences à bord de l'ISS, grâce à l'équipement SODI installé dans la « GLOVEBOX », afin de bénéficier d'un environnement absent de convection. L'analyse des cinétiques et des amplitudes des variations des indices de réfraction par interférométrie optique permet d'obtenir les valeurs des coefficients recherchés. Plusieurs campagnes de mesures sont prévues. Les expériences DCMIX1 et DCMIX2 ont déjà eu lieu. Les mélanges de DCMIX3 sont en attente d'être livrés à bord de l'ISS suite à l'accident d'Orbital-3. Les mélanges pour l'expérience DCMIX4 sont en cours de discussion par le Topical Team « Diffusion in non-metallic mixtures » de l'ESA, et dont notre laboratoire fait partie. Des résultats obtenus sur terre, par Thermogravitation, Optical Beam Deflection et Optical Digital Interferometry sur les échantillons de DCMIX1 ont déjà été publiés et sont connue sous le nom de benchmark de Bayonne. Le laboratoire LFCR a été aussi choisi par l'ESA pour coordonner la mission internationale SCCO/SJ10 (coopération ESA/CNSA). L'objectif est d'étudier, en condition de microgravité et sous haute pression, la thermodiffusion de 3 mélanges ternaires "académiques" et de 3 mélanges d'intérêt pétrolier. Les partenaires industriels de cette mission

sont TOTAL et PetroChina. La mission a démarré en septembre 2014 pour une durée de 3 ans. Le LFCR a le privilège de coordonner l'ensemble des mesures au sol à effectuer pour comparaison et validation des mesures en microgravité.

Récemment, nous avons montré que l'étude de la dynamique de la lumière diffusée par les fluctuations de non équilibre (NEFs) du champ de concentration établi par effet Soret, permet d'obtenir avec grande précision les coefficients de diffusion et Soret de mélanges binaires. , Nous avons effectué ce travail avec un montage de shadowgraphie dans lequel nous avons positionné une cellule de thermodiffusion adaptée. Par ces travaux, nous avons montré que l'analyse dynamique des NEFs est une technique de choix pour l'étude de l'effet Soret. L'avantage principal de cette technique est qu'elle ne nécessite pas la mesure préalable des facteurs de contraste optique des mélanges, à la différence des autres techniques optiques. Plus récemment nous avons développé une cellule de thermodiffusion haute pression en milieu libre pour pouvoir étudier l'effet Soret en fonction de la pression par la même technique expérimentale. Une thèse préparée au sein du LFCR a accompagné ce développement technique et expérimental.

Projet 2

Intitulé: Echange en milieux poreux : Propriétés de transport et tortuosité

Financeur: Agglomération Côte Basque-Adour

Montant : 10K€

Rôle: Chercheur

Porteur principal: David Grégoire (UPPA)

Durée: 2013

Description: Dans le contexte d'une construction durable, les échanges et transferts au sein des matériaux poreux sont de premières importances. On cherche notamment à minimiser les échanges thermiques pour limiter les pertes tout en gardant des matériaux « respirant » afin d'assurer une bonne qualité de l'air intérieur. Dans le cadre de filtres ou de matériaux de construction, les propriétés de transport, comme la perméabilité (aptitude à se laisser traverser par un fluide), sont caractérisées par la géométrie du squelette poreux, notamment la distribution de taille de pore, leur connectivité et la tortuosité du milieu poreux. La tortuosité est le rapport entre la longueur du trajet réel réalisé par une particule pour traverser le milieu poreux et sa longueur caractéristique, c'est donc un paramètre essentiel lorsque l'on cherche à évaluer les propriétés de transport du milieu. Le problème est qu'il n'existe pas de tortuosimètre et les seules mesures disponibles sont fortement liées aux propriétés de transport que l'on cherche à déterminer. Ainsi on ne peut pas obtenir une mesure indépendante de tortuosité et on ne possède qu'une idée approximative de la tortuosité intrinsèque du matériau, ce qui est très handicapant pour proposer des modèles prédictifs des propriétés de transport en milieu poreux. Ce projet se propose de mesurer la perméabilité et la tortuosité d'un même milieu poreux par deux méthodes expérimentales indépendantes basées sur des phénomènes physiques différents ceci afin d'assurer une mesure intrinsèque de ces grandeurs. La mesure de perméabilité sera effectuée par perméamétrie à l'azote et la mesure de tortuosité par thermo-diffusion. Par ailleurs un modèle prédictif de perméabilité basé sur la description explicite du squelette poreux à l'aide de la distribution de taille de pore et mettant en jeu la tortuosité du milieu permettra de faire le lien entre les deux mesures. La tortuosité ainsi évaluée sera comparée à celle déterminée par les mesures de coefficients de diffusion moléculaire à travers le milieu poreux saturé par un liquide composé au moins de deux constituants chimiques. La méthodologie sera tout d'abord employée sur un matériau modèle de synthèse puis sur des mortiers de construction.

Projet 3

Intitulé: Maitrise du confinement d'une enceinte en accident, **MACENA**.

Financeur: ANR RSNR

Montant : 2,8M€

Rôle: Chercheur

Porteur principal: F. Dufour (INPG)

Durée: 2013-2017

Description: Ce projet s'intitule "Maîtrise du confinement d'une enceinte en accident (MACENA)" et vise à caractériser le comportement d'une enceinte de confinement en béton précontraint sous accident grave. L'accident grave est défini par un chargement en pression interne de 5 bars et en température maintenu pendant 2 semaines. L'enceinte de confinement est la troisième et dernière barrière de la centrale permettant d'isoler le réacteur et son circuit primaire, du circuit secondaire et du reste des installations. Dans le cas d'un accident, et après rupture des deux premières barrières d'isolement (gaine de combustible et circuit primaire), l'enceinte de confinement est la dernière barrière permettant d'empêcher la dispersion de radionucléide. Durant un accident grave, la pression interne reste inférieure à la pression maximale admissible par le matériau, et donc l'intégrité de la structure est préservée. Cependant, les propriétés de transfert peuvent être fortement modifiées et donc les propriétés de confinement, notamment pour les réacteurs de type N4 – 1300MW où la confinement est uniquement réalisé au travers de l'enceinte en béton précontraint. Le projet MACENA vise à mieux comprendre le comportement mécanique d'une enceinte en accident en lien avec ses propriétés de transport. Il s'organise autour de 4 axes principaux de recherche: Assessment of structural state before an accident; Instantaneous and delayed mechanical behavior of concrete during an accident ; Transfer properties of concrete during an accident et Structural analysis during an accident

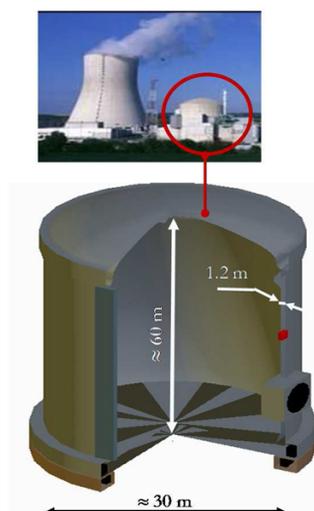


Figure 7.1 – Image d'une centrale thermique nucléaire et taille de l'enceinte du 'core'.

Projet 4

Intitulé: Etude du Confinement des Ouvrages en Béton Armé, **ECOBA**.

Financeur: ANR BLANC 2010

Montant : 500K€

Rôle: chercheur

Porteur principal: Ahmed Loukili (GeM, Ecole Centrale de Nantes)

Durée: 2011-2014

Description: L'étanchéité des enceintes de confinement des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) de types 1300 MWe et 1450 MWe du parc nucléaire français est assurée par un système de confinement dynamique. Ce système comporte une enceinte interne en béton armé et précontraint, une enceinte externe en béton armé et un système de collecte et de filtrage qui assure une dépression dans l'espace entre ces deux enceintes. Ce système complexe remplace la peau métallique qui assure l'étanchéité des enceintes à simple paroi de type REP 900 MWe. L'enceinte de confinement en béton précontraint constitue la troisième barrière de sécurité vis-à-vis de l'environnement après la gaine de combustible et la cuve en acier du réacteur. Le confinement de l'enceinte doit être assuré pendant sa durée de vie initialement prévue à 40 ans. Il est testé lors des épreuves décennales par la mesure du débit de fuite de gaz après la pressurisation préalable de l'enceinte avec de l'air sec. Le débit des fuites éventuelles mesuré doit être inférieur à un seuil défini dans le rapport de sûreté. Dans le cas où la fuite est supérieure au seuil, les tranches considérées sont arrêtées et des travaux d'étanchéité sont réalisés. En service, l'enceinte de confinement est soumise à différents types de sollicitations (retrait, fluage, sollicitations mécaniques et thermiques, etc.) qui ne sont généralement pas assez significatives pour produire une dégradation importante du béton (Norris et al., (1999)). Cependant, lors des épreuves ou en cas d'accident, des dégradations peuvent s'accumuler et conduire ainsi à une fissuration. Les conditions d'accidents hypothétiques (Accident par Perte de Réfrigérant Primaire-APRP et Accident Grave) conduisent à des scénarios de montée simultanée très rapide en pression et température d'un mélange air-vapeur d'eau dans l'enceinte. Par conséquent, il est nécessaire d'être capable d'évaluer la capacité de confinement de l'enceinte dans le cas où le béton est soumis à des conditions accidentelles. Afin de mettre au point un outil industriel fiable capable d'évaluer des fuites à travers une parois en béton d'un ouvrage de confinement, sont développés dans ce projet les modèles de comportement au jeune âge, les modèles de comportement endommageable du béton mature, ainsi que les relations type endommagement-fissuration-perméabilité. Toutefois, ces modèles, en interaction entre eux, nécessitent d'être validés. C'est pourquoi, nous proposons d'élaborer dans le cadre de ce projet une expérimentation sur un volume représentatif des ouvrages de confinement. La maquette, unique en France, s'approchant d'une partie courante d'une enceinte de confinement d'un Réacteur à Eau Pressurisé (REP) de type 1300 MWe, comportera l'ensemble des éléments de la paroi en béton armé. Elle permettra d'identifier l'influence de différents paramètres sur le calcul de débits de fuites comme, par exemple l'ouverture des fissures (sous chargement et après déchargement), la rugosité du béton fissuré, le coefficient de dilatation thermique du béton fissuré, la longueur d'adhérence béton/armature au voisinage de la fissure, le réseau des armatures sur l'amorçage et la propagation des fissures (lien avec les résultats numériques de Jason (2004) et de Krayani (2007), le Projet National CEOS et le projet ANR MEFISTO).

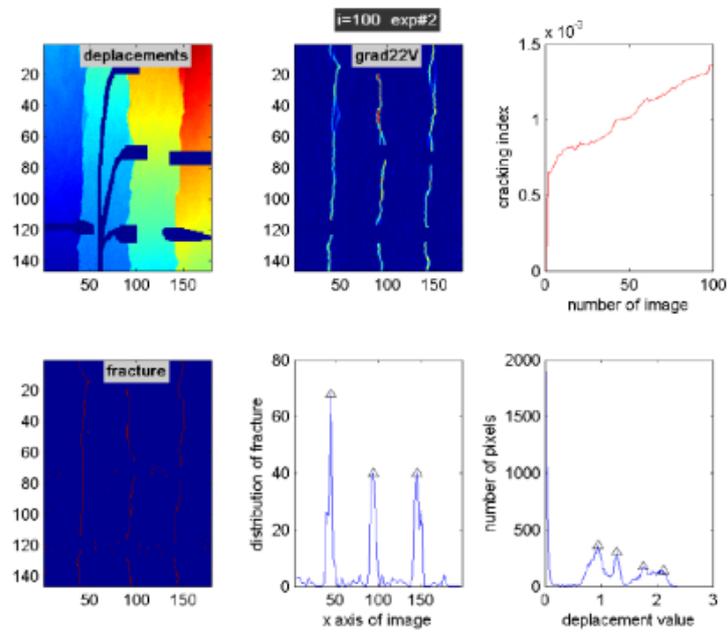


Figure 7.2 – Panel d'analyse des images des ouvertures des fissures par corrélation d'images.

Projet 5

Intitulé: SJ10-SCCO.

Financier: ESA

Montant : 200K€

Rôle: chercheur

Porteur principal: Guillaume Galliero (LFCR, UPPA)

Durée: 2015-2017

Description: SCCO est un projet ambitieux qui date du 1999 et qui, dans sa forme actuelle (SJ10-SCCO), implique des universitaires (Académie chinoise des sciences, Imperial College London, Univ. De Mondragon, Univ. Complutense de Madrid, Univ. De Pau et Univ. Paris-Sud), industriels (RIPED, TOTAL) et les agences spatiales européennes et chinoises. Ce projet vise à étudier la thermodiffusion (effet Soret) de mélanges multi-composants d'intérêt pétrolier en conditions du réservoir. Le projet SJ10-SCCO est fortement lié au projet international DCMIX (5 série d'expériences exécutées dans l'ISS pendant 2010-2017). Ce dernier se concentre sur l'investigation du transport de masse (diffusion et thermodiffusion) dans des mélanges ternaires de liquides dans des conditions ambiantes. La thermodiffusion, qui est le sujet principal du projet SJ10-SCCO, est un phénomène de transport qui couple les flux de chaleur et de masse dans des mélanges. Il est encore un problème ouvert du point de vue de la modélisation / simulation et les mesures au sol fiables sur de mélanges plus que binaires sont encore rares, malgré de progrès très récents. Du point de vue de l'application, ce projet est motivé par le fait que, dans les réservoirs de pétrole et de gaz, la thermodiffusion est l'un des principaux processus qui régissent la distribution verticale des espèces le long du gradient géothermique. Dans sa forme actuelle, le projet est associé à une expérience de microgravité (partenariat entre l'ESA et le CNSA) sur la diffusion / thermodiffusion de fluides d'intérêt pétrolier. Cette expérience, qui constitue le cœur du projet, est prévu voler sur le satellite chinois SJ-10 Shi Jian vers la fin de 2015 ou peu après. L'expérience sera composé de six cellules déjà utilisé au cours des expériences précédentes SCCO qui ont volé sur la mission russe Foton M3 en 2007. Chaque cellule contient un mélange différent (3 d'intérêt «académique» plus 3 d'intérêt "industriel") sous des pressions élevées, jusqu'à 40 MPa, pour simuler les conditions du réservoir.

Projet 6

Intitulé: DCMIX.

Financeur: ESA

Montant : 2M€

Rôle: chercheur

Porteur principal: Ziad Saghir (Canada)

Durée: 2010-2017

Description: Avec l'objectif à long terme de comprendre la thermodiffusion de mélanges multiconstituants, un nombre d'études sur des mélanges ternaires a été réalisé très récemment. Ces résultats restent rares et pas toujours en accord. Pour cette raison, le projet DCMIX (Diffusion Coefficients in ternary MIXtures) a été mis au point pour établir des valeurs de coefficients de diffusion et de thermodiffusion de mélanges ternaires de référence pour développer les théories et les modèles numériques. Le projet DCMIX provient de la fusion des propositions AO-2009-858 et AO-2009-1056 faites lors des appels à projet de l'ESA de novembre 2009 dans la thématique « Physique des Fluides et Sciences des Matériaux ». Il a pour objectifs le développement des techniques expérimentales pour mesurer les propriétés de transport de mélanges ternaires et l'application de ces techniques sur des liquides de référence pour des expériences à bord de l'ISS, grâce à l'équipement SODI installé dans la GLOVEBOX, afin de bénéficier d'un environnement absent de convection. L'analyse des cinétiques et des amplitudes des variations des indices de réfraction par interférométrie optique permet d'obtenir les valeurs des coefficients de transport des mélanges. Dans ce projet plusieurs campagnes de mesures sont prévues. Les expériences DCMIX1 et DCMIX2 ont déjà eu lieu. Les mélanges de DCMIX3 sont en attente d'être livrés à bord de l'ISS suite à l'accident d'Orbital-3 en 2014. Les mélanges pour l'expérience DCMIX4 sont en cours de discussion par le Topical Team « Diffusion in non-metallic mixtures » de l'ESA dont notre laboratoire fait part.



Figure 7.3 – L'astronaute canadien Robert Thirsk installe SODI dans la GLOVEBOX à bord de l'ISS.

Projet 7

Intitulé: Dynamic Near Field Imaging, **DyNeFI**.

Financeur: EU, FP7

Montant : 184K€

Rôle: porteur

Porteur principal: Fabrizio Croccolo

Durée: 2010-2012

Description: La Diffusion de la Lumière Dynamique (Dynamic Light Scattering ou DLS en anglais) est une technique très répandue pour mesurer les propriétés des fluides et la matière molle. Il est utilisé pour étudier les fluides complexes, les colloïdes, les protéines, les nano-particules, mais également des échantillons d'intérêt bio-physique et médical. La disponibilité de capteurs pixelisés comme les caméras CCD et des ordinateurs rapide a permis la conception de différentes techniques d'imagerie visant à fournir la même information quantitative. La Dynamic Near Field Imaging (DyNeFI) est une famille de nouvelles techniques optiques de ce genre. Différentes variantes de cette nouvelle approche ont été conçues et utilisées avec succès pour des mesures très raffinées, néanmoins la communauté de la matière molle n'est pas encore au courant de cette possibilité intrigante. Ce projet vise à accroître les capacités de mesure du DyNeFI par l'intégration des nouveaux concepts de mesure, en l'appliquant à des échantillons provenant de différents domaines de recherche offrant ainsi de nouveaux instruments qui puissent être commercialisés dans un avenir prochain. Essentiellement, le projet peut être divisé en trois modules: A) Études sur la dynamique de la transition entre les vagues capillaires et les fluctuations de non-équilibre dans un mélange binaire critique proche d'une transition de phase afin d'obtenir un aperçu plus profond de la dissolution d'une interface entre deux phases fluides et fournissent également un outil pour mesurer la tension de surface efficace B) Application de la technique à des mesures de micro-rhéologie, afin de comparer la technique Dy-NeFI avec d'autres outils de mesure des propriétés visco-élastiques des fluides complexes C) Extension de la technique de dynamique rapide, par le biais de micro-miroir, afin de surmonter l'inconvénient majeur de la technique, qui est la capacité limitée d'étudier des dynamiques rapides.

Projet 8

Intitulé : Nanoscale optics and scattering in complex dielectric structures.

Financier : SNSF (CH)

Montant : 890K CHF

Rôle : chercheur

Porteur principal : Frank Scheffold (Université de Fribourg, CH)

Durée : 2010-2013

Description : Ce projet prévoit un plan ambitieux d'accroître substantiellement et de réorienter nos recherches dans le domaine de la nano-optique, matériaux photoniques et la microscopie en profitant de la nouvelle infrastructure de laboratoire disponibles depuis le début de 2010. Dans notre plan de recherche, nous mettons en avant un certain nombre de nouveaux concepts et approches expérimentales. Le plan de recherche est organisé en trois parties distinctes. La première partie aborde les propriétés optiques des dits métamatériaux en profitant de notre nouveau nanolithographie 3D. La deuxième partie de notre proposition est intimement liée à la première. Ici, nous voulons étudier les propriétés des points émetteurs dans des environnements diélectriques complexes. Ce projet permettra de profiter de la nouvelle station de travail microscopie Nikon A1R récemment installé dans notre laboratoire. Enfin dans la troisième partie nous voulons régler certains problèmes très intéressants à l'interface entre la matière molle et de la photonique. Nous prévoyons d'utiliser des pièges optiques pour manipuler les nanoparticules douces et étudier leur interaction dans un "microrhéologie active" approche. Nous prévoyons également de mettre en œuvre d'autres techniques de Microrhéologie base de microscopie tels que un et deux points suivi de particules microrhéologie.

Projet 9

Intitulé : Hidrodinámica fluctuante y transporte difusivo en mezclas líquidas ternarias.

Acronym : HidroFluTer

Financier : EL PROGRAMA ESTATAL DE FOMENTO DE LA INVESTIGACIÓN CIENTÍFICA Y TÉCNICA DE EXCELENCIA, SUBPROGRAMA ESTATAL DE GENERACIÓN DEL CONOCIMIENTO, MINISTERIO DE ECONOMÍA Y COMPETITIVIDAD (ES)

Montant : 65K EUR

Rôle : chercheur

Porteur principal : M. Mounir Bou-Ali (Université de Mondragon, ES)

Durée : 2015-2018

Description : Ce sous-projet a un double objectif. D'une part, d'apporter un soutien théorique aux mesures expérimentales du projet principal (TERDISOMEZ) et, de manière plus générale, à l'ensemble de la communauté ESA-DCMIX. D'autre part, de poursuivre les études théoriques sur la fluctuation hydrodynamique de non-équilibre mélanges ternaires. Le premier objectif sera poursuivi par deux chemins. A) Pour étudier les limites théoriques, la matrice de diffusion et les deux coefficients de thermodiffusion un mélange ternaire générique, doivent avoir les bords du triangle de la concentration sont abordés (limites binaires). B) Une comparaison critique des modèles disponibles pour les potentiels chimiques des mélanges ternaires DCMIX, visant à réduire le nombre de paramètres libres dans le montage de courbes expérimentales, brisant le paramètre dégénérescence qui complique la modélisation de ces courbes, et de rendre les résultats plus fiable. En ce qui concerne le deuxième objectif principal du sous-projet, l'idée est d'inclure la gravité et le confinement dans les hydrodynamique fluctuants de mélanges liquides ternaires soumis à un gradient de température. Des études préliminaires ont montré que les mesures de diffusion de lumière pourrait conduire à une nouvelle technique optique pour la quantification des propriétés thermodynamiques de mélanges à plusieurs, comme cela est le cas dans des mélanges binaires. Cependant, une évaluation complète de la faisabilité de la technique nécessite d'abord l'incorporation de la gravité et de confinement à la théorie. Tous ces développements seront menées en étroite coopération avec le groupe Mondragon, ainsi qu'avec la communauté plus large impliqué dans l'expérience de l'ESA-DCMIX. En outre, le chercheur principal du sous-projet actuel préside le Comité d'organisation de la prochaine réunion internationale sur thermodiffusion (IMT12) qui aura lieu à Madrid en Juin 2016. Le soutien par le biais de ce projet à IMT12 est une merveilleuse occasion de renforcer ces collaborations et d'améliorer la visibilité internationale du projet lui-même et, de manière plus générale, de la science fait en étroite coopération entre différentes Républiques autonomes du Royaume d'Espagne.

7.2 Collaborations internationales et/ou nationales et insertion dans un réseau international et/ou national

7.2.1 Collaborations internationales

Période : 2000 – actuel

Collaborateur : Alberto Vailati

Affiliation : Département de Physique, Université de Milano (IT)

Calendrier :

juin 2000 - janvier 2006 Stage de Licence et Doctorat de F. Croccolo à l'Université de Milano (IT).

mai 2012 Séjour d'une semaine de A. Vailati à l'Université de Fribourg (CH).

décembre 2013 Séjour d'une semaine de F. Croccolo à l'Université de Milano (IT).

Objet de la collaboration :

La collaboration scientifique porte sur l'étude expérimentale de la convection dans des mélanges binaires de liquides sous stress thermique et dans une condition de couche légèrement inclinée. Cette collaboration a appuyé aussi sur deux stage de Licence qui se sont déroulées en 2012 et 2013 avec co-encadrement de A. Vailati et F. Croccolo.

Portée des travaux: 2 article dans des revues à comité de lecture, 2 conférences invitées, 2 communications sans actes.

Période : 2000 – 2008

Collaborateur : David S. Cannell

Affiliation : Département de Physique, Université de California - Santa Barbara (US)

Calendrier :

juin 2000 - janvier 2006 Séjour d'une semaine de D.S. Cannell à l'Université de Milano (IT).

Objet de la collaboration :

La collaboration scientifique porte sur l'étude expérimentale des fluctuations de non équilibre de la concentration pendant des processus de diffusion isotherme de la masse. Cette collaboration a constitué un lien très important entre les deux Universités de Milano et Santa Barbara, ce qui a permis d'avancer sur le projet GRADFLEX qui a volé en 2007 sur le satellite russe FOTON M3.

Portée des travaux : 3 article dans des revues à comité de lecture, 1 chapitre de livre, 3 communications sans actes.

Période : 2011 – actuel

Collaborateur : José María Ortiz de Zárate

Affiliation : Département de Physique, Complutense - Madrid (ES)

Calendrier :

mars 2014 - juin 2014 Séjour de trois mois de J.M. Ortiz de Zárate à l'Université de Pau (FR).

mars 2015 Séjour de deux semaines de J.M. Ortiz de Zárate à l'Université de Pau (FR).

Objet de la collaboration :

Développement de la théorie des fluctuations de non-équilibre de la concentration pour inclure l'effet du confinement aussi bien que extension à des mélanges ternaires.

Portée des travaux : 1 article dans des revues à comité de lecture, 3 communications sans actes, 2 articles soumis.

Période : 2010 – actuel

Collaborateur : Frank Scheffold

Affiliation : Département de Physique, Fribourg (CH)

Calendrier :

novembre 2010 - octobre 2012 Postdoctorat de deux ans de F. Croccolo à l'Université de Fribourg (CH).

Objet de la collaboration :

Développement de techniques optiques de diffusion dynamique de la lumière dans le champ proche.

Portée des travaux : 5 article dans des revues à comité de lecture, 1 conférences invitées, 3 communications sans actes.

Période : 2014 – actuel

Collaborateur : Aleksandar Donev

Affiliation : Courant University, New York (US)

Calendrier :

juin 2014 Séjour d'une semaine de A. Donev à l'Université de Pau (FR).

Objet de la collaboration :

Exécution de simulations numériques sur les fluctuations de non-équilibre de la concentration incluant l'effet du confinement.

Portée des travaux : 1 article soumis.

Période : 2010 – actuel

Collaborateur : M. Mounir Bou-Ali

Affiliation : Université privée de Mondragon, Mondragon (ES)

Calendrier :

juin 2014 Séjour d'une semaine de M.M. Bou-Ali à l'Université de Pau (FR).

avril 2015 - juin 2015 Stage de trois mois de I. Lizarraga Lizarraga à l'Université de Pau (FR)..

Objet de la collaboration :

Exécution des mesures de coefficient de transport de masse dans des mélanges binaire et ternaires liées au projets DCMIX et SJ10-SCCO.

Portée des travaux : 2 article dans des revues à comité de lecture, 1 article soumis.

7.2.2 Insertion dans un réseau international et/ou national

7.2.2.1 Associations

Institut CARNOT ISIFoR Institute for the Sustainable Engineering of Fossil Resources (→ *web*)

Topical Team ESA Diffusion in non-metallic liquids

7.2.2.2 Réseaux

GdR MFA Groupe de Recherche Microgravité Fondamentale et Appliquée

OSA Optical Society of America (→ *web*)

CNES Centre National d'études spatiales (→ *web*)

SIF Società Italiana di Fisica (→ *web*)

7.3 Organisation de manifestations scientifiques et diffusion en direction du public

7.3.1 Colloques ou congrès

Intitulé: International Meeting on Thermodiffusion 11

Thématique: Thermodynamique de non-équilibre

Responsabilité: Co-organisateur principal avec Henri Bataller

Date: 2-6 juin 2014

Chapter 8

Encadrement et co-encadrement d'étudiants

Thèse 1 : Lionel Ecay

Sujet : Évolution des propriétés de transfert et maîtrise du confinement d'une enceinte en accident

Part d'encadrement : 33%

Dates : septembre 2014 - présent

Résumé : Cette thèse se place dans le cadre du projet ANR RSNR 'Maîtrise du confinement d'une enceinte en accident' (MACENA) qui vise à caractériser le comportement d'une enceinte de confinement en béton précontraint sous accident grave (du type Fukushima).

L'accident grave est défini par un chargement en pression interne de 5 bars et en température maintenu pendant 2 semaines. L'enceinte de confinement est la troisième et dernière barrière de la centrale permettant d'isoler le réacteur et son circuit primaire, du circuit secondaire et du reste des installations. Dans le cas d'un accident, et après rupture des deux premières barrières d'isolement (gaine de combustible et circuit primaire), l'enceinte de confinement dernière barrière permettant d'empêcher la dispersion de radionucléide.

Durant un accident grave, la pression interne reste inférieure à la pression maximale admissible par le matériau, et donc l'intégrité de la structure est préservée. Cependant, les propriétés de transfert peuvent être fortement modifiées et donc les propriétés de confinement, notamment pour les réacteurs de type N4 – 1300MW où la confinement est uniquement réalisé au travers de l'enceinte en béton précontraint.

La thèse proposée vise à étudier des lois constitutives décrivant les couplages endommagement/propriétés de transfert validées par comparaisons expérimentales à l'échelle du laboratoire. Elle est composée d'une partie de modélisation qui passe par l'exécution des simulations numériques aussi bien que d'une partie expérimentale sur laquelle j'interviens pour des manipulations visant à étudier le déplacement d'une front phase gaz traversant un milieu poreux saturé d'une phase liquide du même liquide. La partie expérimentale est pour l'instant en phase de montage.

Thèse 2 : Cédric Giraudet

Sujet : Contribution à l'étude de la thermodiffusion de mélanges binaires en conditions de réservoirs

Part d'encadrement : 33%

Dates : novembre 2012 - mars 2015

Résumé : La thermodiffusion, également appelé effet Soret, décrit le couplage entre les gradients de température et les flux massiques qui en résultent. Ce phénomène intervient dans de nombreux processus naturels et applications technologiques. Les réservoirs géologiques impliquent des fluides multi constituants en phases liquides, gaz ou supercritiques, mono ou poly-phasiques, des gradients de températures, et par conséquent, de nombreux processus de transferts en milieu poreux. Dans ce mémoire, nous présentons une étude de la thermodiffusion de mélanges binaires représentatifs de deux coupes de fluide pétrolier, à savoir le mélange équimassique tétraline/dodécane (en phase liquide) et le mélange dioxyde de carbone/méthane (en phases gaz et supercritique). Les propriétés thermophysiques d'intérêt via des mesures expérimentales et/ou des corrélations et calculs théoriques ont été déterminées en fonction de la pression. Afin d'établir des valeurs de références sous haute pression des coefficients de diffusion et Soret, nous avons développé une cellule de thermodiffusion en milieu libre qui permet d'étudier par shadowgraphie les fluctuations de non équilibre induites par effet Soret. L'analyse dynamique des images a permis de mettre en évidence un effet du confinement de la cellule sur les fluctuations, ce qui nous a conduit à établir une équation phénoménologique pour les temps de relaxations des fluctuations en fonction du vecteur d'onde. Nous avons pu déterminer les coefficients de diffusion et Soret en fonction de la pression pour le mélange tétraline/dodécane. Aux incertitudes près, nous observons une décroissance linéaire avec la pression pour les coefficients. Nous retrouvons aussi, et pouvons généraliser, la dépendance des coefficients de diffusion, Soret et de thermodiffusion avec l'inverse de la viscosité dynamique. L'analyse statique du mélange dioxyde de carbone/méthane quant à lui montre bien une croissance rapide de l'amplitude des fluctuations avec la pression jusqu'à un seuil au-delà duquel elle décroît ; l'analyse dynamique quant-à elle a montré une cinétique difficilement accessible de par les limites physiques et informatiques du dispositif expérimental utilisé. La diminution du pas d'acquisition entre deux images est donc un enjeu majeur dans l'évolution de la technique pour la mesure des coefficients de transports. Afin d'avoir une évaluation quantitative du coefficient Soret pour le mélange dioxyde de carbone/méthane, nous avons effectué une série de simulations par dynamique moléculaire en intégrant le moment quadripolaire du dioxyde de carbone. Les résultats sont en bon accord avec les prédictions théoriques.

Portée des travaux : 3 articles dans des revues à comité de lecture, 2 communications avec actes, 2 communications sans actes.

Devenir du docteur : Thèse soutenue le 30/03/2015. Actuellement PostDoc au LTT du Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg (DE).

Stage Licence 1 : Samuele Geretti

Sujet : Étude des fluctuations de non équilibre dans des processus de diffusion libre par techniques optiques de champ proche

Part d'encadrement : 50%

Dates : juin 2014 - décembre 2014

Résumé : Les fluides peuvent être décrits à l'échelle mésoscopique par des états macroscopiques caractérisés par des fluctuations statistiques d'origine thermique qui se produisent spontanément autour des propriétés moyennes. Pour un système dans des conditions de non-équilibre dans lequel est présent un gradient de concentration on peut observer un couplage entre les fluctuations de la vitesse et celles de la concentration. La dissipation des fluctuations se fait par deux processus différents: la poussée d'Archimède et la diffusion de masse selon la taille des fluctuations eux-mêmes. On peut détecter une valeur critique de taille qui discrimine les deux processus: les fluctuations plus larges sont dissipées par la force de gravité, les plus petites en raison de la diffusion. Le but de ce travail est la construction d'un système optique pour l'étude des fluctuations de la concentration dans un processus de diffusion libre dans des conditions hautement non-linéaires : à savoir des mélanges d'eau et de glycérine. Les deux liquides ont des propriétés thermodynamiques très différentes. Par exemple, la viscosité de la solution de glycérine 95% en masse correspond à 700 fois celle de l'eau. Cela empêche de considérer la valeur des coefficients de transport uniforme dans le mélange, tels que le coefficient de diffusion D , qui est l'une des grandeurs fondamentales du liquide.

Portée des travaux : Analyse des données en cours d'exploitation.

Stage Licence 2 : Matteo Italia

Sujet : Étude expérimentale de mouvements de convection pour un nano-fluide en condition de couche limite inclinée

Part d'encadrement : 50%

Dates : mai 2013 - octobre 2014

Résumé : La convection est un des phénomènes des plus intéressante et répandue pour un fluide sous l'action d'un gradient thermique ; elle apparaît sur des échelle de temps et d'espace très différentes: dans les mers, dans le motif formé sur le fond d'un lac sec, dans les mouvements du gaz dans l'atmosphère, dans les courants de magma du manteau, etcétera. Bien que ces phénomènes se produisent sur des ordres de grandeur très diverses, la définition des variables adimensionnelle permet de modéliser les caractéristiques des systèmes de taille énorme ou à des températures caractéristiques prohibitifs dans un laboratoire ordinaire. Dans cette ouvrage, nous reportons un étude préliminaire sur la convection solutale d'un nanofluide sujet à un gradient de température dans une cellule inclinée. Ce fluide est positionné dans une cellule fermée mince et chauffée par le bas pour obtenir de la convection du type Rayleigh-Bénard ; dans ce cas la différence de température génère une différence de densité dans le fluide, qui, grâce à la poussée d'Archimède déterminé par la dilatation thermique, génère de la convection démarre à condition que le nombre de Rayleigh (rapport entre l'importance du transfert de chaleur par convection et conduction) dépasse un certain seuil critique. Dans le cas d'un mélange binaire, aux forces d'Archimède s'ajoute l'effet Soret qui détermine un flux relatif des deux composants dans des directions opposées le long de la direction du gradient thermique. La convection de Rayleigh-Bénard a tendance à générer des motifs caractéristiques : le rouleau classique (longs cylindres parallèles) près du seuil de la convection, ou, pour des numéros de Rayleigh plus élevés des formes polygonaux caractérisés par des structures colonnaires où le fluide en convection monte ou descend. Pour un système en convection, nous pouvons ajouter une perturbation supplémentaire: l'inclinaison de la cellule, ce qui va à rompre la symétrie du problème. En général, l'effet de l'inclinaison est d'induire un flux à grande échelle (grand flux d'échelle) qui balaie toute la cellule, en concurrence avec la convection de Rayleigh-Bénard ; en fonction de l'intensité de la convection et de la perturbation, le système peut réagir de différentes manières. Dans ce travail, on étudie l'effet de cette inclinaison sur un fluide composé de sphères de silice nanométriques (diamètre de 22nm) en suspension dans de l'eau distillée, déjà utilisé dans le passé pour d'autres études sur la convection, mais jamais dans la présence d'inclinaison.

Portée des travaux : 1 articles dans des revues à comité de lecture, 1 communications sans actes.

Stage d'été 1 : Giovanni Cerchiari

Sujet : Développement d'un logiciel parallèle pour calcul de la fonction de structure à partir d'un ensemble d'images

Part d'encadrement : 50%

Dates : juin 2011 - juillet 2011

Résumé : L'algorithme dynamique différentiel passe par une analyse statistique très lourde (ordre de 10Go de données traitées à la fois) et comporte donc un gros travail au niveau computationnel. Cela impose donc une optimisation poussée du logiciel et notamment l'utilisation du calcul parallèle sur carte graphique en langage C++/ CUDA. Nous avons développé une implémentation de l'analyse des données par 'dynamic Shadowgraph' en utilisant un processeur graphique GPU. L'optimisation est passée par un nouvel système de gestion de données visant à limiter ainsi le nombre d'opérations nécessaires. Dans l'ensemble, nous avons réduit le temps de traitement de quelques heures à quelques minutes, pour des conditions expérimentales typiques. Le temps de traitement, qui était auparavant l'étape limitante dans ces expériences, est actuellement comparable au temps d'acquisition de données. Cette approche et le logiciel qui a été développé sont applicables à diverses méthodes optiques dynamiques, y compris shadowgraph, Schlieren et microscopie dynamique différentielle.

Portée des travaux : 1 articles dans des revues à comité de lecture, 1 communications sans actes.

Stage Master 1 : Antonella Quintini

Sujet : Caractérisation d'une source de plasma inductive à basse pression

Part d'encadrement : 50%

Dates : mai 2008 - octobre 2008

Résumé : L'étude des plasmas froids est actuellement d'un grand intérêt pour sa large gamme d'applications dans le traitement de surface des matériaux. Chaque processus de traitement au plasma nécessite des conditions de travail spécifiques et contrôlés, d'où la nécessité de caractériser le plasma de manière adéquate par la mesure de certains paramètres de base tels que la température électronique ou la densité des espèces à l'état gazeux. L'objectif de cette thèse était de caractériser et optimiser une source de plasma à basse pression par source inductive. Dans ce type de source le plasma est alimentée par un champ électrique induit par le champ électromagnétique généré par une antenne située à l'extérieur de la chambre à vide. Le couplage entre l'antenne et le gaz résiduel peut avoir lieu en modalité inductive ou capacitive selon le comportement dominant. La phase de caractérisation de la machine a prévu la conception et la construction d'une sonde de Langmuir bien protégée du champ électromagnétique produit par l'antenne. Cette nouvelle sonde a permis d'effectuer des mesures de la température électronique du plasma aussi bien que de la densité du gaz de travail. On a donc pu mesurer la transition entre le couplage capacitive et inductive de la source de plasma en fonction de la puissance utilisée.

Portée des travaux : 2 articles dans des revues à comité de lecture, 2 communications sans actes.

Chapter 9

Participation éventuelle à des tâches administratives, à des activités d'enseignement, ou expérience en entreprise

9.1 Activités d'enseignement

- Intitulé :** Maîtrise des risques
Niveau : ISABTP 5ème année
Nombre d'heures : 2015-2016, 2014-2015 et 2013-2014 : 3 x 52 HeqTD (Cours/TD)
établissement : Institut Supérieur Aquitain du Bâtiment et des Travaux Publics (ISABTP), Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA).
- Intitulé :** Mathématiques - Fourier et Laplace
Niveau : ISABTP 3ème et 4ème année
Nombre d'heures : 2014-2015 : 36 HeqTD (TD), 2013-2014 : 18 HeqTD (TD)
établissement : Institut Supérieur Aquitain du Bâtiment et des Travaux Publics (ISABTP), Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA).
- Intitulé :** Mathématiques - Statistique descriptive
Niveau : ISABTP 1ème
Nombre d'heures : 2014-2015 et 2013-2014 : 2 x 18 HeqTD (TD)
établissement : Institut Supérieur Aquitain du Bâtiment et des Travaux Publics (ISABTP), Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA).
- Intitulé :** Laboratoire de Physique
Niveau : ISABTP 2ème
Nombre d'heures : 2014-2015 et 2013-2014 : 2 x 20 HeqTD (TP)

établissement : Institut Supérieur Aquitain du Bâtiment et des Travaux Publics (ISABTP), Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA).

5. **Intitulé** : Optique ondulatoire

Niveau : Licence Physique 3ème

Nombre d'heures : 2012-2013 : 20 HeqTD (TD)

établissement : UFR Sciences et Techniques Côte Basque, Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA).

6. **Intitulé** : Laboratoire de Physique

Niveau : Licence de Physique 3ème

Nombre d'heures : 2010-2011 et 2011-2012 : 2 x 20 HeqTD (TP)

établissement : Département de Physique, Université de Fribourg (CH).

7. **Intitulé** : Laboratoire de Physique

Niveau : Licence Physique 2ème

Nombre d'heures : 2009-2010 : 20 HeqTD (TP)

établissement : UFR Sciences et Techniques Côte Basque, Université de Pau et des Pays de l'Adour (UPPA).

8. **Intitulé** : Physique I

Niveau : Licence de Physique 1ère

Nombre d'heures : 2008-2009 : 40 HeqTD (TD)

établissement : Département de Physique, Université de Milano (IT).

9. **Intitulé** : Physique II

Niveau : Licence de Physique 2ème

Nombre d'heures : 2007-2008 et 2006-2007 : 2 x 40 HeqTD (TD)

établissement : Département de Physique, Université de Milano-Bicocca (IT).

10. **Intitulé** : Fondamentaux d'électromagnétisme

Niveau : École d'ingénierie 2ème

Nombre d'heures : 2005-2006 : 35 HeqTD (TD)

établissement : Département de Physique, Université de Milano-Bicocca (IT).

11. **Intitulé** : Physique pour Médecine

Niveau : Licence de Médecine 1ère

Nombre d'heures : dès 2002-2003 au 2006-2007 : 5 x 35 HeqTD (TD)

établissement : Département de Physique, Université de Milano-Bicocca (IT).

Chapter 10

Liste des publications

10.1 Revues internationales à comité de lecture

2015

1. Guillaume Galliero, Henri Bataller, **Fabrizio Croccolo**, Romain Vermorel, Pierre-Arnaud Artola, Bernard Rousseau, Velisa Vesovic, M. Mounir Bou-Ali, José María Ortiz de Zárate and François Montel. *Impact of thermodiffusion on the initial vertical distribution of species in hydrocarbon reservoirs*. (soumis).
2. Cédric Giraudet, Henri Bataller, Yifei Sun, Aleksandar Donev, José Maria Ortiz de Zárate and **Fabrizio Croccolo**. *Slowing-down of non-equilibrium fluctuations in confinement*. (soumis).
3. **Fabrizio Croccolo** and Henri Bataller. *Editorial: Thermal non-equilibrium phenomena in multi-component fluids*. Eur. Phys. J. E, **38** 31 (2015) (\rightarrow web).

2014

4. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *Erratum: A light scattering study of non equilibrium fluctuations in liquid mixtures to measure the Soret and mass diffusion coefficient [J. Chem. Phys. 137, 234202 (2012)]*. J. Chem. Phys., **141** 219902 (2014) (\rightarrow web).
5. Cédric Giraudet, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**. *High-pressure mass transport properties by dynamic near field scattering of non-equilibrium fluctuations*. Eur. Phys. J. E, **37** 107 (2014) (\rightarrow web).
6. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *Static versus dynamic analysis of the influence of gravity on concentration non equilibrium fluctuations*. Eur. Phys. J. E, **37** 105 (2014) (\rightarrow web).
7. Matteo Italia, **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *Inclined layer convection in a colloidal suspension with negative Soret coefficient at large solutal Rayleigh numbers*. Eur. Phys. J. E, **37** 101 (2014) (\rightarrow web).
8. José María Ortiz de Zárate, Cédric Giraudet, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**. *Non-equilibrium fluctuations induced by the Soret effect in a ternary mixture*. Eur. Phys. J. E, **37** 77 (2014) (\rightarrow web).

9. Amirhossein Ahadi, Cédric Giraudet, H. Jawad, **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and M.Ziad Saghir. *Experimental, theoretical and numerical interpretation of thermodiffusion separation for a non-associating binary mixture in liquid/porous layers*. Int. J. of Thermal Sciences, **80** 108 (2014) (\rightarrow web).

2013

10. **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati. *Effect of a marginal inclination on pattern formation in a binary liquid mixture under thermal stress*. Phys. Rev. Lett., **111** 014502 (2013) (\rightarrow web).
11. **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Henri Bataller. *Mass transport properties of the tetrahydronaphthalene/n-dodecane mixture measured by investigating non equilibrium fluctuations*. C. R. Mécanique, **341** 378 (2013) (\rightarrow web).
12. Cédric Giraudet, **Fabrizio Croccolo**, Guillaume Galliero, Gilles Pijaudier-Cabot, Stefan Van Vaerenbergh, M. Ziad Saghir, Francois Montel and Henri Bataller. *Thermodiffusion of the tetrahydronaphthalene and dodecane mixture under high pressure and in porous medium*. C. R. Mécanique, **341** 340 (2013) (\rightarrow web).

2012

13. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller and Frank Scheffold. *A light scattering study of non equilibrium fluctuations in liquid mixtures to measure the Soret and mass diffusion coefficient*. J. Chem. Phys., **137** 234202 (2012) (\rightarrow web).
14. Giovanni Cerchiari, **Fabrizio Croccolo**, Frédéric Cardinaux and Frank Scheffold. *Note: Quasi-real-time analysis of dynamic near field scattering data using a graphics processing unit*. Rev. Sci. Instrum., **83** 106101 (2012) (\rightarrow web).

2011

15. Domenico Salerno, Dorian Brogioli, **Fabrizio Croccolo**, Roberto Ziano and Francesco Mantegazza. *Photon correlation spectroscopy with incoherent light*. Opt. Expr., **19** 26416 (2011) (\rightarrow web).
16. Dorian Brogioli, Domenico Salerno, **Fabrizio Croccolo**, Roberto Ziano and Francesco Mantegazza. *Speckles generated by skewed, short-coherence light beams*. New J. Phys., **13** 123007 (2011) (\rightarrow web).
17. **Fabrizio Croccolo**, Frédéric Plantier, Guillaume Galliero, Gilles Pijaudier-Cabot, M. Ziad Saghir, Frank Dubois, Stefan Van Vaerenbergh, Francois Montel and Henri Bataller. *Note: Temperature derivative of the refractive index of a binary mixtures by using a new thermodiffusion cell*. Rev. Sci. Instrum., **82** 126105 (2011) (\rightarrow web).
18. **Fabrizio Croccolo**, Marc-Alexandre Arnaud, Didier Bégué and Henri Bataller. *Concentration dependent refractive index of a binary mixture at high pressure*. J. Chem. Phys., **135** 034901 (2012) (\rightarrow web).
19. **Fabrizio Croccolo** and Dorian Brogioli. *Quantitative Fourier analysis of schlieren masks: the transition from shadowgraph to schlieren*. App. Opt., **50** 3419 (2011) (\rightarrow web).

2010

20. **Fabrizio Croccolo**, Antonella Quintini, Ruggero Barni and Claudia Riccardi. *Transition between E-Mode and H-Mode in a cylindrical Inductively Coupling Plasma reactor*. High Temperature Material Processes, **14** 119 (2010) ([→ web](#)).

2009

21. **Fabrizio Croccolo**, Antonella Quintini, Ruggero Barni, Maddalena Ripamonti, Antonio Malgaroli and Claudia Riccardi. *H-Mode Inductive Coupling Plasma for PVC Surface Treatment*. Eur. Phys. J. D, **54** 477 (2009) ([→ web](#)).
22. Dorian Brogioli, Domenico Salerno, Valeria Cassina, Stefano Sacanna, Albert P. Philipse, **Fabrizio Croccolo** and Francesco Mantegazza. *Characterization of anisotropic nano-particles by using depolarized dynamic light scattering in the near field*. Opt. Expr., **17** 1222 (2009) ([→ web](#)).

2008

23. Dorian Brogioli, **Fabrizio Croccolo**, Valeria Cassina, Domenico Salerno and Francesco Mantegazza. *Nano-particle characterization by using Exposure Time Dependent Spectrum and scattering in the near field methods: how to get fast dynamics with low-speed CCD camera*. Opt. Expr., **16** 20272 (2008) ([→ web](#)).
24. H. Eduardo Roman, **Fabrizio Croccolo** and Claudia Riccardi. *Extreme fluctuation events in a simple high-density traffic model*. Phys. A, **387** 5575 (2008) ([→ web](#)).
25. Stefano Zanini, Claudia Riccardi, Marco Orlandi, Claudia Colombo **Fabrizio Croccolo**. *Plasma-induced graft-polymerization of ethylene glycol methacrylate phosphate on polyethylene film*. Pol. Deg. and Stab., **93** 1158 (2008) ([→ web](#)).
26. **Fabrizio Croccolo** and Claudia Riccardi. *Observation of the Ion-Mirror Effect during microscopy of insulating materials*. J. Microsc., **229** 39 (2008) ([→ web](#)).

2007

27. **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Non-diffusive decay of gradient driven fluctuations in a free-diffusion process*. Phys. Rev. E, **76** 41112 (2007) ([→ web](#)).

2006

28. **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Effect of gravity on the dynamics of non equilibrium fluctuations in a free diffusion experiment*. Annals of the New York Academy of Sciences, **1077** 365 (2006) ([→ web](#)).
29. H. Eduardo Roman, Mattia Albergante, Marco Colombo, **Fabrizio Croccolo**, Francesco Marini and Claudia Riccardi. *Modeling cross-correlations within a many-assets market*. Phys. Rev. E, **73** 36129 (2006) ([→ web](#)).
30. **Fabrizio Croccolo**, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. *Use of dynamic schlieren interferometry to study fluctuations during free diffusion*. App. Opt., **45** 2166 (2006) ([→ web](#)).

10.2 Chapitres d'ouvrages scientifiques

2008

1. **Fabrizio Croccolo**, Roberto Cerbino, Alberto Vailati and Marzio Giglio. *Non-equilibrium fluctuations in diffusion experiments* in *Anomalous fluctuation phenomena in complex systems: Plasmas, Fluids and Financial Markets*. 2008: 185-210 ISBN: 978-81-308-0255-8 Editors: Claudia Riccardi and H. Eduardo Roman (Chapitre sur invitation) (\rightarrow *web*).

10.3 Productivité et citations

Nombre d'articles : 28

Citations : 190

H-facteur : 9

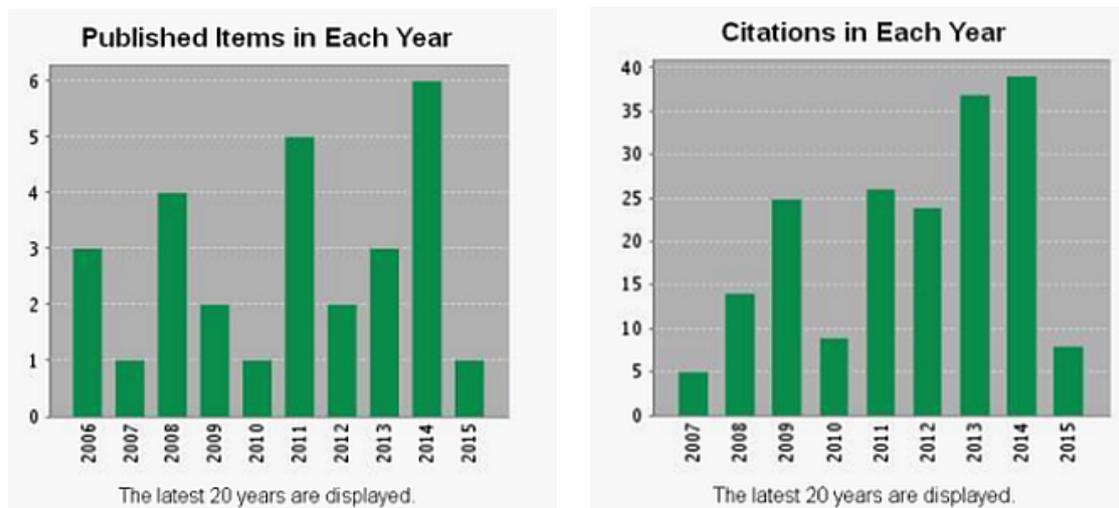


Figure 10.1 – Nombre des articles publiés et des citations par an (du site ISI Web of Knowledge).

Chapter 11

Liste des communications

*Orateur

11.1 Conférences invitées

2016

1. **Fabrizio Croccolo***, *Microgravity in a thin layer*. IMT12, International Meeting on Thermodiffusion, 30 May - 3 June 2016, Madrid (ES) (\rightarrow *web*).

2014

2. **Fabrizio Croccolo**, Frank Scheffold and Alberto Vailati*, *Counterflow, in a row! Super-highway convection in an inclined liquid mixture*. IMT11, International Meeting on Thermodiffusion, 2-6 June 2014, Bayonne (FR) (\rightarrow *web*).

2013

3. **Fabrizio Croccolo***, Frank Scheffold and Alberto Vailati, *Moving in a line: up and down an incline*. Pattern Creation in Nature and Materials, 6-9 October 2013, Bayreuth (DE) (\rightarrow *web*).

11.2 Communications avec actes et sélection sur résumé

2010

1. **Fabrizio Croccolo**, Henri Bataller*, Frédéric Plantier and Gilles Pijaudier-Cabot, *Measurement of thermodiffusion coefficient for binary hydrocarbon fluid mixtures in porous medium*. IMT9, International Meeting on Thermodiffusion, 7-11 June 2010, Toulouse (FR) (\rightarrow *web*).

2005

2. **Fabrizio Croccolo***, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. Effect of gravity on the dynamics of non equilibrium fluctuations in a free diffusion experiment – Congrès Interdisciplinary Transport Phenomena in Microgravity and Space Sciences IV, 7-12 août 2005, Tomar (PT). Actes engconfintl 2005, cdrom.

3. **Fabrizio Croccolo***, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. Gravitational effects on the dynamics of non-equilibrium fluctuations in free diffusion processes – Congrès MMD-Meeting. Matter, Materials and Devices, 22-25 juin 2005, Genova (IT). Actes CNR 2005, cdrom.

2004

4. **Fabrizio Croccolo***, Dorian Brogioli, Alberto Vailati, Marzio Giglio and David S. Cannell. Dynamics of gradient driven fluctuations in a free diffusion process – Congrès Photon Correlation Spectroscopy, Optical Society of America, 16-18 août 2004, Amsterdam (NL). Actes OSA 2004, cdrom.

11.3 Communications sans actes avec sélection sur résumé

2015

1. Cédric Giraudet, Henri Bataller, Yifei Sun, Aleksandar Donev, José Maria Ortiz de Zárate and **Fabrizio Croccolo***, *Confinement effect on the dynamics of concentration non-equilibrium fluctuations*. 19th Symposium on Thermophysical Properties, 21-26 June 2015, Boulder, CO (USA) (→ *web*).
2. Cédric Giraudet*, Henri Bataller, Gilles Pijaudier-Cabot and **Fabrizio Croccolo**, *Transport properties of the Tetrahydronaphthalene and n-Dodecane mixture at high pressure*. 19th Symposium on Thermophysical Properties, 21-26 June 2015, Boulder, CO (USA) (→ *web*).

2014

3. **Fabrizio Croccolo***, Cédric Giraudet and Henri Bataller, *About the relation between non-equilibrium fluctuations and Soret-driven convection*. IMT11, International Meeting on Thermodiffusion, 2-6 June 2014, Bayonne (FR) (→ *web*).
4. Cédric Giraudet*, Henri Bataller and **Fabrizio Croccolo**, *Experimental and numerical investigation of thermodiffusion on a CH₄/CO₂ mixture close to the critical plait point*. IMT11, International Meeting on Thermodiffusion, 2-6 June 2014, Bayonne (FR) (→ *web*).

2012

5. **Fabrizio Croccolo***, Henri Bataller and Frank Scheffold, *Observing the Soret effect in a different direction*. IMT10, International Meeting on Thermodiffusion, 4-8 June 2012, Bruxelles (BE) (→ *web*).