UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉVELOPPEMENT DE LA MÉTHODE ÉLECTRODIFFUSIONNELLE POUR LA MESURE INSTANTANÉE DES DEUX COMPOSANTES DU FROTTEMENT PARIÉTAL

MARC-ÉTIENNE LAMARCHE-GAGNON

DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION

DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIÆ DOCTOR

(GÉNIE MÉCANIQUE)

FÉVRIER 2018

© Marc-Étienne Lamarche-Gagnon, 2018.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

DÉVELOPPEMENT DE LA MÉTHODE ÉLECTRODIFFUSIONNELLE POUR LA MESURE INSTANTANÉE DES DEUX COMPOSANTES DU FROTTEMENT PARIÉTAL

présentée par : LAMARCHE-GAGNON Marc-Étienne

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiæ Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

M. PERRIER Michel, Ph. D., président

M. VÉTEL Jérôme, Doctorat, membre et directeur de recherche

M. GARON André, Ph. D., membre

M. MACIEL Yvan, Ph. D., membre externe

DÉDICACE

Quand on ne sait rien, on peut
tout de même trouver des choses,
avec de l'imagination
Boris Vian

REMERCIEMENTS

Vous n'auriez probablement pas à lire ces lignes si je n'avais eu le privilège d'effectuer mes travaux sous la supervision de mon directeur de thèse, Jérôme Vétel. J'aimerais d'abord te remercier, Jérôme, d'avoir cru en moi dès mes débuts au LADYF, ma seconde demeure, de m'avoir laissé toute cette autonomie, mais surtout pour ton support constant, ton attitude toujours positive (à mon égard du moins) et ces épisodes de méditation.

Merci aussi à André Garon pour tous ces conseils et ces séances culturelles spontanées. Je tiens également à remercier M. Vaclav Sobolík pour ce temps passé à La Rochelle, où tout a commencé. Mes (présents et anciens) collègues du LADYF qui ont su m'encourager, m'appuyer et, par moment, me faire oublier cet environnement si beige. Merci Atabak, Jade, Cédric, Yann, Pauline, Sean, Giuseppe. Richard, tu ne finiras jamais de me surprendre. Un remerciement spécial à Philippe, qui a déjà quitté depuis un certain temps, mais sans qui mon parcours aurait été si différent et tellement moins enrichissant et divertissant ; je t'en dois beaucoup.

Merci à mes amis et anciens collègues au baccalauréat qui ont contribué, autant à l'intérieur des murs de Polytechnique qu'en dehors, à me rendre jusqu'ici. Sans vouloir en oublier, merci Anouk, Jérémi, Félix, Vincent, Alex, Chapeau, Hervé, Benjamin. Nicolas, merci d'avoir maintenu la science si présente dans nos vies.

Merci à ma mère Claude, mon père Jules. Vous m'avez toujours encouragé, aidé et incité à continuer sans avoir à poser « la » question. Bien sûr, ma petite sœur Jenny que j'apprécie beaucoup et qui a continuellement cru (au meilleur de mes connaissances) en moi. À mon frère Guillaume, tu as toujours été un, mon, modèle. Merci pour tes conseils et ta gaieté phénoménale. Merci Benoit pour tous ces excellents débats.

Et surtout merci à toi, Émilie. Grâce à ton humour et ta constante jovialité, j'ai pu passer au travers ces années en conservant un esprit raisonnablement sain (au meilleur de mes connaissances). Ta patience n'a pas d'égale, tu mérites ce diplôme [1] autant que moi. Enfin, merci à mon « fils » Juju, éternelle source d'inspiration.

1. Présumant que diplôme, il y aura.

RÉSUMÉ

Les travaux de cette thèse portent sur le développement de la méthode électrodiffusionnelle (ED), technique de mesure du cisaillement d'un fluide sur une paroi, en vue d'étendre son domaine d'utilisation et d'améliorer ses performances. Un post-traitement de données particulier a notamment été élaboré, permettant d'évaluer le module et la direction du gradient pariétal de vitesse instantané dans un écoulement instationnaire exposant de fortes fluctuations.

Le principe derrière la méthode ED est, à la base, électrochimique : des ions contenus dans un fluide sont impliqués dans une réaction d'oxydoréduction se produisant à l'interface d'une sonde intégrée à la paroi. Sous certaines conditions (généralement peu contraignantes), il est possible de relier le courant électrique généré par cette réaction ou *transfert de masse* au gradient pariétal de vitesse du fluide. Toutefois, les modèles classiquement utilisés pour effectuer cette conversion limitent largement les performances des sondes ED lorsque des effets instationnaires et tridimensionnels apparaissent dans l'écoulement. Une approche novatrice est proposée dans cette thèse pour faire face à une telle situation, basée sur l'utilisation d'un *problème inverse* bidimensionnel. Cette démarche demande de résoudre numériquement les équations gouvernant la réaction électrochimique se déroulant à la sonde, laquelle peut essentiellement être représentée par l'équation de convection–diffusion (CD) des ions impliqués.

Alors qu'un problème inverse avait déjà été utilisé avec la méthode ED avant les travaux présents, il n'avait été développé que pour la mesure du module du gradient pariétal de vitesse. Une hypothèse à la base de cette thèse est que, en ajoutant une dimension à ce problème, sa direction devient aussi accessible. Cette adaptation est possible grâce à l'usage d'une sonde dite tri-segmentée, capteur circulaire divisé en trois secteurs uniformes. Dans ces travaux, les équations définissant ce problème bidimensionnel sont d'abord développées et mènent ensuite à l'algorithme de résolution du problème inverse. Puis, l'approche est validée en simulant numériquement des mesures de sondes ED dans diverses conditions d'écoulement.

Afin d'étudier le comportement fréquentiel des sondes ED et de compléter la validation du problème inverse, deux bancs de mesures ont été conçus et développés dans le cadre de cette thèse. Le premier consiste en un tunnel hydraulique, comportant une section d'essai formée de deux plaques parallèles séparées par un très mince interstice, de façon à générer un écoulement de Poiseuille caractérisé par un cisaillement élevé. Un dispositif de pulsation permet d'ajouter des fluctuations périodiques de forte amplitude à l'écoulement. Dans le second banc d'essai, les mesures sont plutôt effectuées à proximité d'un cylindre en rotation, se déplaçant suivant

un mouvement oscillatoire dans un fluide très visqueux, ce qui réduit fortement la diffusivité électrochimique du mélange et constitue un environnement difficile pour un capteur ED. Ainsi, ces deux bancs d'essai originaux permettent de tester exhaustivement le problème inverse bidimensionnel dans des écoulements exposant une variation périodique des deux composantes du gradient pariétal de vitesse. Des fluctuations d'amplitude élevée peuvent être générées sur une vaste gamme de fréquences, incluant des configurations avec changement de sens du cisaillement. Les résultats sont comparés à des mesures complémentaires du gradient pariétal de vitesse, disponibles grâce à des dispositifs d'anémomètre Doppler à laser (LDA) et de vélocimétrie par images de particules (PIV). Un bon accord est noté dans l'ensemble, validant ainsi l'approche proposée.

Ces expérimentations mènent également au développement d'une procédure particulière pour le pré-traitement des données, permettant notamment de mieux lier les mesures de sondes réelles au modèle numérique utilisé dans le problème inverse. Une procédure alternative est aussi proposée, utile notamment dans une situation où l'étalonnage d'une sonde ne peut être réalisé.

Mis à part les réalisations entourant le problème inverse, plusieurs résultats présentés dans cette thèse touchent des aspects plus généraux de la méthode ED, considérant que cette technique de mesure est, d'une part, peu répandue en dynamique des fluides. D'autre part, des phénomènes électrochimiques particuliers peuvent altérer le transfert de masse mesuré par une sonde. Alors que ces effets sont bien connus et maitrisés par les électrochimistes, leur influence sur le signal d'une sonde ED est plutôt méconnue et peu détaillée dans la littérature. Certains de ces phénomènes sont donc analysés dans ce document et des considérations expérimentales sont proposées. Une pratique alternative pour l'étalonnage des sondes est également présentée.

Enfin, puisque la réaction ED se déroule très près de la paroi, un profil de vitesse linéaire est généralement supposé au niveau de la sonde. La validité de cette hypothèse, à la base de bien des modèles de post-traitement d'un signal ED, est aussi étudiée dans un écoulement instationnaire où la linéarité du profil de vitesse n'est nettement pas respectée en proche paroi.

ABSTRACT

This thesis deals with the development of the electrodiffusion method (ED), a wall shear stress measurement technique for fluid flows, in order to enlarge its scope and improve its performance. In particular, a specific data post-processing is elaborated to assess the instantaneous two-dimensional wall shear rate, namely its magnitude and direction, in high amplitude unsteady flows.

The fundamental principles behind the ED method are essentially electrochemical: ions contained in a fluid are involved in a redox reaction occurring at the very interface between the fluid and a probe, which is flush mounted to a wall. Under certain general (but not very constraining) hypotheses, it is possible to relate the electric current generated by this reaction or *mass transfer* to the fluid wall shear rate. However, models usually used to perform this conversion largely limit the performance of ED probes when unsteady and three-dimensional effects are encountered. An original approach is proposed in this thesis to deal with such a situation, based on a two-dimensional *inverse problem*. This method requires to numerically solve the equations governing the electrochemical reaction, which can essentially be represented by the convection-diffusion (CD) equation of the ions involved.

While an inverse problem had already been used with the ED method before the present work, the available approach could only retrieve the magnitude of the wall shear rate. One fundamental hypothesis behind this thesis is that, by adding a dimension to this problem, the shear rate direction also becomes accessible. Such an adaptation is possible thanks to the use of the so-called three-segment probe, circular sensor divided into three uniform sectors. In this work, equations characterizing this two-dimensional inverse problem are first developed and a general algorithm is elaborated. The approach is then validated using a numerically generated database of mass transfer data corresponding to various flow conditions.

In order to study the frequency response of ED probes and to complete the validation process of the inverse problem, two test benches were designed and built within the framework of this thesis. The first one generates a two-dimensional Poiseuille flow in a very thin channel so as to obtain a high shear rate flow under laminar conditions. Periodic fluctuations can be added to this flow using a piston pump. In the second apparatus, measurements are rather carried near a rotating and translating cylinder in a highly viscous fluid. The fluid's nature was such that the electrochemical diffusivity of the mixture is greatly reduced, thus establishing a harsh environment for an ED sensor. Hence, using these two original benches, exhaustive tests of the two-dimensional inverse problem are achieved in flows exhibiting a

periodic variation of the two component wall shear rate. High amplitude fluctuations can be generated over a broad range of frequencies, including shear-reversal configurations. Results are compared with complementary measurements of the wall shear rate, available through laser Doppler anemometry (LDA) and particle image velocimetry (PIV) devices. In general, good agreements are noted, thus validating the proposed approach.

These experiments also lead to the elaboration of a specific procedure for data pre-processing, allowing one to better link measurements of real probes to the numerical model used in the inverse problem. An alternative procedure is also proposed for data processing, especially useful in situations where a probe calibration cannot be performed.

Beside the achievements surrounding the inverse problem, several results presented in this thesis concern general aspects of the ED method, considering that this measurement technique is, on the one hand, not very widespread in fluid dynamics. On the other hand, particular electrochemical phenomena can alter the mass transfer measured by a probe. While these effects are well known and mastered by electrochemists, their influence on an ED probe signal is rather misknown and only few details can be found in the literature. Some of these phenomena are therefore analyzed in this document and experimental considerations are suggested. An alternative ED probe calibration procedure is also proposed.

Since the ED reaction occurs very close to the wall, a linear velocity profile is generally assumed in the probe's vicinity. The validity of this hypothesis, which is at the basis of many post-processing models for ED probe signals, is also analyzed in an unsteady flow exposing periodic shear reversal phases.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE iii

REMERCIEMENTS iv

RÉSUMÉ v

ABSTRACT vii

TABLE DES MATIÈRES ix

LISTE DES TABLEAUX xiii

LISTE DES FIGURES xiv

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS xviii

LISTE DES ANNEXES xix

CHAPITRE 1 INTRODUCTION 1
- 1.1 Cadre théorique et motivation 1
- 1.2 Problématique 1
- 1.3 Objectifs de recherche et méthodologie 3
- 1.4 Structure de la thèse 4

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE 6
- 2.1 Débuts de la méthode ED 6
- 2.2 Concepts électrochimiques 7
  - 2.2.1 Courant limite 9
  - 2.2.2 Modes de transfert de masse 10
  - 2.2.3 Équation de convection–diffusion 11
  - 2.2.4 Dynamique de la couche de diffusion 11
- 2.3 Principe de la méthode ED 12
  - 2.3.1 Mesure du transfert de masse 13
  - 2.3.2 Relation avec le gradient pariétal de vitesse 14
  - 2.3.3 Mesures en régime stationnaire 15
- 2.4 Types de sondes ED 17

2.5 Mesure du gradient pariétal de vitesse instationnaire 21
2.5.1 Méthode spectrale 22
2.5.2 Méthode de Sobolík 24
2.5.3 Méthode inverse 28
2.5.4 Méthodes directes alternatives 34
2.6 Considérations expérimentales 35
2.6.1 Électrodes et pré-traitements 35
2.6.2 Électrolytes utilisés 36
2.6.3 Vérification de l'atteinte d'un courant limite 37
2.6.4 Étalonnage en régime stationnaire 37
2.6.5 Étalonnage directionnelle 39
2.6.6 Étalonnage dynamique 40
2.6.7 Diffusivité du ferricyanure 41
2.6.8 Mesure des propriétés de la cellule électrochimique 45
2.6.9 Phénomènes limitant et altérant la réaction à la sonde 48

CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE ET STRUCTURE DES RÉSULTATS 52
3.1 Résumé des travaux 52
3.2 Structure des résultats 53

CHAPITRE 4 APPROCHE NUMÉRIQUE ET RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES . . 55
4.1 Choix des outils numériques 55
4.1.1 Évaluation du transfert de masse 56
4.2 Étude et validations du problème direct 2D 58
4.2.1 Cas stationnaire et maillage 58
4.2.2 Cas instationnaire : réponse impulsionnelle 60
4.2.3 Étude de l'inertie de la couche de diffusion 61
4.3 Problème inverse unidimensionnel 63
4.3.1 Calcul de la sensibilité du transfert de masse 63
4.3.2 Vérification et validation 64
4.3.3 Caractère instable du problème inverse 68
4.4 Problème inverse bidimensionnel 74

CHAPITRE 5 ARTICLE 1 – AN INVERSE PROBLEM TO ASSESS THE TWO-COMPONENT UNSTEADY WALL SHEAR RATE 76
5.1 Introduction 76
5.1.1 Basic principles of the electrodiffusion method 77

5.1.2 Common post-treatment methods 79
5.2 Statement of the problems 81
5.2.1 Direct problem 81
5.2.2 Inverse problem 83
5.3 Results and discussion 85
5.3.1 Verification of the inverse problem 86
5.3.2 Validation and influence of the probe discretization 92
5.3.3 Validation in a non-periodic flow 94
5.4 Concluding remarks 97

CHAPITRE 6 APPROCHE EXPÉRIMENTALE 99
6.1 Présentation du canal ED 100
6.2 Écoulement dans la section d'essai 101
6.3 Instrumentation et mesure de vitesse par LDA 102
6.3.1 Principe de mesure LDA 102
6.3.2 Signal LDA et erreur de mesure 104
6.3.3 Correction du biais de vitesse LDA 106
6.3.4 Paramètres et caractéristiques du système LDA utilisé 107
6.3.5 Mesures LDA dans le canal ED et moyennes de phase 111
6.3.6 Incertitudes de mesure – LDA 113
6.4 Mise en œuvre de la méthode ED 113
6.4.1 Fluide et électrolyte 114
6.4.2 Sondes et conditionnement de signal 115
6.4.3 Protocole de mesure 117
6.4.4 Caractérisation de la réaction électrochimique 118
6.4.5 Étalonnage des sondes ED 120
6.5 Validation expérimentale du problème inverse 126

CHAPITRE 7 ARTICLE 2 – TWO-COMPONENT INSTANTANEOUS WALL SHEAR RATE MEASUREMENTS IN REVERSING FLOWS 131
7.1 Introduction 131
7.1.1 Principles of the ED method and main post-treatments 132
7.1.2 Statement of the problem 133
7.1.3 Inverse algorithm 134
7.2 Methodology 136
7.2.1 Setup and instrumentation 136
7.2.2 Wall shear rate reference value 139

7.2.3 Nondimensionalization of the current I 143
7.3 Results and discussion 148
7.3.1 Notes on discrepancies and measurement errors 150
7.4 Concluding remarks 154

CHAPITRE 8 ARTICLE 3 – DIAGNOSTIC OF THE FLUCTUATING WALL SHEAR RATE COMPONENTS USING AN UNCALIBRATED THREE-SEGMENT ELECTRODIFFUSION SENSOR 157
8.1 Introduction 157
8.1.1 ED basis and post-treatment methods 159
8.2 Methodology 161
8.2.1 Setup and instrumentation 161
8.2.2 Signals pre- and post-treatments 165
8.3 Results and discussion 168
8.3.1 Fixed cylinder 168
8.3.2 Moving cylinder 170
8.3.3 General discussion 170
8.4 Conclusion 175

CHAPITRE 9 DISCUSSION GÉNÉRALE 177
9.1 Variantes du problème inverse 177
9.2 Notes sur l'influence d'erreurs de mesure dans le problème inverse 179
9.3 Commentaires sur le pré-traitement de données 180

CHAPITRE 10 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 182
10.1 Synthèse des travaux 182
10.2 Limitations de la solution proposée 184
10.3 Améliorations futures 184

RÉFÉRENCES 186

ANNEXES 194

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1	Diffusivité du ferricyanure en utilisant le K_2SO_4 comme électrolyte support	42
Tableau 2.2	Diffusivité du ferricyanure pour différents électrolytes supports	42
Table 5.1	Parameters used in the simulations, as per equations (5.15)	87
Tableau 6.1	Caractéristiques du système LDA	107
Tableau 6.2	Paramètres du volume de mesure LDA	109
Tableau 6.3	Paramètres d'acquisition LDA	109
Tableau 6.4	Caractéristiques des sondes ED	115
Tableau 6.5	Constantes d'étalonnage en régime stationnaire	121
Tableau 6.6	Paramètres associés aux cas expérimentaux présentés en Figure 6.16	127
Table 7.1	Flow parameters used in the experiments	148
Table 7.2	Effect of the $\overline{s}$ value used in the nondimensionalization relation (7.5)	155
Table 8.1	Flow parameters used in the experiments	169

LISTE DES FIGURES

Figure 2.1	Courant limite	9
Figure 2.2	Flux d'ions 1D	11
Figure 2.3	Principe de la méthode ED	13
Figure 2.4	Schématisation du champ de vitesse à l'échelle d'une sonde ED	15
Figure 2.5	Types de sonde ED	18
Figure 2.6	Sondes fabriquées par photolithographie	20
Figure 2.7	Profils de concentration suivant un saut de tension	25
Figure 2.8	Évolution du courant suite à un saut de tension	27
Figure 2.9	Conditions limites associées à la résolution de (2.44)	31
Figure 2.10	Principales étapes de la méthode inverse	31
Figure 2.11	Essais de voltampérométrie à balayage linéaire dans différentes conditions	38
Figure 2.12	Dispositif souvent utilisé pour étalonner une sonde ED	39
Figure 2.13	Étalonnage directionnelle d'une sonde tri-segmentée	40
Figure 2.14	Aires microscopique et géométrique d'une électrode	48
Figure 2.15	Couche de diffusion près de secteurs inactifs d'une électrode	49
Figure 4.1	Maillage typique utilisé pour le problème direct 2D	57
Figure 4.2	Converenve en maillage – CD 2D	59
Figure 4.3	Sh^* en fonction de Pe – CD 2D stationnaire	60
Figure 4.4	Réponse transitoire d'une sonde – CD 2D	61
Figure 4.5	Effets inertiels – Couche de diffusion 2D	62
Figure 4.6	Vérification problème inverse 1D	65
Figure 4.7	Validation problème inverse 1D	67
Figure 4.8	Solution de Sobolík à différents Sr	68
Figure 4.9	Premier type d'échec dans le problème inverse	69
Figure 4.10	Fonction F près d'un changement de sens	70
Figure 4.11	Corrections du problème inverse	71
Figure 4.12	Second type d'échec dans le problème inverse	73
Figure 4.13	F et F^2 dans le second type d'échec	73
Figure 5.1	Principle of the electrodiffusion (ED) method	78
Figure 5.2	Geometry and boundary conditions used in the direct and the inverse problems	82
Figure 5.3	Verification of the direct problem	86
Figure 5.4	Results with the inverse problem for case 0	88

Figure 5.5 Results with the inverse problem for cases 1 and 2 89
Figure 5.6 Sh_m^* and absolute values of the S sensitivity coefficients J_{m0} for cases 1 and 2 90
Figure 5.7 Results with the inverse problem for cases 3 and 4 90
Figure 5.8 β_α and β_S effects on $\overline{Sh}$ 91
Figure 5.9 Different geometries used to discretize the three-segment probe 92
Figure 5.10 Effect of the probe geometry on the inverse method results 93
Figure 5.11 Two-component wall shear rate extracted from a DNS database of a turbulent Poiseuille flow, along with inverse method results 95
Figure 5.12 Results in the close-up region of Figure 5.11 for $Pe = 1.2 \times 10^7$ 96
Figure 5.13 Results in the close-up region of Figure 5.11 for $Pe = 1.2 \times 10^5$ 96
Figure 6.1 Photographie du banc de mesure 100
Figure 6.2 Schématisation de l'écoulement dans la section d'essai du canal ED . 101
Figure 6.3 Modèle de franges LDA 102
Figure 6.4 Schématisation d'un système de mesure LDA 104
Figure 6.5 Dimensions du volume de mesure LDA 108
Figure 6.6 Sigaux d'un échantillongae LDA 110
Figure 6.7 Mesures LDA et moyennes de phase 112
Figure 6.8 Sondes ED utilisées 116
Figure 6.9 Comparaison de signaux ED avec 2 différentes cartes d'acquisition . . 117
Figure 6.10 Essais de voltampérométrie à balayage linéaire 119
Figure 6.11 Étalonnage stationnaire des sondes ED 121
Figure 6.12 Étalonnage quasi-stationnaire 123
Figure 6.13 Essais de chronoampérométrie pour quatre sondes ED différentes . . 124
Figure 6.14 Épaississement de la couche de diffusion – 2^e loi de Fick 124
Figure 6.15 Étalonnage directionnel des sondes tri-segmentées 126
Figure 6.16 Problème inverse 1D – Résultats expérimentaux 128
Figure 6.17 Problème inverse 1D – Effet du pas de temps 129
Figure 7.1 Schematic of the ED method basis 133
Figure 7.2 Main steps of the inverse algorithm 135
Figure 7.3 Experimental apparatus and velocity profiles in the test section . . . 137
Figure 7.4 Typical three-segment probe raw and phase-averaged signals 138
Figure 7.5 Fluctuating velocity with height inside the test section of the periodically pulsated channel flow, along with the corresponding wall shear rate 142

Figure 7.6 Ratio between numerical Sherwood number Sh and experimental current I at various Pe 145
Figure 7.7 Proposed procedure for the nondimensionalization process 146
Figure 7.8 Comparison of results with and without the proposed nondimensionalization process 147
Figure 7.9 Results of the two-dimensional inverse method for cases 0 and 1 . . . 149
Figure 7.10 Errors associated with S_{ana} and S_{inv} 151
Figure 7.11 Comparison of the analytical solution with linear and quadratic velocity profiles 151
Figure 7.12 Concentration field associated with flow conditions of case 1 at four successive time steps 152
Figure 7.13 Effect of using a quadratic velocity profile in the CD equation compared to a linear one 153
Figure 8.1 Experimental apparatus 161
Figure 8.2 Velocity fields from PIV measurements 163
Figure 8.3 Axial (u) and transverse (w) velocity components over one period when translating the cylinder's origin 164
Figure 8.4 Evolution of the variables when using the *in-line* correction in the inverse process 167
Figure 8.5 Results for cases 0, 1 and 2 169
Figure 8.6 Results for cases 3 and 4 170
Figure 8.7 Results for cases 5 and 6 171
Figure 8.8 Magnitude of the S sensitivity coefficients for cases 3 and 6 172
Figure 8.9 Results for the modified case 0 173
Figure 8.10 Results for case 7 ($Sr = 8.6$) 174
Figure 9.1 Comparaison de résultats des problèmes inverses 1D et 1D$^+$ 178
Figure C.1 Vue d'ensemble du canal ED 197
Figure C.2 Dispositifs de pulsation de l'écoulement 198
Figure C.3 Chambre de tranquilisation et contraction du canal ED 200
Figure C.4 Taux de fluctuation de la vitesse axiale selon la position transversale 201
Figure C.5 Canal et divergent du canal ED 202
Figure E.1 Mesures de hauteur dans la section d'essai du canal ED 206
Figure E.2 Profils de vitesse à différentes positions transversales 206
Figure F.1 Variation de C_0 et effet sur le courant limite 207
Figure G.1 Mesures du gradient pariétal de vitesse avec deux types d'étalonnage 209
Figure H.1 Type d'empoisonnement en chronoampérométrie 210

Figure H.2 Empoisonnement des sondes durant des essais de chronoampérométrie 211
Figure H.3 Effet du barbotage en azote en chronoampérométrie 212

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

CD	Convection–diffusion
DSP	Densité spectrale de puissance
ED	Électrodiffusionnelle
LadyF	Laboratoire de dynamique des fluides
LDA	Anémométrie Doppler à laser
PIV	Vélocimétrie par images de particules
RDE	Électrode à disque tournant

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A FORME VARIATIONNELLE DE L'ÉQUATION DE CD 194
ANNEXE B MÉTHODE DES RÉACTIONS 195
ANNEXE C COMPOSANTS DU CANAL ED 197
ANNEXE D CALCUL DU GRADIENT PARIÉTAL DE VITESSE FLUCTUANT À PARTIR DE MESURES DE VITESSE 203
ANNEXE E HAUTEUR LOCALE EN SECTION D'ESSAI 205
ANNEXE F EFFET D'UNE VARIATION DE LA CONCENTRATION DANS LA MASSE 207
ANNEXE G VÉRIFICATION DES PARAMÈTRES D'ÉTALONNAGE DE SONDES ED 208
ANNEXE H CHRONOAMPÉROMÉTRIE ET EMPOISONNEMENT DE SONDES ED 210

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Cadre théorique et motivation

La contrainte de cisaillement générée par un fluide en mouvement sur une paroi fait depuis longtemps l'objet d'études approfondies. Cette contrainte, ou frottement pariétal, est une notion fondamentale en mécanique des fluides et influence la dynamique de nombreux écoulements courants. En particulier, le frottement pariétal est souvent synonyme de perte d'efficacité dans la plupart des systèmes mécaniques industriels impliquant la circulation de fluides, nuisant aussi bien au rendement des pompes et échangeurs qu'à l'aérodynamisme d'aéronefs. Plus concrètement, la répartition du cisaillement sur une aile d'avion permet notamment d'évaluer son coefficient de frottement, bon indicateur de la performance du profil puisque les effets visqueux comptent pour un pourcentage important de la traînée des corps profilés à haute vitesse (Naughton et Sheplak, 2002). La mesure du frottement pariétal est aussi particulièrement importante en régime turbulent. Au cœur de ces mouvements en apparence désordonnés et chaotiques se trouvent des structures dites cohérentes, porteuses d'énergie et jouant un rôle important dans la dynamique de ces écoulements. Malgré la difficulté à prédire ces mouvements, il est d'avis (Marusic et Heuer, 2007; Smits *et al.*, 2011) que ces structures laissent des empreintes au caractère universel lors de leur passage, en particulier au niveau du cisaillement à la paroi.

Les études s'intéressant aux écoulements de couche limite, cette zone d'interface à la paroi dominée par les effets visqueux, sont tout aussi concernées par la mesure du frottement. Selon de récents travaux (Surana *et al.*, 2008), la connaissance de l'amplitude et de la direction du frottement pariétal instantané permettrait de prédire le décollement de la couche limite, phénomène se produisant lorsqu'un fluide se détache brutalement d'une paroi solide et qui est notamment responsable du décrochage d'une aile d'avion.

Alors que ces exemples ne révèlent qu'une mince fraction de la portée et des conséquences du frottement pariétal, il apparait évident que la connaissance de cette quantité est élémentaire et que le frottement a une influence capitale sur bien des phénomènes rencontrés en dynamique des fluides.

1.2 Problématique

De nombreuses méthodes sont disponibles pour mesurer le frottement pariétal. Malgré son influence dans bien des secteurs appliqués de la dynamique des fluides, cette quantité est en

pratique difficilement accessible, particulièrement lorsqu'une mesure précise est recherchée. Cet obstacle a incité les chercheurs à développer dans les dernières décennies de nouvelles techniques de mesure. Aussi nombreuses soient-elles, aucune ne peut encore être qualifiée d'universelle et couvrir toutes les applications nécessitant une telle mesure ; des problèmes de précision, de répétabilité et d'utilisation sont continuellement rencontrés. Certaines méthodes, tels que le tube de Preston et la visualisation par film d'huile, permettent d'atteindre une incertitude de mesure aussi basse que $\pm 3\,\%$ dans un écoulement canonique où les conditions sont contrôlées (Fernholz *et al.*, 1996). Cette précision diminue d'un facteur deux, au minimum, lorsque des phénomènes plus complexes sont étudiés, en particulier au sein d'écoulements turbulents. D'ailleurs, très peu de données comparatives, nécessaires pour valider les mesures de même que pour étalonner ces capteurs, sont généralement disponibles dans de telles circonstances.

En outre, peu de méthodes permettent de mesurer le frottement en régime instationnaire avec une résolution temporelle adéquate. Parmi celles-ci, l'élément flottant microélectromécanique (de type *MEMS*) est intéressant par sa très petite taille et sa large bande passante (souvent $> 4\,\mathrm{kHz}$). Toutefois, la résolution spatiale des éléments flottants est généralement limitée par la présence de composantes électriques autour du capteur. L'élément flottant ne donne souvent pas accès non plus à la direction du frottement, limitant son domaine d'application. L'anémomètre à film chaud compte également parmi ces méthodes de mesure du frottement instationnaire. La fréquence de coupure théorique de ce capteur est très intéressante ; notamment, des tests dynamiques effectués par Wietrzak et Lueptow (1994) ont montrés une fréquence de coupure $f_c \sim 17\,\mathrm{kHz}$. Néanmoins, les problèmes de conduction thermique vers la paroi viennent grandement amputer cette valeur en plus de biaiser les mesures (He *et al.*, 2011), particulièrement lorsque le rapport de conductivité thermique entre le fluide et le substrat est élevé (par exemple, lorsque l'air est utilisé comme fluide, Alfredsson *et al.*, 1988; Tardu et Pham, 2005). Malgré les nombreuses adaptations de la technique au cours des dernières décennies (entre autres : réduction de la conductivité thermique du substrat, création d'une cavité sous-vide en dessous du capteur), ce problème persiste toujours et des mesures fidèles de frottement en conditions instationnaires sont difficiles (Sheplak *et al.*, 2004). La convection naturelle occasionnée par le transfert de chaleur vers le fluide peut également modifier localement les conditions d'écoulement. He *et al.* (2011) ont effectivement attribué la forte dispersion dans leurs données de calibration à ce phénomène. Bien qu'il soit possible de déterminer la direction de l'écoulement en agençant deux ou plusieurs films chauds avec des orientations variées, la plage d'angles accessibles est limitée par une atténuation de leurs sensibilités ; cet usage est surtout réservé à la détermination du sens de l'écoulement. Plus récemment, un capteur composé d'un agencement de trois films chauds a été développé (Berca,

2007), bien que les effets de conduction thermique au substrat sur la réponse dynamique du capteur demeurent inconnus.

Certaines méthodes développées au cours des dernières années permettraient de combler, en partie, ces obstacles sur la détermination de l'amplitude et de la direction du frottement pariétal instantané. On compte notamment les méthodes développées par Große et Schröder (2008) et par Liu *et al.* (2014). La première capture la déformation de micro-cylindres d'élastomère encastrés dans la paroi à l'aide d'une caméra haute vitesse, tandis que la seconde évalue le transfert de masse causé par la sublimation d'un recouvrement de peinture sur une surface. Bien que ces deux méthodes soient prometteuses, leur mise en œuvre peut s'avérer plutôt complexe et leurs domaines d'application sont pour l'instant limités.

Il apparait donc qu'aucune méthode éprouvée ne semble offrir à la fois résolutions spatiale et temporelle tout en permettant de mesurer simultanément les deux composantes du frottement. De telles exigences seraient notamment requises pour œuvrer en présence d'un décollement de couche limite, où la contrainte de cisaillement peut s'annuler et changer de sens. La *méthode électrodiffusionnelle* (ED), discipline expérimentale depuis longtemps répandue dans le domaine de l'électrochimie, s'est fait connaître plus récemment en mécanique des fluides en découvrant qu'elle permettrait, indirectement, de mesurer les contraintes de frottement d'un fluide [1] sur une paroi. Les premiers modèles développés pour obtenir cette mesure se basaient sur plusieurs hypothèses afin de simplifier le traitement des équations analytiques. Bien qu'acceptables pour les besoins de l'époque, ces hypothèses sont trop restrictives en présence d'un décollement, où des phénomènes instationnaires tridimensionnels apparaissent. La *méthode inverse* est un post-traitement des mesures simulant numériquement les conditions expérimentales, en n'imposant que très peu d'hypothèses sur l'écoulement. En plus de donner une excellente estimation de l'amplitude du frottement pariétal (Rehimi *et al.*, 2006), la méthode inverse a le potentiel de fournir avec précision la direction instantanée du frottement incluant les changements de sens, ce qui en ferait une technique unique pour prédire le décollement et étudier des phénomènes turbulents en proche paroi.

1.3 Objectifs de recherche et méthodologie

Bien que certains types de sonde ED permettent déjà de mesurer les deux composantes du frottement pariétal, la majorité des post-traitements disponibles ne sont valides qu'en régime stationnaire ou en présence de fluctuations à faible amplitude. La méthode ED n'est donc pour l'instant pas adaptée e.g. à la détection d'un décollement instationnaire ou à la

1. On notera que le méthode ED est, pour l'instant, réservée aux liquides considérant son principe de mesure (cf. section 2.3).

caractérisation de structures turbulentes tridimensionnelles, puisque l'algorithme utilisé par la méthode inverse pour extraire le frottement pariétal n'est pas assez sophistiqué. Or, le principal objectif de recherche est de développer une méthodologie complète pour la mesure du frottement adaptée à ces types d'écoulements fortement instationnaires. Cet objectif peut se décomposer en trois objectifs chronologiques et plus spécifiques :

1. Concevoir un banc de mesure dédié à l'étude du comportement dynamique de sondes ED, permettant un étalonnage *in situ* et l'usage complémentaire de techniques de mesure du frottement pariétal ;
2. Développer les outils de post-traitement de données en revisitant la méthode inverse avec des avancées théoriques et numériques récentes ;
3. Valider la méthodologie développée à l'aide de données simulées et en utilisant des mesures réalisées dans des conditions d'écoulement contrôlées.

Avant le début des présents travaux, la méthode ED n'avait jamais été utilisée à l'École Polytechnique de Montréal ni même, à la connaissance du candidat, au Québec. C'est au travers d'un stage effectué en début de parcours à La Rochelle (France), sous la supervision du professeur V. Sobolík, un spécialiste reconnu dans le domaine, que les bases et fondements de la méthode ont d'abord été transmises. À la suite de premières expérimentations dans des montages préliminaires, un cahier des charges a pu être élaboré en vue de concevoir et fabriquer un banc de mesure susceptible de recevoir des sondes ED, permettre leur étalonnage et étudier leur réponse en fréquence dans diverses conditions d'écoulement.

Une première version du problème inverse a ensuite été élaborée, mise en œuvre à partir de procédures disponibles dans la littérature et validée avec les mesures préliminaires. Une hypothèse à la base du projet était que, en ajoutant une seconde dimension au problème inverse, la direction du frottement pariétal serait également accessible. Pour y arriver, plusieurs approches ont été envisagées, en se basant notamment sur des problèmes inverses retrouvés dans divers domaines de l'ingénierie. Enfin, un algorithme fiable a pu être construit et mis à l'épreuve au travers de simulations numériques et d'expérimentations effectuées dans des bancs d'essai conçus à cet effet.

1.4 Structure de la thèse

Malgré la quantité de travaux ayant été réalisés depuis le début des années 1960, la méthode électrodiffusionnelle n'est de nos jours que peu répandue dans le domaine de la dynamique des fluides, particulièrement en Amérique du Nord. Par conséquent, une profonde revue de la littérature entourant son fonctionnement et son utilisation suit d'abord ce chapitre. L'ap-

proche numérique et les premiers approfondissements proposés dans la méthode inverse sont ensuite présentés au chapitre 3. Puisque les principaux résultats du projet ont fait l'objet de publications, il paraissait logique au moment de l'écriture de produire une thèse par articles. Par contre, il serait trop tôt d'inclure ici ce qui est traité dans chacun d'eux. Ces détails sont donc inclus dans un chapitre dédié, suivant la revue de littérature, c'est-à-dire une fois la problématique bien exposée. Le corps du présent ouvrage est ainsi composé de trois articles (chapitres 5, 7 et 8), choisis et disposés de façon à procurer une succession harmonieuse des travaux et résultats obtenus. Le chapitre 6, présentant de façon plus détaillée un des bancs de mesure et plusieurs résultats expérimentaux, sépare toutefois le premier article, de nature numérique, des deuxième et troisième, consacrés à la validation expérimentale. Y sont également introduits certains éléments complémentaires servant notamment à valider l'approche expérimentale et la mise en œuvre de la méthode ED. Une discussion générale sur l'ensemble des travaux suit ensuite au chapitre 9. La synthèse globale de la thèse, accompagnée de certaines limitations dans la méthode proposée et recommandations pour travaux futurs, apparait finalement en dernier chapitre.

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

La méthode électrodiffusionnelle (ED) s'intéresse à la réaction d'oxydoréduction impliquant une sonde insérée à fleur de paroi et une espèce réactive contenue dans le fluide, où le taux de réaction permet de remonter au gradient pariétal de vitesse. Cette technique de mesure est très similaire au film chaud, où le transfert thermique local est remplacé par un *transfert de masse* ; les théories derrière les deux méthodes se recoupent donc en plusieurs endroits. Bien que la méthode ED ne puisse pour l'instant être utilisée qu'avec des liquides, un avantage important est que l'on se défait des problèmes de conduction thermique dans le substrat rencontrés avec le film chaud. De plus, la fréquence de coupure associée aux sondes ED est, à la base, plutôt faible. Toutefois, des post-traitements adéquats sont disponibles pour corriger l'atténuation et le déphasage du signal aux hautes fréquences. En particulier, la *méthode inverse* permet de simuler la réaction à la sonde afin de reproduire numériquement les conditions expérimentales et de corriger la réponse dynamique d'une sonde ED. D'après les travaux de Rehimi *et al.* (2006), la méthode serait efficace pour des écoulements hautement instationnaires, même en présence d'un écoulement de retour où l'amplitude des fluctuations est importante. De plus, en utilisant un capteur ED de type « tri-segmenté », la direction moyenne du cisaillement peut être évaluée. Cela suggère que, en adaptant le problème inverse au cas d'une sonde tri-segmentée, l'évolution temporelle des deux composantes du frottement pariétal deviendrait accessible.

La suite du présent chapitre se limitera essentiellement au principe de fonctionnement de la méthode ED, sur les principaux post-traitements développés et considérations expérimentales communes. Certaines notions d'électrochimie seront d'abord présentées dans les prochaines sections.

2.1 Débuts de la méthode ED

Un des premiers chercheurs à s'intéresser à cette technique de mesure en mécanique des fluides fût Thomas J. Hanratty de l'université de l'Illinois qui, avec l'aide de ses nombreux élèves, a fortement contribué au développement de la méthode dès les début des années 1960, en particulier dans le cadre d'études de phénomènes de paroi en régime turbulent (entre autres : Reiss et Hanratty, 1963; Mitchell et Hanratty, 1966; Dimopoulos et Hanratty, 1968; Son et Hanratty, 1969; Sirkar et Hanratty, 1970; Hanratty *et al.*, 1977). Sans l'usage de la méthode ED, il aurait été difficile d'en faire autant à l'époque (Hanratty, 1991). En effet, aucune autre méthode n'était apte à mesurer le frottement instationnaire avec des résolutions temporelle

et spatiale suffisantes, à l'exception du film chaud. Toutefois, les mesures avec ce dispositif étaient souvent biaisés dû aux phénomènes de conduction thermique dans le substrat, surtout en présence de phénomènes hautement instationnaires (Haritonidis, 1989). Les plus récentes activités en méthode ED semblent maintenant se concentrer en France, République tchèque et au Royaume-Uni.

Appellations

Nombreux sont les termes utilisés et retrouvés dans la littérature pour désigner la méthode ED. On retient surtout : polarographie, méthode électrochimique (*electrochemical method*), sonde de transfert de masse (*mass transfer probe*). Alors qu'aucun terme ne semble réellement prédominer sur les autres, les deux dernières appellations sont plutôt générales et manifestement peu éloquentes, bien que les risques d'ambiguïté soient faibles en mécanique des fluides. Quant au terme *polarographie*, son utilisation remonte aux années 1920 et fait référence à une méthode développée par Jaroslav Heyroský de l'université Charles, à Prague, où l'électrode de travail utilisée consiste en une goutte tombante de mercure (*Dropping Mercury Electrode, DME*). De cette méthode sont nées les techniques d'électroanalyse telles que la *voltampérométrie*, terme regroupant les méthodes de mesure du courant provenant d'une réaction d'électrolyse en fonction du potentiel imposé. Ce serait en fait la voltampérométrie, et non la polarographie, qui se rapprocherait le plus du principe de la méthode ED.

L'appellation « électrodiffusionnelle » semble provenir de l'époque des travaux de Mysels (1956), où l'auteur faisait globalement référence à l'étude du transport par diffusion d'ions contenu dans un système préalablement à l'équilibre, puis perturbé par champ électrique. Alors que ce terme ne semble pas se rapporter directement à une technique de mesure du frottement pariétal, il apparaît comme étant celui caractérisant le mieux le principe de la méthode ici étudiée, comme il sera exposé dans les prochaines sections ; c'est donc ce terme qui sera utilisé dans le présent document pour y référer.

2.2 Concepts électrochimiques

La théorie contenue dans cette section est particulièrement basée sur l'ouvrage de Bard et Faulkner (2001). Sauf indication contraire, on omettra donc de citer cette source.

Une réaction électrochimique, ou plus particulièrement d'*électrolyse* dans le cas de la méthode ED, est caractérisée par un échange de charges électriques entre une électrode et un électrolyte, échange assuré par les ions qui s'y retrouvent. Un minimum de deux électrodes,

l'anode et la cathode, sont nécessaires pour que l'électrolyse ait lieu. La réaction est amorcée lorsque l'équilibre chimique

$$O + ne \rightleftharpoons R$$

entre les espèces O–R concernées est perturbé suite à l'imposition d'une source de tension externe. Chaque électrode est caractérisée par sa demi-réaction : à l'interface de l'anode se déroule l'oxydation de l'espèce réductrice R tandis que la cathode réduit l'espèce oxydante O. Toutefois, on ne s'intéressera généralement qu'à une seule des deux demi-réactions. L'ensemble électrodes–électrolyte forme ce qui est couramment désigné par *cellule électrochimique*.

Pour qu'une réaction *électrolytique* ait lieu, une différence de potentiel doit être imposée entre l'anode et la cathode [1]. Le fait de polariser les électrodes imposera la direction du courant : d'une part, rendre le potentiel de l'électrode de travail négatif par rapport à sa référence augmentera l'énergie des charges électriques. Les électrons ainsi chargés seront attirés par les ions présents dans la solution et un courant cathodique sera généré à cette électrode. D'autre part, imposer une tension positive diminuera l'énergie des électrons et l'on verra apparaître un courant entrant dans l'électrode de travail (courant anodique). Tout dépendant de leur niveau énergétique (donc de la tension appliquée), les électrons viendront se loger dans une couche électronique libre d'une espèce présente dans la solution. Une certaine réaction électrochimique sera ainsi bornée par une plage de tensions selon l'énergie électrique nécessaire pour associer ou dissocier des charges électriques aux ions de cette espèce. C'est ce qu'on observe notamment à la Figure 2.1 : en éloignant progressivement la tension imposée d'une certaine tension d'équilibre E_{eq}, différentes réactions sont déclenchées. On appelle par ailleurs *surtension* η tout éloignement de la tension appliquée E à la tension d'équilibre, soit $\eta = E - E_{\text{eq}}$.

Puisque l'énergie des électrons est fonction de la tension aux bornes des électrodes, on s'intéressera souvent, en électrochimie, aux courbes courant–tension, où le courant I représente le nombre total de charges Q traversant l'interface électrode–électrolyte en une seconde (exprimé en coulombs par seconde, C/s). La notion de courant est fondamentale en électrochimie, car c'est à partir de cette mesure que l'on déterminera la vitesse d'une réaction, mais également le nombre de produits formés. C'est ce que stipule la *loi de Faraday* : le passage de 96 485.4 C engendrera la formation d'une mole de composé ; le nombre de Faraday F est ainsi défini :

$$F = 9.64854 \times 10^4 \text{ C mol}^{-1}.$$

1. Comparativement à une réaction *galvanique*, où la réaction s'effectue spontanément sans l'imposition d'une tension externe. C'est le cas notamment des batteries.

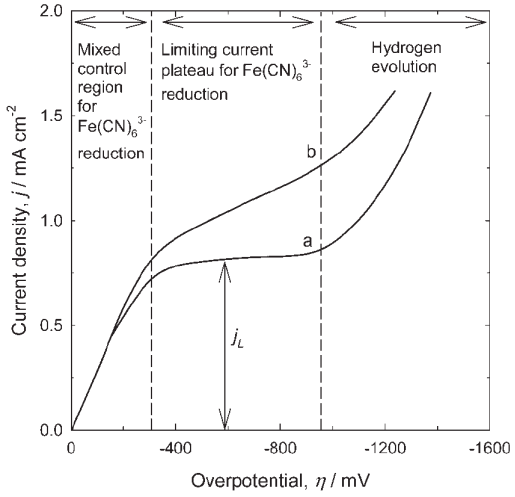


Figure 2.1 La courbe 'a' expose une évolution typique du courant avec la tension lorsque la condition de courant limite est atteinte. Il est toutefois difficile d'en dire autant pour la courbe 'b', où certains phénomènes viennent limiter et modifier la réaction (cf. sections 2.6.3 et 2.6.9). Solution de ferri–ferrocyanure. Image tirée de Szánto *et al.* (2008), avec permission de *John Wiley and Sons*

2.2.1 Courant limite

À partir d'une tension suffisamment élevée, la vitesse d'une réaction d'électrolyse sera telle que la concentration de l'espèce réduite (ou oxydée) à la surface de l'électrode se réduira à une fraction de la concentration dans la masse de la solution C_0 (en anglais : *bulk concentration*), si bien que l'on assumera une concentration nulle à l'interface électrode–électrolyte. Sous une telle différence de potentiel, le courant I atteindra un plateau : toute évolution subséquente de la tension n'aura pas d'effet sur le courant (I indépendant de E), signe que la vitesse de réaction est maximale. On parlera alors de *courant limite*, I_l. Ce plateau apparaissant dans un graphique $I = \text{fct}(E)$ sera normalement borné par l'apparition d'une nouvelle réaction qui surviendrait à une tension plus élevée, comme observé en Figure 2.1.

Dans la pratique, le courant limite associé à une certaine réaction peut être déterminé en augmentant progressivement la tension. L'atteinte d'un plateau parfaitement horizontal ($\partial I/\partial E = 0$) est toutefois théorique. Il est effectivement probable que, dans un processus de réduction d'une espèce O, la tension appliquée chevauche le potentiel standard E_0 d'une autre réaction (c.-à-d. la tension déclenchant cette réaction), si bien qu'une légère pente dans la courbe $I = \text{fct}(E)$ est souvent observée. La présence d'impuretés dans la solution peut causer l'apparition de ces réactions indésirables et ainsi créer des *courants parasites*. Par exemple, dès son contact avec l'air ambiant, l'oxygène se dissout rapidement dans une

solution aqueuse, ce qui aura des conséquences lors de l'électrolyse (cf. section 2.6.9). Le barbotage d'azote est normalement utilisé pour se défaire de l'oxygène ainsi dissout (Berger et Ziai, 1983; Selman et Tobias, 1978).

2.2.2 Modes de transfert de masse

Au cours d'une réaction d'oxydoréduction, des charges sont échangées entre les espèces réductrice et oxydante. Cet échange ou transfert de masse se réalise globalement de trois manières :

1. *Migration* : Transport des électrons sous la force d'un champ électrique, qui est attribuable à la polarisation des électrodes : les ions chargés négativement (positivement) seront attirés vers une borne positive (négative). Les phénomènes de migrations sont observés loin des électrodes, dans la masse de la solution.
2. *Diffusion* : Transfert de masse causé par la présence d'un gradient de concentration d'une espèce réactive. Les gradients de concentration étant essentiellement nuls loin des électrodes, les phénomènes diffusifs s'effectuent aux interfaces électrode–électrolyte, où se développe une couche limite de concentration ou *couche de diffusion*.
3. *Convection* : Transport dû au mouvement du fluide (convection forcée) ou à un gradient de densité du fluide (convection naturelle).

En combinant ces trois modes de transport, on retrouve la loi de *Nernst–Planck* régissant le transfert de masse à une électrode

$$\boldsymbol{J_j} = -\underbrace{D_j \boldsymbol{\nabla} c_j}_{\text{Diffusion}} - \underbrace{\frac{z_j F}{RT} D_j c_j \boldsymbol{\nabla}\Phi}_{\text{Migration}} + \underbrace{c_j \boldsymbol{u}}_{\text{Convection}} \tag{2.1}$$

où $\boldsymbol{J_j}$, D_j, c_j, z_j désignent respectivement le flux, le coefficient de diffusion, la concentration et la charge de l'espèce j. Cette équation regroupe ainsi les trois modes présentés ci-haut : le gradient de concentration réfère à la diffusion (premier terme), le gradient de potentiel $\boldsymbol{\nabla}\Phi$ à la migration (second terme) et la champ de vitesse $\boldsymbol{u} = u\boldsymbol{i} + v\boldsymbol{j} + w\boldsymbol{k}$ à la convection, avec $\boldsymbol{i}$, $\boldsymbol{j}$ et $\boldsymbol{k}$ les vecteurs unitaires dans les directions x, y et z, respectivement. R est la constante universelle des gaz et T la température.

Pour obtenir l'équation gouvernant la réaction ED, le terme de migration est omis. Cette hypothèse est valable lorsqu'un électrolyte neutre ou *électrolyte support* (ne participant pas à la réaction à l'étude) est ajouté en excès au mélange ; de cette façon, la contribution du courant de migration peut essentiellement être négligée.

2.2.3 Équation de convection–diffusion

Avec le terme de migration en moins, l'équation (2.1) est réduite à

$$\boldsymbol{J_j} = -D_j \boldsymbol{\nabla} c_j + c_j \mathbf{u}. \tag{2.2}$$

Le vecteur $\boldsymbol{J_j}$, de dimension $\mathrm{mol\,s^{-1}\,m^{-2}}$, représente le flux d'une espèce j ; une analyse dimensionnelle permet notamment de relier cette quantité à la variation temporelle de la concentration, soit

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\boldsymbol{\nabla} \cdot \mathbf{J} \tag{2.3}$$

où le signe négatif provient du fait que le flux augmente en se rapprochant d'une source ou, dans notre cas, d'une sonde ED. En 1D, on verra par exemple $J(x,t) > J(x+\Delta x, t)$ avec $\Delta x > 0$ (Figure 2.2). En effet, la polarisation des électrodes donnera naissance à une couche de diffusion aux interfaces électrodes–électrolyte : la concentration de l'espèce sera minimale (voir nulle en présence d'un courant limite) au niveau de l'électrode et maximale en dehors de la couche limite, à une distance δ_c. Cet appauvrissement en ions déclenchera un mouvement de l'espèce de la masse vers l'électrode. Ce gradient de concentration est par ailleurs la source du transfert de masse par diffusion, retrouvé en (2.1).

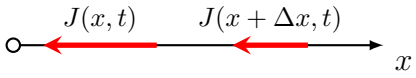


Figure 2.2 Représentation unidimensionnelle du flux J_j, où le flux d'ions diminue en s'éloignant de la source représentée par le cercle, soit $J(x,t) > J(x+\Delta x,t)$

En combinant (2.2) et (2.3), on retrouve l'équation générale de convection–diffusion (CD) pour une espèce j, qui se formule par

$$\frac{\partial c_j}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \boldsymbol{\nabla} c_j = D_j \boldsymbol{\nabla}^2 c_j \tag{2.4}$$

pour un fluide incompressible avec un coefficient de diffusion constant.

2.2.4 Dynamique de la couche de diffusion

L'interface électrode–électrolyte est un lieu de forts gradients de concentration au sein duquel des charges électriques sont échangées. Ces charges ne sont pas échangées instantanément : à l'instar des condensateurs en électricité, un certain temps de charge (et de décharge) caractérise ces phénomènes. En électrochimie, ces échanges se déroulent essentiellement dans

la *double couche*, sous-région de la couche de diffusion très près de la surface de l'électrode, englobant tous les phénomènes d'adsorption des ions et dont la dynamique est souvent comparée à celle d'un condensateur. On note d'ailleurs que la capacité électrique d'une telle couche est de l'ordre de 10–40 $\mu\mathrm{F/cm}^2$ (Bard et Faulkner, 2001, p. 12).

Ces effets de charge–décharge affecteront considérablement la réponse en fréquence des sondes ED et seront responsables du caractère inertiel de la couche de diffusion, générant ainsi déphasage et atténuation du signal des sondes ED. Puisque le coefficient de diffusion D des espèces fréquemment utilisées est faible comparativement à, par exemple, la diffusion de chaleur associée au film chaud, une correction appropriée des signaux sera indispensable, même aux fréquences faibles à modérées (cf. section 2.5). Plusieurs méthodes permettent effectivement de corriger adéquatement ces effets inertiels. Une technique courante est d'utiliser la réponse temporelle d'une sonde à un saut de tension pour caractériser le temps de recharge de la double couche. Une constante de temps peut ainsi être déterminée pour un couple électrode–électrolyte donné. Une seconde méthode modélise la sonde ED au moyen d'une fonction de transfert, où l'équation de CD est linéarisée considérant des fluctuations à faible amplitude. Enfin, en intégrant les mesures de sondes ED dans un *problème inverse*, au cours duquel l'équation de CD est itérativement résolue, les conséquences de ces effets sont presque entièrement corrigées. Une telle technique peut toutefois demander des ressources informatiques importantes lorsque l'on s'intéresse à des écoulements tridimensionnels.

2.3 Principe de la méthode ED

La méthode ED repose sur la mesure du transfert de masse par diffusion entre un couple oxydant–réducteur contenu dans un fluide et une électrode dont la surface affleure la paroi. En général, des méthodes similaires sont utilisées en électrochimie dans des conditions où la vitesse $\boldsymbol{u}$ du fluide est soigneusement contrôlée dans le but de mesurer, par exemple, la concentration de l'espèce dans la masse $C_{0,j}$ connaissant son coefficient de diffusion D_j. À l'inverse, il est aussi fréquent de vouloir mesurer D_j connaissant $C_{0,j}$; un dispositif « d'électrode tournante », communément appelé *Rotating Disk Electrode* en anglais, est couramment utilisé pour ce type de mesure (cf. section 2.6.8).

En dynamique des fluides, puisque l'information sur le champ de vitesse est plutôt recherchée, on vise à contrôler rigoureusement D_j et $C_{0,j}$ de façon à déterminer $\boldsymbol{u}$. Cela est possible en utilisant un électrolyte de concentration connue, tout en ayant mesuré au préalable son coefficient de diffusion.

2.3.1 Mesure du transfert de masse

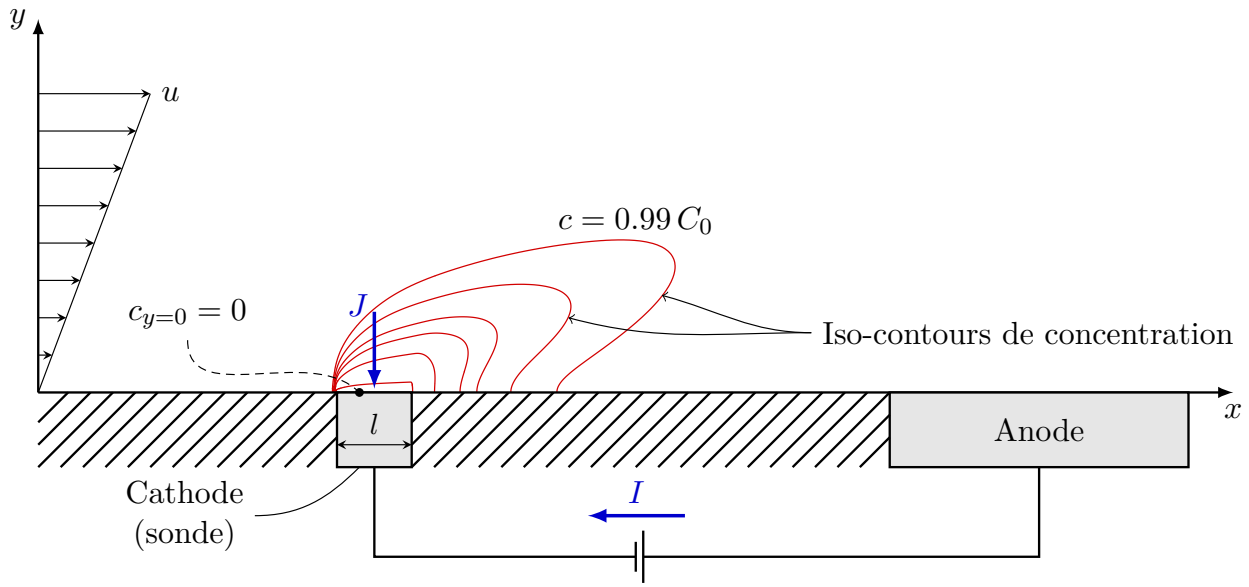


Figure 2.3 Principe de la méthode ED. C_0 : concentration dans la masse de l'électrolyte ; J : flux d'ions vers l'électrode ; I : courant traversant l'électrode ; l : longueur de la cathode, dans la direction de l'écoulement

Normalement, on s'intéresse à la réaction se déroulant à la cathode. Les électrodes sont polarisées de façon à obtenir un courant limite [2] (cf. section 2.2.1) à cette borne, de sorte que la concentration de l'espèce à l'interface électrode–solution peut être considérée nulle ($c_{\text{paroi}} = c_{y=0} = 0$). L'imposition d'une différence de potentiel entre les électrodes donnera ainsi naissance à la couche de diffusion à l'interface de la cathode, caractérisée par d'importants gradients de concentration (cf. Figure 2.3) qui généreront un flux d'ions de l'espèce réduite vers la cathode.

Lorsqu'un électrolyte neutre est ajouté en excès à la solution, le transfert de masse par migration (cf. section 2.2.2) est éliminé. De même, puisque la vitesse du fluide est nulle au niveau de l'électrode ($\boldsymbol{u} \simeq 0$), le terme convectif dans (2.1) disparait ; ainsi, la réaction d'oxydo-réduction n'est contrôlée que par les phénomènes de diffusion. Le flux d'ions gouvernant le transfert de masse est donc obtenu en simplifiant (2.1) sous de telles conditions, soit pour le cas unidimensionnel

$$J_{y=0} = \frac{I}{nFA} = -D \left.\frac{\partial c}{\partial y}\right|_{y=0}, \tag{2.5}$$

2. On notera pour la suite que I fait toujours référence au courant limite, sauf indication contraire.

où I, n, F, A représentent respectivement le courant traversant la sonde, le nombre stœchiométrique d'électron(s) impliqué(s) dans la réaction, le nombre de Faraday et l'aire active de la sonde. Le courant électrique I retrouvé dans (2.5) correspond donc au *mesurande* de la méthode ED conventionnelle.

Pour un écoulement bidimensionnel et une sonde de longueur l, le transfert de masse (2.5) devient

$$\frac{I}{nFA} = \frac{1}{l}\int_0^l -D\left.\frac{\partial c}{\partial y}\right|_{y=0} dx, \tag{2.6}$$

avec x la direction de l'écoulement. Dans le cas d'une électrode circulaire (cf. section 2.4), la longueur l est remplacée par le diamètre d. On procède de même pour le cas 3D, soit

$$\frac{I}{nFA} = \frac{1}{A}\iint_A -D\left.\frac{\partial c}{\partial y}\right|_{y=0} dA. \tag{2.7}$$

Les équations (2.5) à (2.7) relient ainsi le courant I mesuré au transfert de masse caractérisant la réaction. Pour remonter jusqu'au profil de vitesse $\boldsymbol{u}$ et, éventuellement, au gradient pariétal de vitesse, on devra résoudre l'équation de CD (2.4) et ressortir une équation différentiable en y pour c. Mais d'abord, étudions la forme de $\boldsymbol{u}$ au voisinage d'une sonde ED.

2.3.2 Relation avec le gradient pariétal de vitesse

En considérant $\partial \boldsymbol{u}/\partial x = 0$ au niveau de la sonde et en supposant l'écoulement bidimensionnel et incompressible, le profil de vitesse se réduit à $\boldsymbol{u} = u(y)\boldsymbol{i}$. Une décomposition en séries de Taylor de u au voisinage d'une sonde ED (c.-à-d. à la paroi) permet d'écrire

$$\begin{aligned} u &\simeq u_{y=0} + y\left.\frac{\partial u}{\partial y}\right|_{y=0} + O(2) \\ &= \quad 0 \quad + \quad sy \quad\quad + O(2), \end{aligned} \tag{2.8}$$

où s représente le gradient pariétal de vitesse et $O(2)$ regroupe les termes d'ordre supérieur ou égal à 2. Lorsque le nombre de Schmidt caractérisant le fluide est élevé ($Sc = \nu/D \gtrsim 1000$ avec ν la viscosité cinématique, ce qui est généralement le cas), l'épaisseur de la couche de diffusion est négligeable devant la couche limite hydrodynamique à l'interface électrode–électrolyte ($\delta_c \ll \delta_{\text{hyd}}$, cf. Figure 2.4), si bien que les termes d'ordre supérieur peuvent être négligés sans affecter la forme locale du profil de vitesse. Au premier ordre, (2.8) se simplifie

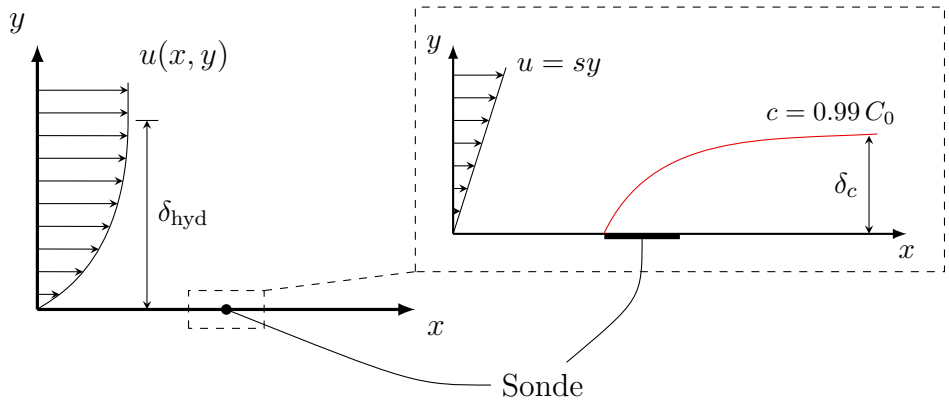


Figure 2.4 Schématisation du champ de vitesse à l'échelle d'une sonde ED

ainsi à

$$u = sy. \tag{2.9}$$

Cette hypothèse sur le profil de vitesse est à la base de la majorité des post-traitements développés pour la méthode ED. Alors que la forme de (2.9) est valide pour bien des conditions d'écoulement, notamment en écoulement turbulent lorsque la couche de diffusion est comprise dans la sous-couche visqueuse, cette hypothèse peut apparaitre discutable lorsque la convection est faible, en présence de fortes fluctuations ou d'un fort gradient de pression adverse. La courbure du profil de vitesse en proche paroi peut ainsi devenir non négligeable, auquel cas l'hypothèse $\delta_c \ll \delta_{\text{hyd}}$ pourrait ne plus être respectée. La validité de la forme $u = sy$ devrait donc préférablement être vérifiée selon l'écoulement étudié.

2.3.3 Mesures en régime stationnaire

La solution analytique de (2.4) a été obtenue par Lévêque en 1928 dans le cadre de ses travaux sur le transfert de chaleur par convection et diffusion, en utilisant les hypothèses suivantes :

1. régime stationnaire ;
2. diffusion axiale négligeable $(\partial^2 c/\partial x^2 = 0)$;
3. profil de vitesse linéaire $(u = sy)$;
4. écoulement parallèle $(v = 0)$.

L'équation (2.4) se réduit ainsi à

$$sy\frac{\partial c}{\partial x} = D\frac{\partial^2 c}{\partial y^2}. \tag{2.10}$$

En utilisant les conditions limites

$$c(0,y) = c(x,\infty) = C_0 \qquad\qquad c(x,0) = 0 \quad (0 \leq x \leq l), \tag{2.11}$$

la solution de l'équation (2.10) pour une sonde ED rectangulaire de longueur l (cf. section 2.4) s'écrit

$$c(x,y) = \frac{C_0}{\Gamma(4/3)} \int_0^{\eta} \exp(-\eta^3) d\eta, \tag{2.12}$$

où $\Gamma(4/3) \simeq 0.893$, $\eta = y(s/9Dx)^{1/3}$ et x réfère à la distance à partir du bord d'attaque de la sonde. En dérivant cette équation par rapport à la direction perpendiculaire à la sonde et en évaluant à la paroi, on obtient une équation pour le transfert de masse :

$$\left.\frac{\partial c}{\partial y}\right|_{y=0} = \frac{C_0}{\Gamma(4/3)} \left(\frac{s}{9Dx}\right)^{1/3}. \tag{2.13}$$

En intégrant (2.6) avec (2.13), on peut maintenant relier le courant électrique I traversant une sonde ED aux propriétés de la cellule électrochimique, soit

$$I = \frac{knC_0FAD^{2/3}}{l^{1/3}}\, s^{1/3} \tag{2.14}$$

pour une électrode de longueur l, ou encore

$$s_{\mathrm{q}} = \frac{l}{(knC_0FA)^3 D^2}\, I^3, \tag{2.15}$$

avec $k = 3^{(1/3)}/(2\Gamma(4/3)) \simeq 0.80755$. Cette relation porte couramment le nom de solution de Lévêque ou *quasi-stationnaire*, d'où l'indice « q ». Il est par ailleurs courant de représenter la réaction à la sonde par un coefficient de transfert de masse [3] K, défini tel que

$$K = \frac{J}{c_{y=\delta_c} - c_{y=0}} \simeq \frac{J}{C_0}. \tag{2.16}$$

(2.14) peut donc se réécrire

$$K_{\mathrm{q}} = k \left(\frac{sD^2}{l}\right)^{1/3}. \tag{2.17}$$

3. On remarquera que K a une dimension [LT^{-1}] et peut donc s'apparenter à une vitesse de réaction.

Ce modèle est donc valide pour un écoulement respectant les conditions énumérées plus haut et dont le transfert de masse est régit par (2.10), mais peut en général être utilisé en présence de fluctuations à faible fréquence.

Validité du modèle quasi-stationnaire

Une solution analytique de l'équation de CD est possible lorsque le terme de diffusion axiale est négligeable dans (2.4) ; cette hypothèse est généralement vérifiée pour un nombre de Péclet élevé. D'après les travaux de Ling (1963), la contribution de la diffusion axiale serait sous les 1 % lorsque $Pe = \overline{s}l^2/D > 500$, où $\overline{s}$ est le gradient pariétal de vitesse moyen. Toutefois, d'après la synthèse des travaux de Maquinghen (1999) et dans l'expérience de l'auteur (cf. section 4.2), cette limite serait d'un ordre de grandeur plus élevée. En pratique, la validité de (2.15) peut également déprendre de facteurs comme la résistance ohmique de la cellule électrochimique utilisée, soit en quelque sorte la résistance électrique propre à cette cellule. Cet effet peut être vérifié lors de l'étalonnage (section 2.6.4).

En régime instationnaire, l'approximation quasi-stationnaire demeure valide lorsque les fréquences dominantes sont suffisamment faibles, puisque les effets inertiels affectant la couche de diffusion viennent rapidement altérer le signal. Par ailleurs, la méthode ED est basée sur la mesure d'un courant limite à la sonde, impliquant une réduction complète de l'espèce oxydante à l'interface électrode–électrolyte ($c_{y=0} = 0$). Alors que cette condition est à la base de la méthode, elle ne semble pas avoir été exhaustivement vérifiée. Selon Hanratty et Campbell (1996), cette condition pourrait être violée dans certains écoulements à haut débit, où le taux de transfert de masse serait limité par la vitesse maximale possible pour la réaction ; plus de détails sont disponibles en section 2.6.3

2.4 Types de sondes ED

Une sonde « simple » permet de relever l'amplitude s du gradient pariétal de vitesse. Un tel capteur est généralement de forme rectangulaire ou circulaire, avec une dimension principale (c.-à-d. l ou d, cf. Figure 2.5) de l'ordre du dixième de millimètre [4]. Dans le cas d'une géométrie rectangulaire, le côté court de la sonde l sera orienté parallèlement à la direction principale de l'écoulement de façon à augmenter sa sensibilité dans cette direction. De plus, afin de se défaire des effets de bords, on cherchera à ce que la largeur L soit beaucoup plus importante que la longueur l.

4. On cherchera notamment à diminuer la taille d'une sonde de façon à réduire les effets d'inertie de couche limite (section 2.2.4) ; un capteur plus petit aura une meilleure réponse en fréquence.

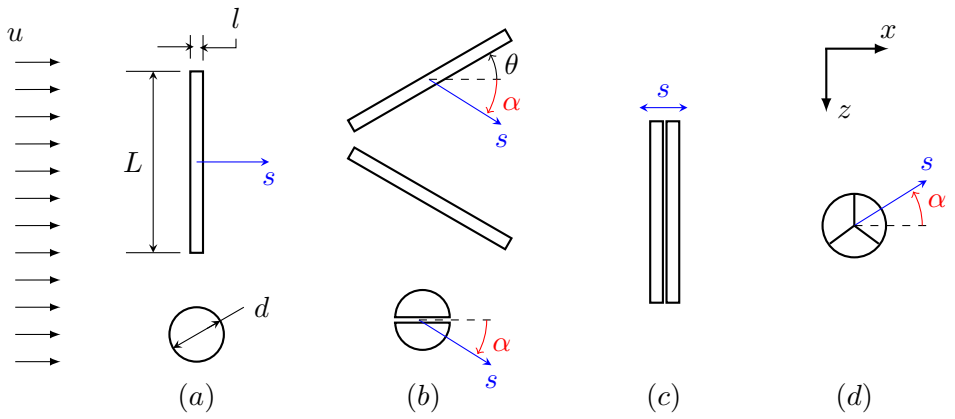


Figure 2.5 Géométrie communes de sondes ED (a) simples, (b) double chevron et demi-circulaire, (c) « sandwich » et (d) tri-segmentée, vues de haut

Alors que la solution de Lévêque (section 2.3.3) suppose l'utilisation d'une sonde rectangulaire, une géométrie circulaire peut généralement s'apparenter à son homologue rectangulaire moyennant une correction sur la longueur équivalente $l_{\text{éq}}$ de cette sonde. En considérant que la position du bord d'attaque d'un disque est fonction de la direction transversale z, Hanratty et Campbell (1996) ont proposé la correction suivante :

$$l_{\text{éq}} = 0.81356\, d. \tag{2.18}$$

Mitchell (1965) a été le premier à utiliser une sonde rectangulaire inclinée par rapport à la direction principale de l'écoulement afin de déterminer l'orientation α en plus de l'amplitude s du gradient pariétal de vitesse. Supposant une sonde disposée selon l'agencement en chevron de la Figure 2.5(b), le transfert de masse mesuré par chacune des deux électrodes prend la forme (Sirkar et Hanratty, 1970)

$$K = k \left(\frac{s \sin(\theta - \alpha)\, D^2}{l} \right)^{1/3} \left(1 + \frac{l \cot(\theta - \alpha)}{5L} \right), \tag{2.19}$$

où le terme multiplicatif de droite provient des effets de bords d'une sonde rectangulaire et disparait pour $l/L \ll 1$. L'équation (2.19) suggère donc qu'un arrangement d'au minimum deux sondes permettrait l'évaluation simultanée de α et s. On remarque également que, pour $\theta = 90\,^\circ$ et $\alpha = 0\,^\circ$, on retrouve bien (2.17) pour une sonde simple perpendiculaire à l'écoulement.

Différentes dispositions de sondes ont été inspectées afin de déterminer celle procurant une précision optimale sur les deux composantes du frottement pariétal. L'agencement en chevron

n'était pas idéal puisque les performances de cette sonde dépend de l'angle de design θ, limitant les angles mesurables essentiellement à $|\alpha| < |\theta|$. De plus, il apparaissait difficile d'obtenir une configuration offrant à la fois une sensibilité adéquate dans les directions axiale et transverse. Dans cet ordre d'idées, Py et Gosse (1969) suggérèrent d'utiliser une géométrie circulaire sectionnée en deux (Figure 2.5*b*) de même que le système d'équations suivant pour un couple d'électrodes 1–2 :

$$\frac{K_1 - K_2}{K_1 + K_2} = F(\alpha), \tag{2.20}$$

$$K_1 + K_2 = \left(\frac{sD^2}{l}\right)^{1/3} G(\alpha), \tag{2.21}$$

où les fonctions $F(\alpha)$ et $G(\alpha)$ sont propres à la géométrie utilisée. Bien que cet agencement demi-circulaire soit plutôt similaire à celui en chevron avec $\theta = 0$, on se défait d'une part des effets de bords d'une sonde rectangulaire et du choix d'un rapport de forme l/L adéquat, affectant particulièrement la sensibilité sur la mesures de fluctuations transversales ; d'autre part, la géométrie demi-circulaire est considérablement plus compacte et simple à utiliser puisque les fonctions $F(\alpha)$ et $G(\alpha)$ deviennent linéaire et constante, respectivement. Toutefois, la fabrication d'une telle sonde était pratiquement irréalisable à l'époque ; seules les sondes rectangulaires doubles ($\theta = 0$) furent testées expérimentalement (entre autres : Tournier et Py, 1978; Labraga *et al.*, 1991). Il en demeura que ce design était plus intéressant que celui utilisé par Sirkar et Hanratty, car il offre une meilleure réponse en fréquence (Hanratty et Campbell, 1996) et est plus compact ($l/L \simeq 3$–5 comparativement à $l/L \simeq 10$–13 pour l'agencement en chevron). Comme pour la géométrie demi-circulaire, s et α sont accessibles avec (2.20) et (2.21) avec la sonde double rectangulaire, où les fonctions F et G sont préférablement déterminées à l'aide d'un étalonnage adéquat afin de tenir compte des défauts de géométrie.

Ce type d'agencement ne semble toutefois plus être couramment utilisé, possiblement dû à une insuffisante sensibilité aux changements de direction en écoulement instationnaire. On retrouve plus fréquemment les sondes rectangulaires de type « sandwich » (Figure 2.5*c*), où deux électrodes rectangulaires sont séparées par un mince interstice et sont disposées *perpendiculairement* à l'écoulement. D'abord proposée par Son et Hanratty (1969), cette géométrie est spécialement utilisée pour détecter les changements de sens du cisaillement : puisque les électrodes sont très rapprochées, la couche de diffusion de la première vient atténuer le signal de la seconde. La valeur signée de s peut ainsi être déterminée en étudiant les signaux $K_1 - K_2$ et $K_1 + K_2$; ce type de sonde offre également une réponse dynamique sensiblement supérieure aux sondes simples (Py, 1973). La détection d'un changement de sens

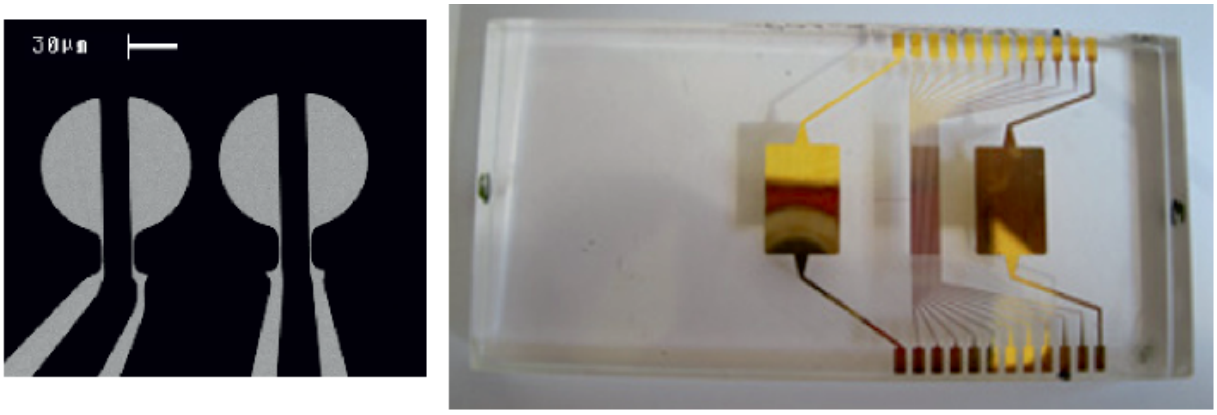


Figure 2.6 Sondes fabriquées par photolithographie. Gauche : sonde demi-circulaire utilisée par Deslouis *et al.* (2004). Droite : assemblage de 20 sondes rectangulaires rapprochées (Tihon, 2014). Les deux plus grosses électrodes sont les anodes. Image adaptée de Tihon (2014), avec permission (CC BY 2.0)

n'est toutefois pas assurée aux plus hautes fréquences sans l'utilisation d'un post-traitement plus sophistiqué tel qu'un problème inverse (Mao et Hanratty, 1992).

Il a fallu attendre jusqu'en 1993 pour voir apparaître les premières sondes demi-circulaire doubles. Profitant des avancées technologiques, Deslouis *et al.* (1993) ont eu recours au processus de photolithographie pour fabriquer une électrode formée de deux demis disques séparés par un mince interstice (Figure 2.6). Cherchant à mesurer l'intensité des fluctuations axiales et transversales dans un écoulement turbulent, leurs résultats étaient concluants pour la mesure de $\overline{s_x'^2}$, bien que peu convaincants concernant $\overline{s_z'^2}$. Ils ont attribué cet écart à des défauts de fabrication. Une amélioration de la méthode de fabrication par photolithographie leur a permis ultérieurement de valider les mesures pour $\overline{s_z'^2}$ (Deslouis *et al.*, 2004). La fabrication de sondes ED par photolithographie a d'ailleurs été plus récemment utilisée par Tihon (2014), où 20 électrodes rectangulaires ont été insérées dans un micro canal, chacune séparée par un interstice de 40 µm (cf. Figure 2.6).

Dû au plan de symétrie des sondes doubles, la détermination de α est difficile lorsque les variations d'angle dépassent $\pm 45\,^\circ$. En utilisant une sonde « tri-segmentée », Wein et Sobolík (1987) ont développé une théorie permettant de mesurer le module et la direction du gradient pariétal de vitesse avec une meilleur résolution, et ce sur $360\,^\circ$. Ce capteur est composé de trois segments d'aires égales, assemblés de façon à former une sonde circulaire et séparés par un mince interstice (Figure 2.5*d*). Similairement aux sondes doubles, la somme des courants mesurés par chaque segment $m \in \{0, 1, 2\}$ permet la mesure de s, tandis que α est accessible

à partir des propriétés directionnelles de la sonde, obtenues lors d'un étalonnage angulaire (cf. section 2.6.5).

Outre la mesure de la direction α, Wein et Sobolík (1989) voulaient utiliser la sonde tri-segmentée afin d'évaluer v, la composante de la vitesse perpendiculaire à la sonde dans certains types d'écoulement. Des mesures dans un dispositif de disque tournant (Sobolík *et al.*, 1990), puis près du point de stagnation d'un jet impactant sur une paroi (Baleras *et al.*, 1996), ont été effectuées pour tester leur théorie. Ces recherches ont toutefois démontré que seule une approximation grossière sur v était possible considérant la présence de défauts géométriques et d'interstices trop larges. En particulier, lorsque la direction de l'écoulement est alignée avec un des interstices, le fluide traversant cette zone n'est pas réduit à l'électrode, si bien que le secteur en aval recevra une quantité de solution plus concentrée, augmentant ainsi le transfert de masse dans ce secteur. Cet effet, connu sous le nom de *beak effect* (Wein et Wichterle, 2008), est d'autant plus important que la convection de l'écoulement est élevée, puisque la diffusion latérale est diminuée. Malgré tout, la direction moyenne de l'écoulement a tout de même pu être évaluée avec une précision meilleure que 10 ° dans les deux études.

Bien que la sonde tri-segmentée soit beaucoup moins présente dans la littérature comparativement aux sondes simples et doubles, plusieurs auteurs se sont intéressés à cette géométrie dans les 25 dernières années. Notons les travaux de Sobolík *et al.* (1995), Wouahbi *et al.* (2007), Sobolik *et al.* (2011) et Kristiawan *et al.* (2011) en écoulement de Couette cylindrique, notamment sur l'apparition d'une instabilité de Taylor–Couette. Notons également les études des zones de recirculation dans une veine comportant une expansion soudaine (Tihon *et al.*, 2001), du jet impactant (Baleras *et al.*, 1996) et d'écoulements autour de sphères (Sobolik *et al.*, 2007; Dumas *et al.*, 2009), pour en nommer quelques-unes.

2.5 Mesure du gradient pariétal de vitesse instationnaire

Lorsque des phénomènes modérément à fortement instationnaires caractérisent un écoulement, les effets d'inertie de couche limite deviennent rapidement non-négligeables, déphasant et atténuant le signal d'une sonde ED. Le modèle de Lévêque pour la mesure du gradient pariétal de vitesse instantané n'est donc plus valide, bien qu'il demeure un bon indicateur de la moyenne temporelle $\overline{s}$. Plusieurs post-traitements ont été développés avec les années afin de corriger partiellement sinon presque entièrement ces effets. Trois des plus communément utilisés seront détaillés dans cette section.

2.5.1 Méthode spectrale

Longtemps utilisée par de nombreux auteurs, cette méthode profite de la linéarisation de l'équation de CD pour modéliser le comportement des sondes ED à l'aide de données spectrales. Les premiers travaux sur la réponse fréquentielle des sondes remontent à Reiss et Hanratty (1963), puis sont repris plus en détails par Mitchell et Hanratty (1966), qui se sont intéressés aux faibles perturbations dans un écoulement parallèle turbulent. En utilisant la décomposition de Reynolds, s et K peuvent se diviser en composantes moyenne $\overline{(\sim)}$ et fluctuante $(\sim)'$, soit

$$\begin{aligned} s(t) &= \overline{s} + s'(t), \\ K(t) &= \overline{K} + K'(t). \end{aligned} \tag{2.22}$$

En introduisant (2.22) dans l'équation de CD instationnaire sans diffusion axiale et en linéarisant cette équation pour de faibles perturbations, l'équation des fluctuations peut être résolue (Mitchell et Hanratty, 1966) pour de faibles fréquences. L'équation *quasi-stationnaire* des perturbations se formule ainsi par

$$\frac{K'_q}{\overline{K}} = \frac{1}{3}\frac{s'}{\overline{s}} \tag{2.23}$$

et est valide pour de faibles fréquences. Mitchell et Hanratty (1966) ont également résolu numériquement l'équation des fluctuations à haute fréquence pour en ressortir un facteur de correction d'amplitude $A^2 = |K'|^2/K'^2_q$, caractérisant le rapport entre les modules des transferts de masse fluctuants instationnaire et quasi-stationnaire. Les auteurs ont relié la densité spectrale de puissance (DSP) du transfert de masse instationnaire $W_{K'}$ à la DSP du gradient pariétal de vitesse fluctuant $W_{s'}$ sous la forme (Hanratty, 1991)

$$W_{s'}(f) = 9\frac{\overline{s}^2}{\overline{K}^2}\frac{W_{K'}(f)}{A^2(f)}. \tag{2.24}$$

Fortuna et Hanratty (1971) sont venus compléter la formulation de A pour une plus vaste gamme de fréquences, puis Mao et Hanratty (1985) y ont ajouté une correction du déphasage. Plusieurs études expérimentales viennent confirmer cette relation (Maquinghen, 1999).

Une telle approche avait spécialement été développée pour l'étude d'écoulements turbulents. La distribution d'énergie des structures tourbillonnaires en proche paroi pouvait ainsi être mieux étudiée en profitant de la relation (2.24) entre les DSP. Cette méthode continue d'ailleurs d'être utilisée (Deslouis *et al.*, 2004; Dib *et al.*, 2014).

Considérant la linéarisation des équations, cette approche n'est toutefois valide que pour des perturbations d'amplitude faible à modérée sur le frottement ; son utilisation n'est donc pas

recommandée en présence de forts gradients de pression adverses ou d'un changement de sens du cisaillement.

Utilisation de la fonction de transfert du courant fluctuant

Ambari *et al.* (1986) ont figuré parmi les premiers à valider expérimentalement (2.24) de façon rigoureuse et sur une large plage de fréquences. Les auteurs ont également adapté la formulation en utilisant le concept d'une fonction de transfert, où la DSP de la composante fluctuante du courant $W_{I'}$ serait reliée à celle du gradient pariétal de vitesse $W_{s'}$ d'après la relation

$$W_{I'} = |\mathcal{H}_{I'}(f)|^2 \, W_{s'}, \tag{2.25}$$

avec $\mathcal{H}_{I'}(f)$ la fonction de transfert du courant fluctuant mesuré par une sonde ED dans un écoulement instationnaire. Selon cette définition, il est également possible de reformuler (2.25) en utilisant les transformées de Fourier $s'(f) = FT(s'(t))$ et $I'(f) = FT(I'(t))$, soit

$$\mathcal{H}_{I'}(f) = \frac{I'(f)}{s'(f)}. \tag{2.26}$$

Ambari *et al.* ont calculé analytiquement la forme de $\mathcal{H}_{I'}(f)$ pour les régimes de basses et hautes fréquences. Toutefois, afin de valider expérimentalement $\mathcal{H}_{I'}(f)$, une relation intermédiaire était nécessaire puisque $s'(f)$ est l'information recherchée et n'est donc pas connue. Les auteurs ont donc établi une fonction de transfert hydrodynamique reliant $s'(f)$ à l'amplitude du mouvement oscillatoire imposé sur leur système $\Omega'(f)$:

$$\mathcal{H}_{\text{hyd}} = \frac{s'}{\Omega'}. \tag{2.27}$$

La fonction de transfert du courant peut alors s'exprimer

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{I'} &= \frac{I'}{s'} = \frac{I'}{\Omega'} \frac{\Omega'}{s'}, \\ \mathcal{H}_{I'} &= \mathcal{H}_{\text{hyd}}^{-1} \frac{I'}{\Omega'}. \end{aligned} \tag{2.28}$$

À partir de mesures temporelles du courant et connaissant l'amplitude de la pulsation, la fonction de transfert expérimentale $\mathcal{H}_{I'}$ peut ainsi être construite. Une bonne concordance a été notée entre la fonction de transfert analytique et les résultats expérimentaux de Deslouis *et al.* (1990), obtenus dans un écoulement fluctuant généré par un disque en rotation, validant ainsi (2.26).

Cette approche suggère donc que, connaissant la forme de $\mathcal{H}_{I'}(f)$, il serait possible de remonter à l'évolution temporelle du gradient pariétal de vitesse fluctuant à partir de mesures de $I'(t) = I - \overline{I}$, soit en soustrayant la composante moyenne au signal. En effet, réécrivant (2.26) à l'aide de la transformée de Fourier inverse FT^{-1}, on obtient

$$s'_{FT}(t) = FT^{-1}\left(\frac{FT(I'(t))}{\mathcal{H}_{I'}(f)}\right) \tag{2.29}$$

Le gradient pariétal de vitesse se formule donc ici, avec la méthode spectrale (indice « FT »), par

$$s_{FT}(t) = \overline{s} + s'_{FT}(t), \tag{2.30}$$

où $\overline{s}$ est la moyenne temporelle, calculable notamment à partir de (2.15). Il est à noter que, similairement à l'approche précédente, cette méthode est basée sur une linéarisation de l'équation de CD et n'est donc pas valable en présence de fluctuations à forte amplitude.

2.5.2 Méthode de Sobolík

De façon similaire aux étalonnages dynamiques utilisés, par exemple, pour l'anémomètre à fil chaud, la réponse d'une sonde ED à une impulsion permet également de caractériser l'inertie de la couche de diffusion d'un couple électrode–électrolyte.

Réponse impulsionnelle d'une sonde ED

Suite à la mise sous tension d'une sonde ED, les charges électriques des espèces réactives contenues dans la solution se mettent en mouvement et donnent rapidement naissance à la couche de diffusion à l'interface électrode–électrolyte (cf. section 2.2.4). Durant les premiers instants succédant à cette impulsion, le transfert de masse suit une évolution temporelle particulière, connue sous le nom d'asymptote de *Cottrell*. Afin d'expliquer ce phénomène, revenons à la forme la plus simple de l'équation de CD. En l'absence de transferts de masse par convection et migration, l'équation (2.4) n'est contrôlée que par des phénomènes de diffusion et suit la deuxième loi de Fick :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D\nabla^2 c. \tag{2.31}$$

La solution de cette équation est obtenue en passant au domaine de Laplace, soit en 1D

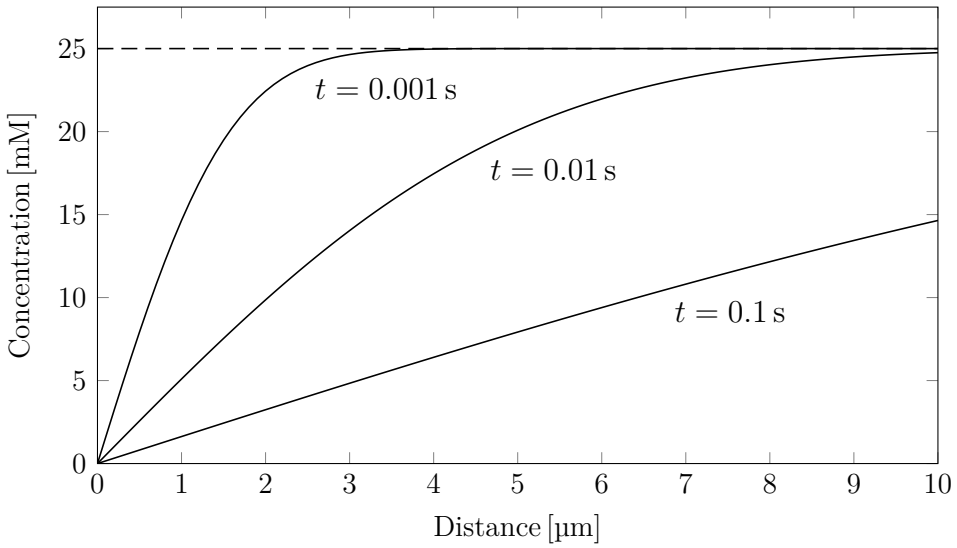


Figure 2.7 Profils de concentration à différents instants suite à un saut de tension et suivant (2.32). $D = 7.5 \times 10^{-10}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$; $C_0 = 0.025\,\mathrm{M}$

$$c(y,t) = C_0 \operatorname{erf}\left(\frac{y}{2(Dt)^{1/2}}\right), \tag{2.32}$$

avec y la distance perpendiculaire à la sonde. Le profil de concentration régi par l'équation (2.32) est illustré en Figure 2.7 pour différents instants, progressant d'une concentration nulle à l'électrode ($y = 0$) jusqu'à une concentration C_0 dans la masse. Il va de soi qu'en présence de diffusion seule, la couche deviendra rapidement plus épaisse et elle aura tendance à occuper tout le domaine pour un temps $t \to \infty$. Toutefois, l'ajout d'effets convectifs (e.g. mouvement du fluide) viendra limiter la taille de cette couche : son épaisseur δ_c tendra ainsi vers une dimension finie, essentiellement proportionnelle à la vitesse moyenne de l'écoulement. En fait, on retrouvera généralement [5]

$$\delta_c \sim \left(\frac{Dl}{s}\right)^{1/3} \tag{2.33}$$

en bord de fuite d'une sonde ED. D'après (2.32) et la relation (2.5) reliant le courant I au transfert de masse, l'évolution du courant suite à l'imposition d'une tension E au temps $t = 0$

5. Cette relation découle de la solution de l'équation de CD présentée en section 2.3.3. Bien que d'après l'équation (2.12), la condition $c(x,y) = C_0$ n'est satisfaite qu'à $\eta \to \infty$, l'épaisseur δ_c fait généralement référence à une position $c(x, y = \delta_c) = 0.99\,C_0$. Selon (2.12), cette condition est respectée pour $\eta \simeq \sqrt{2}$.

tel que

$$E(t) = \begin{cases} 0 & \text{pour } t < 0 \\ E & \text{pour } t \geq 0, \end{cases} \tag{2.34}$$

devrait suivre l'asymptote de Cottrell, soit

$$I_{\text{cot}}(t) = nFAC_0 \left(\frac{D}{\pi t}\right)^{1/2}. \tag{2.35}$$

Pareillement à l'évolution temporelle de la concentration (2.32), l'équation (2.35) suggère qu'après un temps $t \to \infty$, l'épaisseur de la couche de diffusion sera telle que les gradients de concentration seront pratiquement nuls, si bien que le courant tendra vers 0. Or, on sait qu'en présence d'un écoulement en régime permanent, le courant mesuré à la sonde sera dicté par la solution de Lévêque (2.14). Il doit donc exister une période intermédiaire durant laquelle le courant évolue progressivement vers la solution quasi-stationnaire afin de relier ces deux phénomènes. Wein et Kovalevskaya (1984) ont dérivé une équation analytique modélisant cette phase transitoire, qui fût ensuite reformulée par Sobolík *et al.* (1998) telle que

$$I(t)/I_{\text{q}} = \begin{cases} (t/t_0)^{-1/2} + (4/27)(t/t_0) & \text{pour } t/t_0 < 9/4 \\ 1 & \text{pour } t/t_0 > 9/4 \end{cases} \tag{2.36}$$

où I_{q} est calculé selon (2.14) et t_0 est une constante de temps correspondant à l'intersection de l'asymptote de Cottrell avec la solution quasi-stationnaire (cf. Figure 2.8, correspondant à $t/t_0 = 1$), soit

$$\begin{aligned} I_{\text{cot}}(t = t_0) &= I_q \\ nFAC_0 \left(\frac{D}{\pi t_0}\right)^{1/2} &= \frac{knC_0FAD^{2/3}}{l^{1/3}}\, s_{\text{q}}^{1/3} \\ t_0 &= \frac{1}{\pi\, k^2} \left(\frac{l^2}{D s_{\text{q}}^2}\right)^{1/3} \end{aligned} \tag{2.37}$$

Tel qu'observé en Figure 2.8, l'équation (2.36) approxime parfaitement (2.35) pour $t \to 0$, puis converge graduellement vers I_{q} jusqu'à $t = 9/4\, t_0$.

Résolution de l'équation de convection–diffusion

Pour modéliser cette période transitoire, Sobolík *et al.* (1987) ont utilisé la fonction de similitude à trois variables suivante pour représenter le champ de concentration bidimensionnel

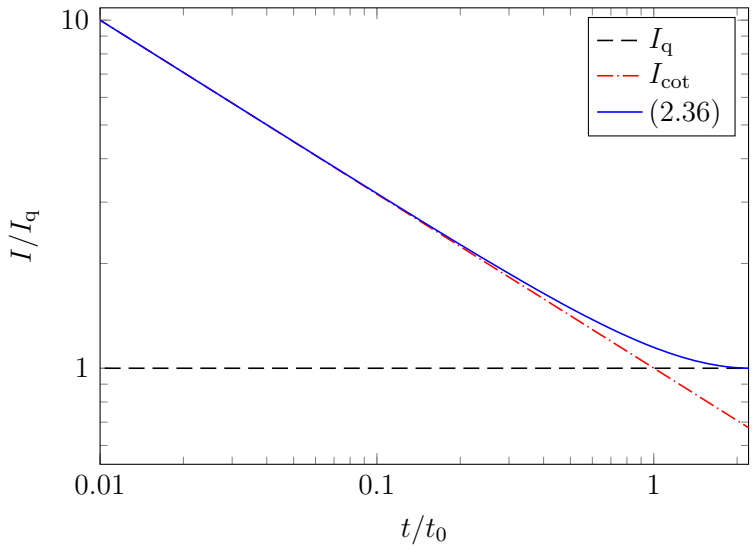


Figure 2.8 Évolution du courant suite à un saut de tension ; comparaison entre les relations théoriques (I_q et I_cot) et adaptée (2.36)

au voisinage d'une sonde ED

$$c(x,y,t) \approx C_0 \left(1 - F\left(\frac{y}{\delta(t)}\left(\frac{l}{x}\right)^{1/3}\right)\right), \tag{2.38}$$

où $F(\sim)$ est une fonction décroissante ayant comme conditions limites $F(0) = 1, F(\infty) = 1, F'(0) = -1$. En remplaçant (2.38) dans la forme instationnaire de l'équation (2.10) et en solutionnant pour $s(t)$, Sobolík *et al.* ont obtenu une équation de la forme

$$s(t) = b_1 \left(I^3(t) + b_2 \frac{\mathrm{d}I(t)}{\mathrm{d}t}\right) \tag{2.39}$$

où b_1, b_2 sont des constantes caractérisant le couple électrode–électrolyte. En utilisant la relation (2.36) sur le courant suivant un saut de tension, les auteurs ont obtenu une solution pour la mesure du gradient pariétal de vitesse instationnaire :

$$s_\mathrm{sob} = s_\mathrm{q} + \frac{2}{3\pi k^2}\left(\frac{l^2}{D}\right)^{1/3} s_\mathrm{q}^{-2/3}\frac{\mathrm{d}s_\mathrm{q}}{\mathrm{d}t}, \tag{2.40}$$

ou encore

$$s_\mathrm{sob}(t) = s_\mathrm{q} + \frac{2}{3}t_0\frac{\mathrm{d}s_\mathrm{q}}{\mathrm{d}t}. \tag{2.41}$$

où s_q est évalué avec (2.15). Le modèle de Sobolík [6] a depuis été utilisé et testé par de nombreux auteurs. Les expériences démontrent que (2.41) offre une correction précise du gradient pariétal de vitesse instantané tout en étant relativement simple à évaluer. (2.41) est une équation différentielle linéaire du premier ordre, si bien que le modèle agit comme une fonction de transfert (d'un système du premier ordre) en corrigeant l'inertie de la sonde (amplitude et phase). Contrairement à la méthode spectrale, aucune hypothèse n'est également posée quant à l'amplitude des fluctuations ; la méthode de Sobolík peut ainsi corriger adéquatement s_q en présence de perturbations d'amplitude modérée à forte et approxime généralement mieux $s(t)$ qu'en utilisant une fonction de transfert, comme démontré numériquement par Rehimi *et al.* (2006). Toutefois, cette méthode n'est pas valide en présence d'une inversion sur le cisaillement.

Par ailleurs, bien que la constante t_0 dans (2.41) puisse être évaluée à l'aide des propriétés électrochimiques du couple électrode–électrolyte, une étalonnage additionnel basé sur l'asymptote de Cottrell peut également être utilisé (cf. section 2.6.6).

2.5.3 Méthode inverse

Le manque de précision sur la mesure de $s(t)$ en présence de perturbations à forte amplitude a poussé les chercheurs à développer de nouvelles méthodes de post-traitement du transfert de masse. À l'instar de méthodes utilisées notamment en transfert de chaleur par conduction, Mao et Hanratty (1991a) ont développé un *problème inverse* adapté au cas bidimensionnel de l'équation de CD. Contrairement aux méthodes dites *directes* [7], où $s(t)$ est directement calculé à partir de la mesure du transfert de masse à l'électrode, la méthode inverse évalue séquentiellement le champ de concentration instantané $c(x, y, t)$ en résolvant numériquement l'équation de CD. Mao et Hanratty (1991b) ont démontré à l'aide de cas expérimentaux en régime turbulent que cette méthode offre une estimation plus juste du gradient pariétal de vitesse instantané comparativement à la méthode spectrale, cette dernière sous-estimant l'énergie de l'écoulement aux hautes fréquences.

Maquinghen (1999) a utilisé cette méthode pour étudier l'écoulement autour d'un cylindre. On peut conclure de ses résultats que la méthode inverse estime beaucoup mieux $s(t)$ que la solution quasi-stationnaire en présence de phénomènes instationnaires et dans le cas d'un décollement de la couche limite. Labraga *et al.* (2002) ont également comparé les transferts de masse obtenus par les méthodes inverse et spectrale et leurs conclusions suivaient celles de

6. Bien que ce nom soit communément utilisé pour référer à ce post-traitement dérivé par Sobolík *et al.* (1987), on notera que (2.41) a également été obtenue quelques années plus tard dans les travaux de Wang et Tarbell (1993) en utilisant une approche différente.

7. À titre d'exemples, les méthodes présentées jusqu'à présent sont toutes dites *directes*.

Mao et Hanratty. Toutefois, aucune étude expérimentale ne semble avoir validé la méthode avec des mesures de références fiables du frottement pariétal.

Rehimi *et al.* (2006) furent les premiers à comparer exhaustivement la méthode inverse aux méthodes directes. En utilisant des données simulées numériquement, ils ont d'abord montré que le gradient pariétal de vitesse calculé avec un problème inverse converge rapidement vers la valeur imposée en présence de perturbations à forte amplitude et faible fréquence ($f \to 0$), même en présence d'un écoulement de retour. Ils ont ensuite comparé cette approche aux méthodes directes (s_{q}, s_{FT} et s_{sob}) pour des écoulement légèrement à hautement instationnaires, ainsi qu'en présence de perturbations d'amplitude faible à forte. Leurs résultats démontrent que la méthode inverse surpasse toutes les autres pour n'importe quelle condition d'écoulement.

Bien que la méthode inverse apparaisse comme étant plus précise que les méthodes directes, il demeure que sa mise en œuvre peut s'avérer coûteuse, particulièrement lorsque l'on s'intéresse à des écoulements tridimensionnels. C'est pourquoi plusieurs auteurs continuent d'utiliser la méthode de Sobolík lorsque les conditions de l'écoulement le permettent, étant beaucoup plus accessible.

Adimensionnement de l'équation de convection–diffusion

Rehimi *et al.* (2006) ont testé la méthode inverse pour le cas bidimensionnel de l'équation de CD instationnaire, avec l'hypothèse d'un écoulement parallèle ($v = 0$) et un profil de vitesse linéaire $u(y,t) = s(t)y$. L'équation générale de CD (2.4) se réduit ainsi à

$$\frac{\partial c}{\partial t} + s(t)y\frac{\partial c}{\partial x} = D\left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2}\right). \tag{2.42}$$

De façon adimensionnelle, en utilisant les variables

$$\begin{gathered} X = \frac{x}{l} \qquad Y = \frac{y}{\delta} \qquad \tau = tf \\ Pe = \frac{\overline{s}l^2}{D} \qquad Sr = \frac{fl^{2/3}}{\overline{s}^{2/3}D^{1/3}} \qquad S(t) = \frac{s(t)}{\overline{s}} \qquad C = \frac{c}{C_0} \end{gathered} \tag{2.43}$$

où $\delta = lPe^{-1/3}$ est une variable proportionnelle à l'épaisseur de la couche de diffusion en régime stationnaire et où f, Pe, Sr réfèrent respectivement à une fréquence caractéristique

de l'écoulement, aux nombres de Péclet et de Strouhal, (2.42) devient

$$Sr\frac{\partial C}{\partial \tau} + S(\tau)Y\frac{\partial C}{\partial X} = Pe^{-2/3}\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2}. \tag{2.44}$$

Puisque la méthode ED est basée sur la mesure d'un transfert de masse, ce dernier devra être reformulé conformément à l'adimensionnement (2.43). D'après (2.6), le courant mesuré par une sonde ED de longueur l et d'aire A est relié au transfert de masse par la relation

$$\frac{I}{nFA} = \frac{1}{l}\int_0^l -D\left.\frac{\partial c}{\partial y}\right|_{y=0} dx, \tag{2.45}$$

Il est fréquent de représenter la réaction à la sonde par le nombre adimensionnel de *Sherwood*,

$$Sh = \frac{Kl}{D} = \frac{Il}{nFAC_0D}, \tag{2.46}$$

ou encore avec la variable modifiée

$$Sh^* = ShPe^{-1/3}, \tag{2.47}$$

de sorte que le transfert de masse numérique devient simplement

$$Sh^* = \int_0^1 \left.\frac{\partial C}{\partial Y}\right|_{Y=0} dX, \tag{2.48}$$

considérant que la sonde est située en $0 \leq X \leq 1$. On notera que le signe $-$ dans (2.45) a été omis pour des fins d'usage.

Principe de la méthode inverse

Le post-traitement du transfert de masse à l'aide d'un problème inverse permet de corriger, à chaque pas de temps, les effets d'inertie de la couche de diffusion. Le principe de la méthode est de faire converger l'évolution temporelle du coefficient de transfert de masse numérique $Sh^*_{\text{num}}(\tau)$, obtenue en résolvant l'équation de CD avec les conditions limites propres à la Figure 2.9, vers son homologue expérimental $Sh^*_{\text{exp}}(\tau)$ au moyen d'un problème de minimisation ou de recherche de zéro(s). À convergence, on peut ainsi s'attendre à ce que $S_{\text{inv}}(\tau) = S_{\text{ex}}(\tau)$, soit que le gradient pariétal de vitesse utilisé dans le problème inverse S_{inv} converge également vers la valeur « exacte » S_{ex}. Afin d'alléger la notation, on notera pour la suite que $M = Sh^*_{\text{exp}}$ et que $Sh^* = Sh^*_{\text{num}}$. La Figure 2.10 synthétise les étapes de résolution de la méthode inverse.

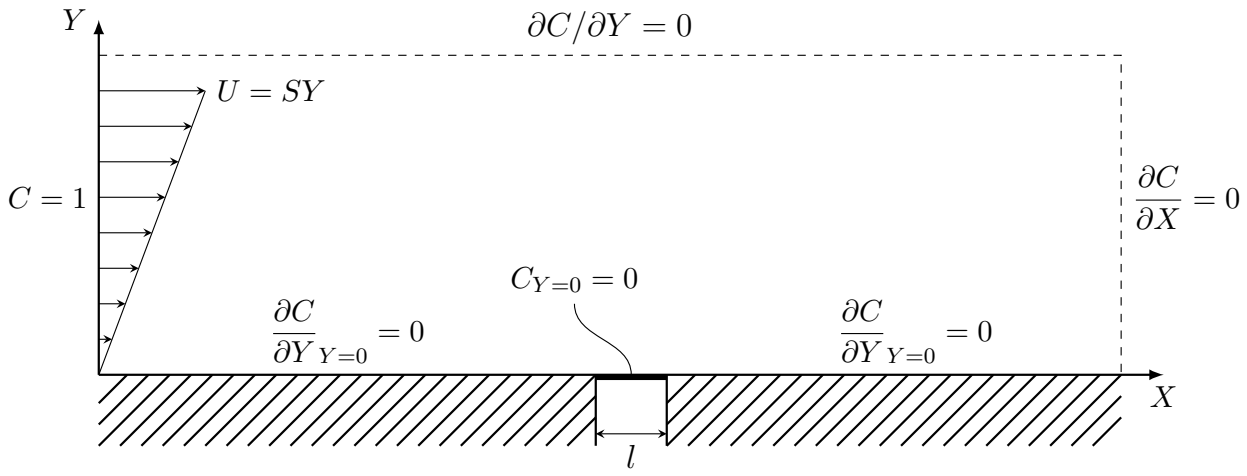


Figure 2.9 Conditions limites associées à la résolution de (2.44)

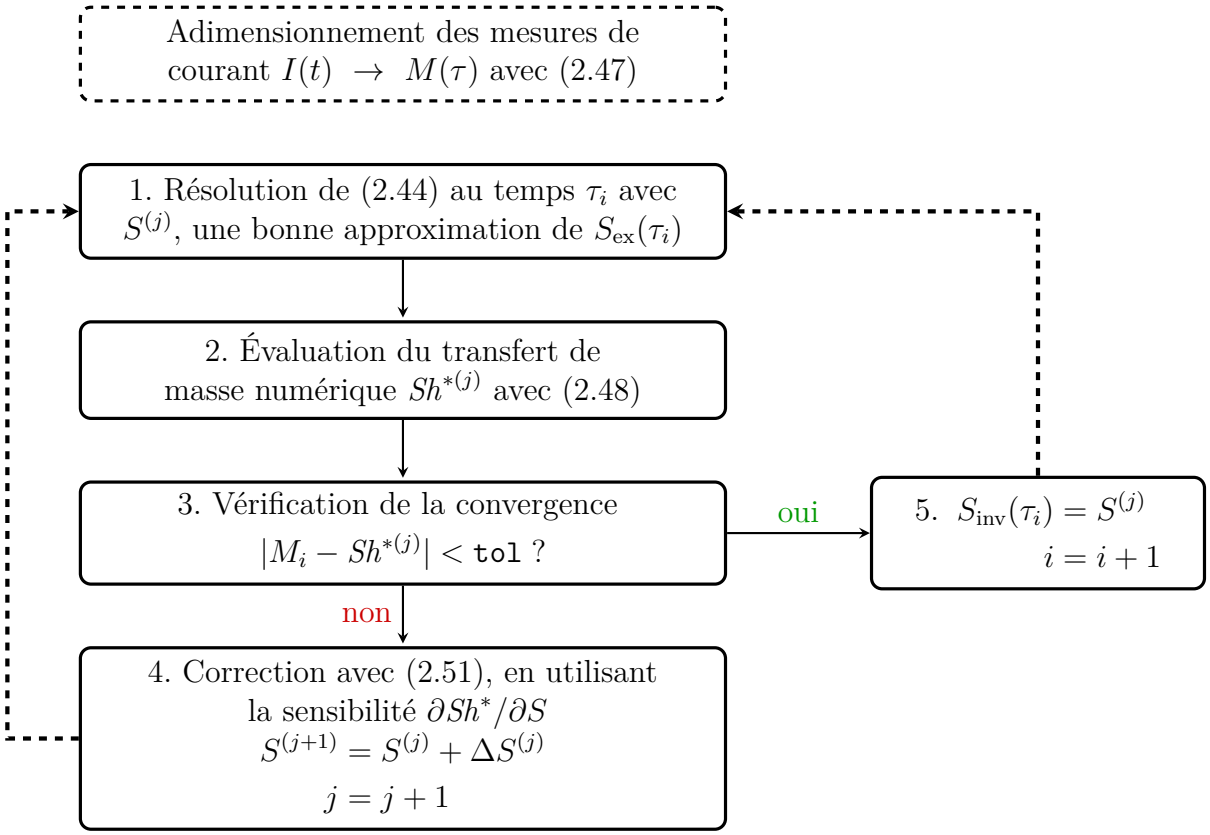


Figure 2.10 Schéma illustrant les principales étapes de résolution de la méthode inverse

De façon détaillée, le problème inverse se divise en plus ou moins cinq étapes. On notera que les indices i et j réfèrent respectivement au pas de temps i et à l'itération j [8]. Ainsi, pour tout pas de temps i tel que $\tau_i < \tau_{\max}$:

1. L'équation de CD (2.44) est résolue en imposant $S = S^{(j)}$, avec $S^{(j)}$ une bonne approximation de $S_{\mathrm{ex},i}$. Au premier pas de temps ($i = 0$), il est préférable de résoudre en régime stationnaire afin d'initialiser le champ de concentration $C(X, Y, \tau = \tau_0)$ et de favoriser la stabilité de la méthode. Il est également suggéré d'utiliser la solution quasi-stationnaire (indiqué par l'indice « q ») comme première valeur approximative du gradient pariétal de vitesse, soit

$$S_0^{(0)} = S_{\mathrm{q}}(\tau_0).$$

où $S_{\mathrm{q}}(\tau) = s_{\mathrm{q}}(\tau)/\overline{s}$. Par ailleurs, en utilisant les équations (2.15) et (2.43) pour une sonde rectangulaire, on peut également écrire :

$$\begin{aligned} S_{\mathrm{q}}(\tau) &= \frac{s_{\mathrm{q}}(\tau)}{\overline{s}}, \\ &= \frac{l}{\overline{s}D^2}\left(\frac{K(\tau)}{k}\right)^3, \\ &= \frac{D}{\overline{s}l^2}\left(\frac{K(\tau)l}{kD}\right)^3, \end{aligned}$$

et donc

$$S_{\mathrm{q}}(\tau) = \left(\frac{Sh^*(\tau)}{k}\right)^3. \tag{2.49}$$

2. Le transfert de masse numérique à l'itération j, $Sh^{*(j)}$, est évalué en utilisant (2.48).
3. L'objet de la méthode inverse est de faire converger le transfert de masse numérique vers les données expérimentales. Cette convergence est respectée lorsque la fonction du résidu

$$F^{(j)} = M_i - Sh^{*(j)} \tag{2.50}$$

tend vers 0, ou encore lorsque $|F^{(j)}| < \texttt{tol}$; la tolérance `tol` est choisie par l'utilisateur et peut s'avoisiner à la précision machine, bien qu'une valeur $\texttt{tol} \sim 1 \times 10^{-6}$ est

8. Bien que le fait d'itérer à chaque pas de temps ne soit pas nécessaire, il procure de meilleures propriétés de convergence par expérience de l'auteur. Cette étape semble toutefois omise dans les travaux concernant la méthode ED, possiblement dû à son coût numérique plus important.

généralement suffisante.

4. Dans l'éventualité où la solution n'est pas convergée, une correction $\Delta S^{(j)} = S^{(j+1)} - S^{(j)}$ doit être apportée au gradient pariétal de vitesse pour la prochaine itération. Une méthode de Newton est généralement utilisée (Mao et Hanratty, 1991a; Rehimi *et al.*, 2006), où la correction est évaluée suivant

$$\Delta S^{(j)} = -\frac{F^{(j)}}{F'^{(j)}}.$$

On retrouve donc

$$\Delta S^{(j)} = \frac{M_i - Sh^{*(j)}}{\dfrac{\partial Sh^{*(j)}}{\partial S^{(j)}}} \tag{2.51}$$

Dans la littérature, $\partial Sh^{*(j)}/\partial S^{(j)}$ est généralement calculé par différences finies, donc en utilisant l'approximation linéaire

$$\frac{\partial Sh^{*(j)}}{\partial S^{(j)}} = \frac{Sh^*(S^{(j)} + \epsilon_S S^{(j)}) - Sh^*(S^{(j)} - \epsilon_S S^{(j)})}{2\epsilon_S S^{(j)}}, \tag{2.52}$$

où $Sh^*(S^{(j)} + \epsilon_S S^{(j)})$ est la valeur du nombre de Sherwood modifié pour un écoulement soumis à une vitesse de cisaillement $S = (1 + \epsilon_S)S^{(j)}$, avec ϵ_S une faible perturbation de l'ordre de 10^{-5}. Cette méthode nécessite donc de résoudre deux autres fois l'équation de CD.

Puisqu'à cette étape la convergence n'est encore atteinte, les étapes 1 à 3 doivent ensuite être répétées.

5. Lorsque le transfert de masse est convergé pour un pas de temps i, on supposera que les conditions numériques représentent fidèlement les conditions expérimentales et donc que $S_{\text{inv}}(\tau_i) = S_{\text{ex}}(\tau_i)$, avec

$$S_{\text{inv}}(\tau_i) = S^{(j)}.$$

Par expérience de l'auteur, la méthode converge assez rapidement (entre deux et quatre itérations). Enfin, tant que $\tau_i < \tau_{\max}$, on reprendra à partir de l'étape 1. On notera également que pour $i \neq 0$, (2.44) doit être résolue en régime *instationnaire* ; on utilisera alors à la première itération $S^{(j=0)} = S_{\text{inv}}(\tau_{i-1})$.

2.5.4 Méthodes directes alternatives

Alors que les trois méthodes présentées plus tôt sont les plus couramment utilisées avec la méthode ED, il importe également de souligner certains post-traitements développés plus particulièrement pour l'anémomètre à film chaud, bien qu'étant également applicables pour une sonde ED.

Bien avant les travaux sur la méthode inverse, Pedley (1976) proposa un modèle analytique du transfert de chaleur mesuré par un film chaud qui serait valide en présence d'un changement de sens du cisaillement. Ce modèle est basé sur une solution de l'équation de CD instationnaire sans diffusion axiale, où l'évolution du gradient pariétal de vitesse $s(t)$ est découpée en trois phases :

1. Évolution pseudo-stationnaire respectant $s > 0$, où l'équation est balancée par les effets de convection et de diffusion et où une légère correction temporelle est ajoutée.
2. Phase où s change de signe, caractérisée par un équilibre entre les termes temporel et de diffusion ; le terme de convection est ici négligé.
3. Idem au cas 1, mais pour $s < 0$.

Une importante approximation dans cette théorie est qu'une transition brutale intervient entre les étapes 1–2, puis 2–3. Les tests effectués à l'aide de données expérimentales montrent que le modèle représente correctement le transfert de masse en régime instationnaire sans inversion du cisaillement ; un déphasage notable entre les résultats et la contrainte imposée est toutefois observé. Dans les cas où s devient négatif, les effets de déphasages sont particulièrement importants et des surévaluations de l'amplitude des fluctuations sont observées. La forme de la contrainte imposée est tout de même relativement bien représentée dans l'ensemble par ce modèle.

À l'instar des travaux sur la méthode de Sobolík présentée en section 2.5.2, Menendez et Ramaprian (1985) ont utilisé une fonction de similitude pour développer un post-traitement adapté au film chaud et supposant une courbure dans le profil de vitesse (un des seuls modèles à ainsi délaisser l'hypothèse $u = sy$), terme qui est en fait fonction du gradient de pression axial. La solution obtenue est très similaire à l'équation (2.41) proposée par Sobolík *et al.*, comportant toutefois un terme additionnel qui tient compte du gradient de pression. Les tests numériques effectués montrent que ce post-traitement offre une correction très adéquate même à haute fréquence. Alors que l'ajout d'un terme additionnel semble améliorer les performances de la méthode lorsque $s < 0$, elle n'offre qu'une simple approximation du gradient pariétal de vitesse en présence d'un changement de sens.

En somme, aucune méthode directe ne semble, à ce jour, être en mesure d'évaluer adéqua-

tement le frottement pariétal lorsque des changements de sens sont observés en écoulement instationnaire.

2.6 Considérations expérimentales

La méthode ED est basée sur la mesure du courant électrique généré par une réaction d'oxydoréduction entre une électrode et une espèce réactive contenue dans le fluide. Un système de mesures ED doit donc, à la base, être composé de deux électrodes (une anode et une cathode) et d'un *potentiostat* (ou un système équivalent), dont le rôle consiste essentiellement à fournir le courant nécessaire à n'importe quel instant pour correspondre à la tension imposée entre les électrodes (Bard et Faulkner, 2001, p. 157). Les procédures expérimentales fondamentales nécessaires à l'évaluation du gradient pariétal de vitesse à partir de mesures de sondes ED seront donc traitées dans cette section, de même que certaines contraintes et considérations pratiques.

2.6.1 Électrodes et pré-traitements

L'électrode de travail (ici, la cathode) est préférablement fabriquée d'un métal noble tel que le platine ou l'or, bien que le nickel ait souvent été utilisé. L'électrode auxiliaire ou l'anode peut quant à elle être fabriquée d'acier inoxydable, par exemple. Afin de ne pas limiter la réaction, cette électrode doit toutefois être d'une taille largement supérieure à l'électrode de travail.

L'état de surface des sondes est un paramètre important à respecter. La rugosité de surface devrait être négligeable devant l'épaisseur de la couche de diffusion δ_c, normalement de l'ordre de quelques µm à plusieurs dizaines de µm, tout dépendant de l'intensité des effets convectif et diffusif, cf. (2.33). Ainsi, une rugosité de surface sous le micron est recommandée. On cherchera également à polir les sondes par étapes, en utilisant des papiers de rugosité décroissante et en terminant préférablement avec une pâte d'alumine (taille des grains $\sim 0.1\,\mu\text{m}$) ou l'équivalent. L'électrode devrait aussi être dégraissée, puis rincée à l'eau distillée. Le polissage d'une sonde permet par ailleurs d'éliminer les espèces fixées par adsorption sur sa surface (cf. section 2.6.9) et d'ainsi corriger les défauts d'empoisonnement.

Certains auteurs recommandent aussi de procéder ensuite à un *traitement cathodique* de l'électrode, où celle-ci est polarisée pendant quelques minutes de façon à provoquer une évolution d'hydrogène pour éliminer les oxydes formés sur la surface de la sonde. Il serait préférable d'effectuer cette opération dans l'électrolyte support, soit sans la présence du couple oxydoréducteur (Berger et Ziai, 1983; Szánto *et al.*, 2008). Cette étape est toutefois

souvent négligée. Il semblerait que la négligence de ce traitement ne soit pas critique lorsque le plateau de courant limite (cf. section 2.2.1) est bien défini (Berger et Ziai, 1983).

2.6.2 Électrolytes utilisés

Alors qu'en principe la nature de l'électrolyte peut varier, plusieurs critères sont à considérer lors de sa sélection. Notamment, il est préférable que la solution respecte les conditions suivantes (Hanratty et Campbell, 1996) :

1. Sous la tension utilisée pour les mesures, aucune autre réaction ne devrait être provoquée, sans quoi le courant mesuré serait biaisé.
2. La constante de vitesse associée à la réaction devrait être élevée ; le coefficient de diffusion D devrait donc l'être également.
3. L'espèce ajoutée pour limiter le effets de migration (section 2.2.2) ne devrait pas participer à la réaction.
4. La solution devrait être non-toxique et pouvoir être utilisée dans des bancs de mesure conventionnels.
5. La solution ne devrait pas attaquer ou empoisonner (cf. section 2.6.9) l'électrode.

En pratique, il est toutefois difficile de respecter entièrement ces conditions et certains compromis doivent être faits.

Considérant ces recommandations, deux réactions différentes à l'électrode sont surtout utilisées. La plus commune est la réduction du ferricyanure en ferrocyanure à la cathode :

$$[\mathrm{Fe(CN)_6}]^{3-} + \mathrm{e}^- \longrightarrow [\mathrm{Fe(CN)_6}]^{4-}. \tag{2.53}$$

La concentration du ferricyanure varie normalement entre 0.01 et 0.03 mol/L (M) ; celle du ferrocyanure est similaire. Une solution typique est un mélange équimolaire à 0.025 M auquel est ajouté en excès le sel $\mathrm{K_2SO_4}$ (entre 1 % et 4 % massique) pour limiter le transfert de masse par migration. Les sels NaOH et KCl ont également été utilisés par divers auteurs (Hanratty et Campbell, 1996). L'ajout de l'électrolyte support amène aussi plusieurs bienfaits électrochimiques dont une diminution de la résistivité de la solution (Bard et Faulkner, 2001), bien qu'il puisse parfois venir altérer la réaction dépendant de la nature du composé ajouté (cf. section 2.6.9). De même, la réduction du triiodure en iodure,

$$\mathrm{I_3^-} + 2\,\mathrm{e}^- \longrightarrow 3\mathrm{I}^-, \tag{2.54}$$

a été utilisée à maintes reprises. L'iodure de potassium KI est généralement inclus comme

électrolyte support avec ce couple redox. Toutefois, puisque l'utilisation de la réaction (2.54) est beaucoup moins fréquente que la réduction du ferricyanure, on considérera pour la suite que le couple $[Fe(CN)_6]^{3-}$ – $[Fe(CN)_6]^{4-}$ est utilisé.

2.6.3 Vérification de l'atteinte d'un courant limite

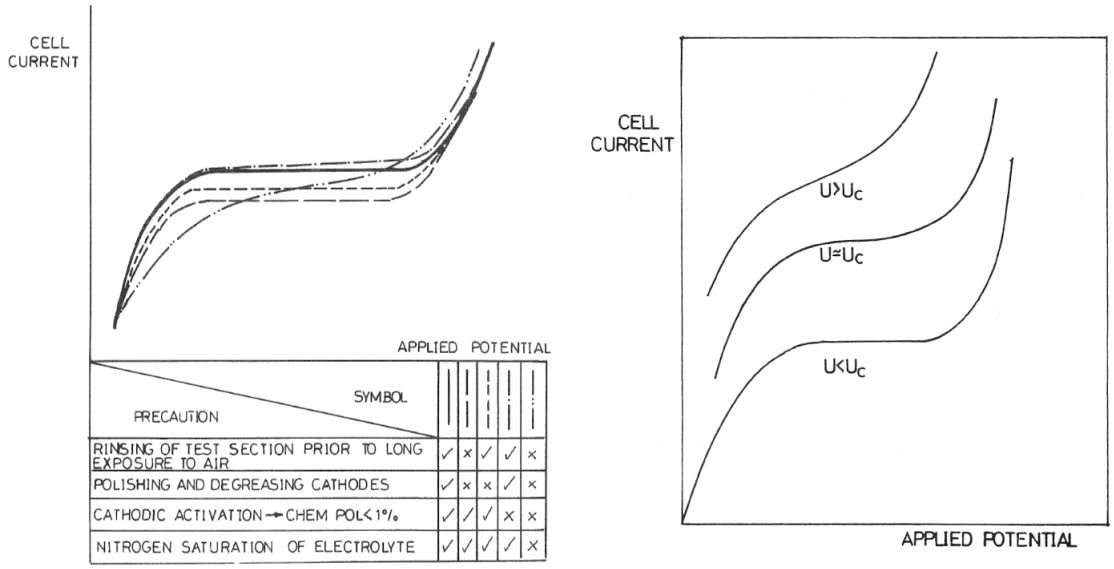
La méthode ED s'appuie sur le fait que la réduction des espèces à la sonde est totale, de sorte que la concentration à l'interface électrode–fluide ($c_{y=0} = 0$) est supposée nulle. Cet effet est observé lorsque la condition de courant limite est atteinte (cf. section 2.2.1), impliquant une vitesse de réaction maximale. Cette condition peut être vérifiée à l'aide d'une expérience de *voltampérométrie à balayage linéaire*, où le courant traversant la sonde est mesuré en augmentant progressivement la tension imposée. Un plateau devrait être observé dans un graphique $I = \mathrm{fct}(E)$, indiquant l'atteinte d'un courant limite pour la réaction étudiée. Cette étape nous informe d'abord sur la tension à utiliser lors des mesures, normalement choisie dans la première moitié du plateau afin de s'éloigner de possibles réactions parasites, notamment une réaction avec l'oxygène dissout dans le mélange (cf. section 2.6.9). De plus, un plateau déformé est indicateur de phénomènes limitant ou modifiant la réaction tels que la présence de courants parasites ou l'empoisonnement de l'électrode, lesquels seront examinés en section 2.6.9. Différentes situations rencontrées lors d'essais de voltampérométrie sont illustrées en Figure 2.11(a). On notera également que la largeur du plateau diminuera avec l'amplitude du cisaillement imposé, si bien qu'à partir d'une certaine valeur limite le plateau pourrait disparaître (Berger et Ziai, 1983) ; dans une telle situation, la réaction électrochimique ne serait pas assez rapide pour réduire complètement les ions parvenant à la sonde et la méthode ne pourrait plus être utilisée. Un tel effet peut être observé en Figure 2.11(b).

2.6.4 Étalonnage en régime stationnaire

Rappelant l'équation (2.15)

$$s = \frac{l}{(knC_0FA)^3D^2}\, I^3, \tag{2.55}$$

le gradient pariétal de vitesse moyen ou quasi-stationnaire est accessible à partir d'une mesure du courant I lorsque les propriétés du système telles que le coefficient de diffusion de l'espèce D, l'aire active de la sonde A et la concentration dans la masse C_0 sont connues. Alors que l'évaluation de ces quantités peut apparaitre élémentaire, plusieurs phénomènes électrochimiques complexifient cette tâche comme il sera discuté en section 2.6.9. La forme de (2.55) permet toutefois de regrouper tous ces paramètres au sein d'une même constante,



(*a*) (*b*)

Figure 2.11 Effets (*a*) de différents pré-traitements et (*b*) d'une variation du débit sur le plateau de courant limite. Images tirées de Berger et Ziai (1983), avec permission de *Elsevier*

soit

$$I = k_{\mathrm{q}} s^{1/3}, \tag{2.56}$$

où $k_{\mathrm{q}} = 0.80755 n F A C_0 l^{-1/3} D^{2/3}$. Cette équation suggère donc que k_{q} pourrait être déterminée au moyen d'un étalonnage approprié, e.g. au sein d'un écoulement canonique en régime stationnaire où le frottement pariétal est connu, et donc sans l'usage des propriétés électrochimiques du système. Une pratique courante est de vérifier que la courbe $I = \mathrm{fct}(s)$ suit une tendance linéaire dans un graphique logarithmique. En effet, (2.55) a été obtenu en négligeant le terme de diffusion axiale dans l'équation de convection–diffusion et n'est donc valable que pour $Pe = \overline{s} l^2/D$ élevé, bien que l'erreur engendrée par cette hypothèse tombe sous les 5 % pour $Pe > 200$ (Hanratty, 1991). Tihon *et al.* (2001) ont utilisé une forme empirique alternative à (2.56),

$$I = \left[I_0^4 + (A s^n)^4 \right]^{1/4}, \tag{2.57}$$

prenant d'une part en considération ces effets à faible Pe et, d'autre part, le fait qu'un exposant $n = 1/3$ ne soit en pratique pas tout à fait exact ; $n = 0.32$ a été obtenu par régression dans leurs travaux. L'ajout d'une constante I_0 considère également la prédominance de la convection naturelle à très faible Pe, puisque un courant nul n'est effectivement pas

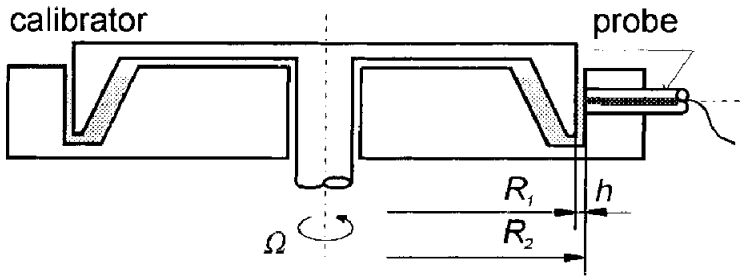


Figure 2.12 Dispositif souvent utilisé pour étalonner une sonde ED. Image tirée de Sobolík *et al.* (1998), avec permission de *Springer*

observé lorsque $s \to 0$ tel que suggéré par (2.55). À l'inverse, I_0^4 devient négligeable devant le second terme pour s élevé et (2.55) est bien retrouvée dans cette situation. Selon l'expérience de l'auteur, la forme (2.57) représente très bien le comportement d'une sonde ED à Pe faible comme il sera exposé au chapitre 6.

Ce type d'étalonnage a fréquemment été réalisé au sein d'un écoulement de Couette entre deux cylindres concentriques, ou encore dans un dispositif similaire au rhéomètre plan (cf. Figure 2.12). Dans tous les cas, il est toujours préférable d'étalonner les sondes *in situ*, minimisant ainsi les manipulations et de possibles erreurs de positionnement. Un étalonnage fréquent des sondes est également recommandé considérant les phénomènes d'adsorption, de perte d'aire active (cf. section 2.6.9) et particulièrement suite à un déplacement de la sonde.

2.6.5 Étalonnage directionnelle

L'utilisation d'une sonde double rectangulaire ou circulaire (section 2.4) nécessite préférablement un étalonnage angulaire pour tenir compte des défauts géométriques de la sonde. Ainsi, en positionnant ce type de sonde dans un écoulement connu, les fonctions $F(\alpha)$ et $G(\alpha)$ des équations (2.20) et (2.21) peuvent être déterminées en faisant varier l'orientation de ces sondes avec un dispositif adéquat.

Ce type d'étalonnage permet aussi de relever les caractéristiques directionnelles d'une sonde tri-segmentée (cf. section 2.4), nécessaires pour évaluer la direction du cisaillement pariétal α. L'expérience consiste à mesurer le courant de chacun des segments en variant graduellement l'orientation de la sonde (ou l'angle d'attaque de l'écoulement) par incrément $\sim 15\,°$. Le résultat d'un tel étalonnage est illustré en Figure 2.13. En représentant chacune des trois courbes de courant normalisé $i_m = I_m/I_{\text{tot}}$, où $m \in \{0, 1, 2\}$ et $I_{\text{tot}} = \sum I_m$, à l'aide d'une série de Fourier, on peut remonter à α en exécutant e.g. une régression des moindres carrées entre une mesure du courant et les caractéristiques directionnelles ainsi obtenues.

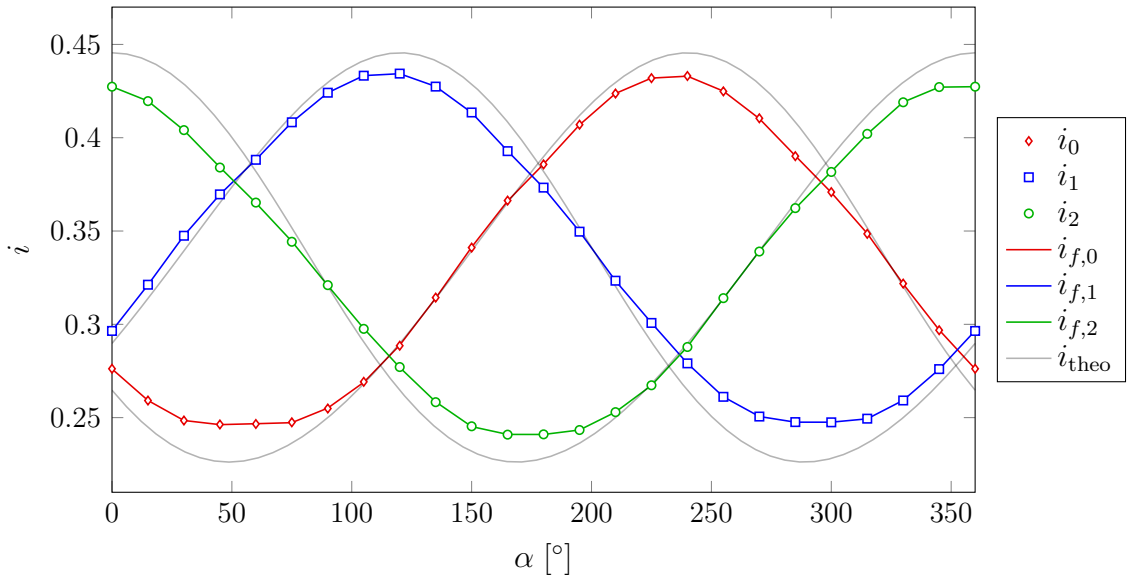


Figure 2.13 Courants normalisés i_m mesurés lors d'un étalonnage directionnelle d'une sonde tri-segmentée (symboles), accompagnés de chacune des représentations par série de Fourier $i_{f,m}$ (courbes). Chaque symbole réfère à un segment différent. Les évolutions théoriques (Wein et Sobolík, 1987) sont également illustrées

2.6.6 Étalonnage dynamique

La réponse transitoire d'une sonde ED soumise à un saut de tension, également connue sous le nom de *chronoampérométrie* ou asymptote de Cottrell et traitée en section 2.5.2, est un autre type d'étalonnage utile lorsque l'on s'intéresse au temps de réponse d'une cellule électrochimique. D'une part, la constante de temps t_0 utilisée dans la méthode de Sobolík (cf. section 2.5.2), peut ainsi être déterminée. À l'instar de (2.56) pour l'étalonnage stationnaire, (2.35) peut se réécrire

$$I_{\text{cot}} = k_{\text{cot}} t^{-1/2}, \tag{2.58}$$

où la constante $k_{\text{cot}} = nFAC_0D^{1/2}\pi^{-1/2}$ peut être déterminée en étudiant la courbe $I = \text{fct}(t^{-1/2})$ au cours des premiers instants suivant le saut de tension. Il est spécialement important de vérifier que la pente d'une telle courbe vaut bien $-1/2$ dans un graphique logarithmique. Dans la négative, cela pourrait nous informer d'un possible empoisonnement de la sonde (cf. section 2.6.9). Cet aspect sera étudié plus en détails en section 6.4.5. On peut ensuite montrer que

$$t_0 = k_{\text{cot}}^2 k_{\text{q}}^{-2} s_{\text{q}}^{-2/3}. \tag{2.59}$$

D'autre part, Sobolík *et al.* (1998) ont également exposé que la constante d'étalonnage stationnaire k_q peut en fait être déduite de k_cot. En utilisant les équations (2.35) et (2.14), on peut effectivement écrire

$$\frac{k_\mathrm{q}}{k_\mathrm{cot}} = k\pi^{1/2}\,\frac{D^{1/6}}{l^{1/3}} \tag{2.60}$$

où $k = 0.80755$. Cette équation suggère que, même en utilisant une estimation plutôt grossière de D, la constante d'étalonnage k_q peut être obtenue avec une précision appréciable connaissant k_cot. La chronoampérométrie peut également être utilisée pour corriger une valeur de k_q préalablement déterminée. Supposant qu'un même couple électrode–électrolyte est utilisé, on peut réécrire (2.60) tel que

$$\frac{k_{\mathrm{q},1}}{k_{\mathrm{q},2}} = \left(\frac{D_1}{D_2}\right)^{1/6}\frac{k_{\mathrm{cot},1}}{k_{\mathrm{cot},2}}, \tag{2.61}$$

où les indices 1 et 2 réfèrent à deux instants différents. Cette approche pourrait permettre, par exemple, de corriger les conséquences d'un changement de température ou d'une altération de l'aire active d'une sonde.

La chronoampérométrie apparait ainsi comme étant une méthode bien intéressante en regard des informations pertinentes qui sont accessibles depuis l'asymptote de Cottrell, mais aussi du fait qu'elle est beaucoup plus rapide à réaliser qu'un étalonnage stationnaire. En pratique, il s'avère toutefois qu'une expérience de chronoampérométrie est plutôt délicate puisqu'elle est très sensible aux phénomènes d'adsorption (cf. section 2.6.9). Le paramètre k_cot peut donc être difficile à déterminer de façon reproductible. De plus, un appareil bien spécialisé tel qu'un potentiostat est indispensable pour effectuer ce type d'expérience, durant laquelle de fortes variations de courant sont mesurées pendant un très court laps de temps.

2.6.7 Diffusivité du ferricyanure

Il est d'avis général dans la littérature que D ne varie que très peu (voire est invariable) avec la concentration des espèces présentes (Arvia *et al.*, 1967; Hanratty et Campbell, 1996). On retrouve malgré tout des écarts importants sur la valeur du coefficient de diffusion du ferricyanure. Par exemple, la valeur mesurée de D à 25 °C peut fluctuer par plus de 30 % selon les auteurs lorsque les mêmes espèces sont utilisées avec des concentrations variables (cf. Tableau 2.1). Certains expliquent ces différences par la viscosité résultante du mélange

Tableau 2.1 Diffusivité du ferricyanure en utilisant le K_2SO_4 comme électrolyte support. COT : Cottrell ; LEV : Lévêque, donc à partir d'un étalonnage stationnaire (cf. 2.6.4) ; RDE : Électrode à disque tournant (cf. section 2.6.8)

Étude	D $10^{-10}\,m^2\,s^{-1}$	λ $10^{-15}\,N\,K^{-1}$	T °C	$[K_2SO_4]$ mM	[Ferri] mM	[Ferro] mM	Méthode
Tihon *et al.* (2003)	8.15	2.78	20	50	25	25	COT–LEV
Tihon *et al.* (2014)	7.4	2.57	21	60	25	25	LEV
Huchet *et al.* (2008)	5.83	2.07	22	600	5	25	RDE
Wein *et al.* (2006)	6.81	2.30	22	230	25	25	COT
Legrand *et al.* (2000)	7.47	-	25	500	5	5	RDE
Dib *et al.* (2008)	8.35	2.67	25	300	25	25	RDE
Zidouh *et al.* (2009)	7.45	2.62	25	-	10	10	-
Rehimi et Aloui (2011)	6.62	-	25	190	10	20	RDE
Angell et Dickinson (1972)	8.9	-	25	500	3.9	8.6	RDE
Gaucher *et al.* (2002)	8.36	2.29	30	100	2–4	50	RDE

Tableau 2.2 Diffusivité du ferricyanure pour différents électrolytes supports. VOL : Voltampérométrie cyclique (cf. section 2.6.8)

Étude	D $10^{-10}\,m^2\,s^{-1}$	λ $10^{-15}\,N\,K^{-1}$	T °C	Élec. sup.	[Ferri] mM	[Ferro] mM	Méthode
Arvia *et al.* (1967)	-	2.78	-	KOH	5–50	5–50	RDE
Arvia *et al.* (1967)	-	2.52	-	NaOH	-	-	RDE
Arvia *et al.* (1967)	-	2.00	-	KCl	-	-	RDE
Baur et Wightman (1991)	7.17	-	25	KCl	1	-	VOL
Bard et Faulkner (2001)	7.6	-	25	KCl	-	-	COT
Eroğlu *et al.* (2011)	7.28	2.78	25	K_2CO_3	5	20	RDE
Griffiths *et al.* (2005)	6.4	2.22	29	Na_2CO_3	1	10	-
Szánto *et al.* (2008)	6.05	-	25	KOH	1	10	RDE
Blel *et al.* (2009)	3.65	1.22	22	NaOH	3	50	RDE
Saraç *et al.* (1993)	7.1	2.29	25	NaOH	1	20	RDE
Hanratty et Campbell (1996)	-	2.50	-	NaOH	0.4 à 300	-	-

utilisé. En effet, la diffusivité d'une espèce suit généralement la relation

$$D \propto T/\mu, \tag{2.62}$$

soit une extension de l'équation d'Einstein–Stokes pour l'auto-diffusion D d'une espèce (Evanoff et Harris, 1978)

$$D = \frac{k_B}{2\pi}\left(\frac{N}{V}\right)^{1/3}\frac{T}{\mu}, \tag{2.63}$$

avec k_B, N et V la constante de Boltzmann, le nombre d'Avogadro et le volume molaire, respectivement. Lorsque l'on tient compte de la viscosité en comparant le paramètre $\lambda = D\mu/T$, l'écart tombe sous les 20 % lorsque le K_2SO_4 est utilisé comme électrolyte support (Tableau 2.1) dans la majorité des cas. La relation obtenue par Hanratty et Campbell (1996),

$$D = 2.5 \times 10^{-15}\frac{T}{\mu}, \tag{2.64}$$

rassemble les travaux de nombreuses études et est valable pour des concentrations en $[Fe(CN)_6]^{3-}$ de 0.38 mM à 300 mM, en utilisant le NaOH comme électrolyte support (500 mM à 2100 mM). Dans leur étude, Arvia *et al.* (1967) tombent essentiellement sur cette même relation. Les tableaux 2.1 et 2.2 rassemblent les données d'une vingtaine d'études utilisant tous le couple redox ferri–ferrocyanure (à concentration variable) et utilisant différents électrolytes supports. En moyennant tous ces coefficients, on tombe également très près de cette même relation, soit

$$\lambda_{\text{moyen}} = 2.46 \times 10^{-15} \tag{2.65}$$

avec un écart moyen de 0.23 et un écart type de 0.26 [9]. Ainsi, il apparait plausible d'étendre la relation (2.64) pour des électrolytes supports de *différentes* natures, lorsque seule une valeur approchée du coefficient de diffusion est recherchée.

Effet d'un fluide visqueux

Eroğlu *et al.* (2011) ont vérifié la relation (2.62) pour des fluides plus visqueux. En variant la viscosité d'une solution de ferri–ferrocyanure avec l'ajout de glycérine jusqu'à 50 % massique

9. Sans tenir compte de la valeur étrangement éloignée obtenue par Blel *et al.* (2009)

par incrément de 10 %, la relation suivante a été obtenue :

$$\lambda_{\text{moyen}} = (2.70 \pm 0.54) \times 10^{-15}, \tag{2.66}$$

en utilisant le K_2CO_3 comme électrolyte support pour des températures entre 15 et 25 °C ; dans l'ensemble, la viscosité du mélange respectait $\mu < 0.01\,\text{Pa s}$. L'importance de l'erreur n'est toutefois pas expliquée dans l'étude et une dispersion plutôt aléatoire des résultats est observée (écart type de 0.30). Pour une concentration en glycérine ≤ 30 %, la dispersion est moindre et l'erreur baisse de moitié.

Wein *et al.* (2006) ont étudié la diffusivité du même mélange, pour des concentrations en glycérine allant de 0 à 60 % avec du K_2SO_4 comme électrolyte support. Leur résultats montrent que la relation (2.62) est très bien respectée jusqu'à une viscosité de $0.015\,\text{Pa s}$, avec une valeur moyenne

$$\lambda_{\text{moyen}} = (2.35 \pm 0.09) \times 10^{-15}\ \text{N/K}. \tag{2.67}$$

Cette excellente précision semble s'expliquer par le nombre important d'expériences effectuées (~ 400), ce qui est possible étant donné la rapidité de la méthode utilisée (chronoampérométrie). Avec des mélanges à 0 %, 30 % et 50 % en glycérine, Tihon *et al.* (2003) ont obtenu des résultats du même ordre de grandeur, soit $\lambda_{\text{moyen}} = (2.61 \pm 0.29) \times 10^{-15}$ N/K.

Tihon *et al.* ont également étudié la diffusivité du ferricyanure utilisant le Emkarox HV45 au lieu de la glycérine, additif beaucoup plus visqueux. Pour un mélange à viscosité similaire, le rapport λ était 3 à 4 fois plus élevé qu'avec la glycérine. Avec un mélange deux fois plus visqueux, le rapport devient ~ 10 fois plus élevé. Legrand *et al.* (2000) ont observé la même tendance pour des mélanges à viscosité élevée ($\mu > 0.04\,\text{Pa s}$) utilisant le Emkarox ; une valeur $\lambda = 202 \times 10^{-15}$ N/K a même été obtenue avec un mélange à 80 % massique en Emkarox ($\mu = 1.18\,\text{Pa s}$). Selon Legrand *et al.*, on observerait plutôt

$$D \propto \mu^{-0.5}$$

à température constante lorsque la viscosité est élevée (au lieu de $D \propto \mu^{-1}$). Aoki *et al.* (2009) tombent essentiellement sur la même relation pour $\mu > 0.316\,\text{Pa s}$ en utilisant du polyéthylène glycol (PEG) comme additif visqueux. Roffel et Van de Graaf (1977) ont également montré qu'à partir d'une certaine concentration de PEG ajouté au mélange, le ratio λ ne peut plus être considéré comme constant et varie en plus avec la température.

À la lumière de ces résultats, il semblerait donc juste d'affirmer que la relation (2.62) peut

être utilisée pour évaluer le coefficient de diffusion du ferricyanure sans trop d'erreur ($< 20\,\%$) lorsque $\mu \lesssim 0.01\,\mathrm{Pa\,s}$. À des viscosités plus élevées, son utilisation est mitigée. Il en demeure qu'une mesure directe de D est toujours préférable (cf. section 2.6.8).

2.6.8 Mesure des propriétés de la cellule électrochimique

Considérant la situation où les constantes d'étalonnage k_q et k_cot ne seraient pas accessibles, les paramètres C_0, D, A et l (bien que ce dernier puisse normalement être déduit de A) sont requis pour l'évaluation de e.g. s_q et s_sob.

Évaluation de la concentration dans la masse

Alors que C_0 devrait normalement être connu par un utilisateur ayant préparé le mélange, une solution de ferricyanure–ferrocyanure se dégrade progressivement lorsque exposée à la lumière durant les jours suivants sa préparation (cf. section 2.6.9). Des variations de concentration $\sim 10\,\%$ ont été notées dans certains cas (Szánto *et al.*, 2008). La spectrophotométrie, technique reliant l'absorbance d'un liquide à sa concentration, permet de mesurer C_0 d'une telle solution puisque la teinte jaunâtre de ce mélange s'intensifie avec sa concentration en ferricyanure ; la spectrophotométrie a d'ailleurs souvent été utilisée avec ce mélange (Cognet, 1971; Szánto *et al.*, 2008).

Mesure du coefficient de diffusion

Évoquant les propos discutés en section 2.6.7, il apparait difficile d'obtenir une valeur de D précisément en accord avec la littérature. Certaines hypothèses peuvent expliquer ces écarts. D'une part, la mesure de D d'un mélange donne en fait accès à sa *diffusivité effective*, tenant compte d'effets comme la migration des ions (parfois non négligeable) ainsi que de la variation des propriétés du mélange qui surviendraient au sein même de la couche de diffusion, effets normalement négligés dans la théorie où les propriétés sont considérées constantes (Selman et Tobias, 1978). D'autre part, dans la plupart des méthodes disponibles pour évaluer D, on recherche une constante d'étalonnage qui renferme, en plus de D, la concentration de l'espèce C_0 et l'aire de la sonde A. Alors que C_0 peut être connue avec précision, une valeur juste pour l'aire active A est plus difficile à obtenir considérant que les variables D et A sont généralement couplées dans les équations. L'erreur d'évaluation d'une des variables se propage donc sur l'autre. Cela pourrait expliquer en partie les écarts observés sur la valeur *exacte* du paramètre D.

Il existe plusieurs façons de mesurer la diffusivité d'un mélange ; trois méthodes parmi celles

les plus rencontrées seront brièvement présentées ci-bas. Une approche soignée est de mise pour obtenir des résultats reproductibles, considérant les effets d'empoisonnement de sonde (cf. section 2.6.9), particulièrement importants lors de telles expériences. Il est donc essentiel de bien traiter les électrodes (polissage, nettoyage) avant *chaque* mesure. L'aire de l'électrode de travail devrait également être connue avec précision. Enfin, une solution fraîchement préparée devrait être utilisée. Si toutes ces recommandations sont respectées avec soin, une reproductibilité de l'ordre de 5% sur les résultats peut être attendue (Legrand *et al.*, 2000), et les chances sont que la diffusivité tombera très près de l'équation (2.64). Bien que cette mesure soit recommandée lorsqu'elle est accessible, l'apport en précision sur la valeur de D (comparativement aux valeurs tabulées) demeure discutable.

Électrode à disque tournant

Une électrode circulaire est positionnée de façon concentrique au bout d'un arbre rotatif vertical et est ensuite plongée dans un électrolyte. Le fluide soumis à la rotation du dispositif sera attiré vers l'électrode dans un mouvement tourbillonnaire pour ensuite être éjecté par ses extrémités. Le champ de vitesse de cet écoulement tridimensionnel, également connu sous le nom de « pompe de von Kármán », peut être obtenu en résolvant analytiquement ou numériquement les équations de Navier–Stokes (Bard et Faulkner, 2001; White et Corfield, 2006). Très près de l'électrode, le profil de vitesse linéarisé devient :

$$\begin{aligned} u_r &= 0.51\omega^{3/2}\nu^{-1/2}ry, \\ u_y &= -0.51\omega^{3/2}\nu^{-1/2}y^2, \\ u_\phi &= \omega r, \end{aligned} \tag{2.68}$$

avec ω la vitesse de rotation de l'électrode. En ne supposant aucune variation de concentration en ϕ ni en r (puisque $c_{y=0} = 0$ et $\partial u_y/\partial r = 0$), l'équation de convection–diffusion en coordonnées cylindriques peut être résolue en utilisant (2.68), menant au profil de concentration au dessus de l'électrode de même qu'au courant la traversant. L'équation de *Levich*, reliant le courant I à la vitesse de rotation ω de l'électrode, est ainsi obtenue :

$$I = k_{\text{lev}}\omega^{1/2}, \tag{2.69}$$

avec $k_{\text{lev}} = 0.62nFAC_0D^{2/3}\nu^{-1/6}$. Ainsi, la pente d'une droite $I = \text{fct}(\omega^{1/2})$ dans un graphique logarithmique permet d'obtenir D, connaissant A, C_0 et ν.

Voltampérométrie cyclique

Cette technique est une extension de la voltampérométrie présentée en section 2.6.3. Ici, le

balayage en tension est effectué en boucles « aller–retour » dans la solution stagnante, par exemple de 0 mV à −500 mV, puis de −500 mV à 0 mV, en effectuant le nombre de boucles voulu. Selon la vitesse de balayage v_{bal} utilisée, on verra apparaître un courant maximum I_p d'amplitude variable. La relation de *Randles–Sevcik* relie ainsi le courant maximum I_p à v_{bal} par

$$I_p = k_{\text{rs}} v_{\text{bal}}^{1/2}, \tag{2.70}$$

où $k_{\text{rs}} = 0.4463AC_0\sqrt{\dfrac{n^3F^3D}{RT}}$ et R est la constante des gaz parfaits.

Chronoampérométrie
L'expérience consiste à étudier l'évolution de la couche de diffusion suite à un saut de tension, où le courant I traversant une électrode devrait suivre l'asymptote de Cottrell (cf. sections 2.5.2 et 2.6.6). La constante d'étalonnage obtenue lors d'une telle expérience permet de calculer D, soit

$$D = \pi \left(\frac{k_{\text{cot}}}{nFAC_0} \right)^2. \tag{2.71}$$

Cette méthode est intéressante étant très rapide comparativement aux deux autres (~ 1 s).

On notera enfin que, dans l'une ou l'autre des méthodes, l'erreur sur l'évaluation de A, C_0 ou encore sur le paramètre de calibration même est très coûteuse, puisque $D = \text{fct}(k_i^2, C_0^2, A^2)$ (sauf pour RDE, où l'exposant vaut 3/2).

Évaluation de l'aire active d'une sonde

La surface ou l'aire d'une électrode peut en général être caractérisée de deux façons. D'une part, l'*aire géométrique* A_g correspond à la surface projetée de l'électrode en contact avec le fluide, qui concorderait ainsi avec l'aire d'une sonde parfaitement lisse. D'autre part, l'*aire microscopique* A_m est étroitement reliée à la rugosité de surface et tient compte des imperfections de l'électrode ; une représentation de A_g et A_m est illustrée en Figure 2.14. Le facteur de rugosité ϵ est défini comme le rapport entre ces deux aires, soit $\epsilon = A_m/A_g$. Bien qu'un rapport $\epsilon \sim 2 - 3$ soit caractéristique d'électrodes régulièrement polies (Bard et Faulkner, 2001, p.167), l'aire géométrique A_g devrait toujours être utilisée en méthode ED, car la taille de la couche de diffusion δ_c est à l'ordinaire plusieurs ordres de grandeur supérieure à la rugosité de surface ; à l'échelle de δ_c, la surface de l'électrode est donc lisse. Même en chronoampérométrie, c'est l'aire géométrique qui sera retrouvée dans la constante k_{cot} considérant

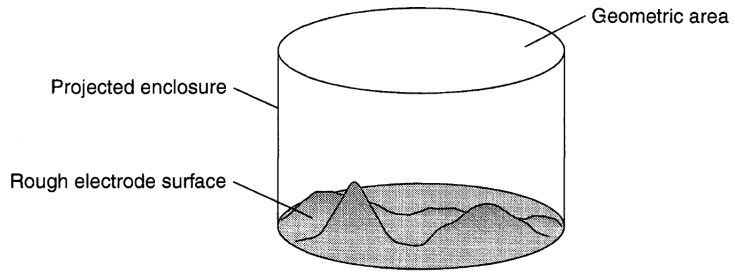


Figure 2.14 Comparaison des aires microscopique A_m et géométrique A_g d'une électrode. Image tirée de Bard et Faulkner (2001, p.167), avec permission de *John Wiley and Sons*

la taille des électrodes normalement utilisées ($l \sim 0.1$–$0.5\,\mathrm{mm}$) ; plus de détails sont donnés en section 6.4.5. On considérera ainsi pour la suite que $A = A_g$.

Alors que A peut être évaluée relativement facilement à l'aide d'un microscope, la surface *active* d'une sonde, correspondant à la portion de A participant réellement à la réaction, est plus difficile à mesurer. Des espèces parasites peuvent effectivement se fixer sur la sonde par adsorption (cf. section 2.6.9), diminuant ainsi son activité catalytique, occasionnant un courant plus faible que si toute la surface était active et pouvant dégrader la qualité du plateau de courant limite (Selman et Tobias, 1978). Selon Bard et Faulkner (2001), l'aire active d'une sonde semblerait toutefois tendre vers A_g lors d'une électrolyse prolongée (e.g. en régime stationnaire) dû à l'épaississement de la couche de diffusion, couvrant ainsi les zones inactives comme illustré en Figure 2.15.

Bien que la perte d'aire active peut avoir des conséquences en régime dynamique et dans les premiers instants suivant un saut de tension, l'erreur engendrée par l'utilisation de A_g dans les équations de post-traitement dynamique de la méthode ED devrait demeurer mince considérant l'utilisation d'une sonde adéquatement polie et nettoyée. Les principales techniques disponibles pour évaluer la surface active sont les mêmes que celles présentées précédemment pour mesurer D et sont donc plutôt délicates ; la précision sur la valeur de A obtenue avec l'une de ces méthodes dépendra directement de celle sur D puisque les deux paramètres sont généralement couplés dans les équations, comme il a été exposé en section précédente.

2.6.9 Phénomènes limitant et altérant la réaction à la sonde

Au cours d'une réaction d'électrolyse, des phénomènes d'*adsorption* sont constamment observés, où des composés (et/ou impuretés) contenus dans la solution adsorbent sur la surface de l'électrode. Dans certains cas, on parlera d'un *empoisonnement* de la sonde. Parfois, le

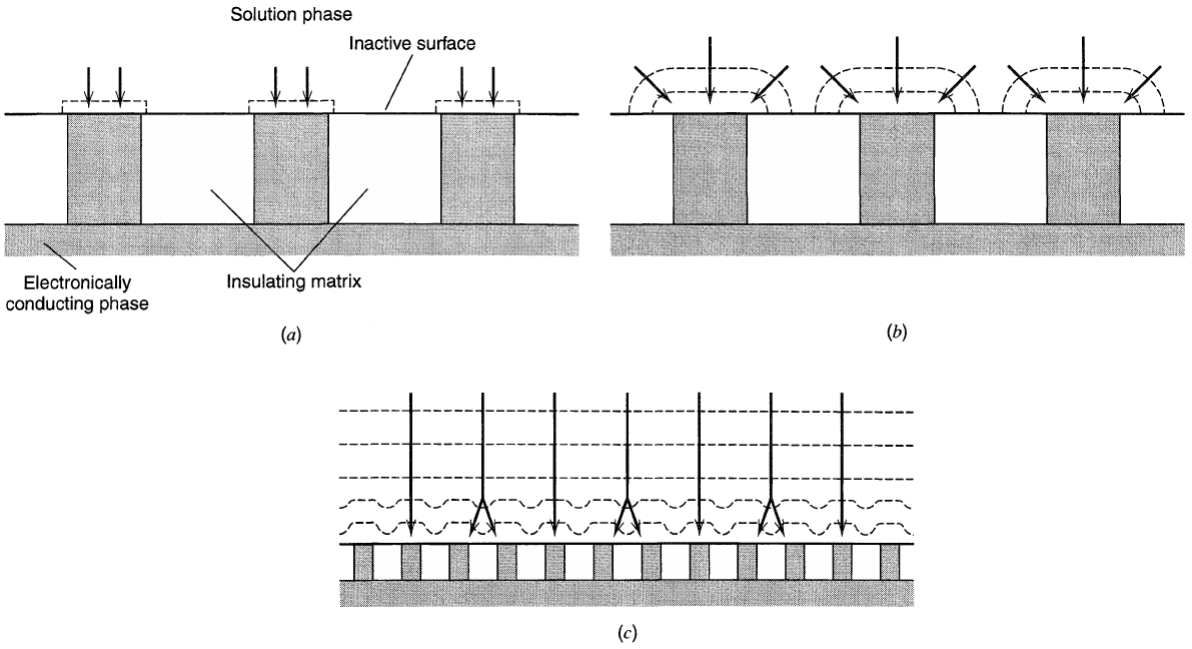


Figure 2.15 Développement d'une couche de diffusion au dessus d'une sonde comportant des secteurs inactifs suite à un saut de tension, pour différents instants. Image tirée de Bard et Faulkner (2001, p.169), avec permission de *John Wiley and Sons*

film ainsi formé vient limiter la réaction en réduisant l'aire active de la sonde ; le courant mesuré pour une même tension est donc réduit. Ce phénomène semble commun en présence de ferricyanure, bien qu'une électrode de platine devrait être moins affectée par cet empoisonnement (Selman et Tobias, 1978). À l'opposé, la présence de ce film peut tout aussi intensifier le courant où, dans un tel cas, la réaction se produit en plus au niveau même du film, modifiant ainsi la réaction globale à l'électrode (Bard et Faulkner, 2001). Alors que ces effets d'adsorption sont généralement minimes pour une solution aqueuse propre, la couche ainsi formée peut s'élargir lors d'électrolyses prolongées et avoir un impact plus notable. Les phénomènes d'empoisonnement sont particulièrement apparents lors d'une expérience de chronoampérométrie.

Plusieurs composés peuvent adsorber sur l'électrode, notamment des impuretés présentes dans le fluide, l'oxygène dissout et même l'électrolyte support. L'exposition de la solution à la lumière entraîne également une faible hydrolyse du ferrocyanure et, dans une moindre mesure, du ferricyanure (Selman et Tobias, 1978; Berger et Ziai, 1983). En plus de réduire la concentration des espèces, cette réaction entraîne également la formation d'ions CN^- :

$$[Fe(CN)_6]^{4-} + H_2O \underset{\text{Obscurité}}{\overset{\text{Lumière}}{\rightleftharpoons}} [Fe(CN)_5]^{3-} + CN^- + H_2O.$$

À son tour, le cyanure ainsi formé réagit avec l'eau pour générer du cyanure d'hydrogène,

$$CN^- + H_2O \rightleftharpoons HCN + OH^-,$$

molécule qui serait spécialement responsable du phénomène d'empoisonnement (Eisenberg *et al.*, 1954). Une électrode de platine (comparativement au nickel ou à l'acier inoxydable) serait moins affectée par cet empoisonnement.

L'électrolyte support ajouté pour contrer les effets de migration peut également adsorber sur l'électrode. Taama *et al.* (1996) ont montré que la nature de l'électrolyte et du matériau utilisé pour l'électrode affectent la rapidité de cet adsorption. Les auteurs ont observé que le platine serait moins affecté que le nickel et l'acier inoxydable et que le KOH est fortement plus favorable à adsorber que le K_2CO_3. Szánto *et al.* (2008) ont étudié l'évolution du courant limite lors d'électrolyses prolongées pour quatre différents électrolytes supports avec une électrode de nickel. Leurs résultats montrent également qu'en utilisant le KOH (de même que le K_2SO_4), les effets d'adsorption sont bien plus rapides et prononcés qu'avec les sels K_2CO_3 et KNO_3. La concentration du couple oxydoréducteur utilisé par Szánto *et al.* étant plutôt faible (0.001 M), ces résultats seraient à revérifier avec une solution plus couramment utilisée avec la méthode ED.

Un simple contact avec l'air ambiant entraine l'infiltration d'oxygène au sein de la solution. Puisque la tension de réduction de l'oxygène est très près de celle du ferricyanure [10], un courant parasite peut ainsi s'ajouter aux mesures et biaiser les résultats. De plus, l'oxygène dissout dans la solution peut s'adsorber sur l'électrode pour former un film d'oxyde, affectant doublement la mesure du transfert de masse. D'une part, cette réaction additionnelle contribue au courant total mesuré en régime stationnaire. D'autre part, la couche d'oxyde ainsi formée sur l'électrode contribue à ralentir la réaction lors de, par exemple, une expérience de chronoampérométrie, dû au temps de recharge ou à l'inertie même de cette couche, ajoutée à celle de la couche de diffusion. Un barbotage d'azote permet de réduire la quantité d'oxygène dissout et donc les effets d'adsorption sur l'électrode.

Comme discuté plus haut, une dégradation du ferricyanure se produit lors de son exposition à la lumière, résultant ainsi en une diminution de la concentration des espèces dans la masse C_0. Il est donc recommandé de conserver la solution dans un contenant opaque. L'utilisation d'une solution fraîchement préparée est recommandée lors d'une campagne de mesures. Il semblerait que la concentration d'une telle solution, même conservée dans le noir, pourrait varier déjà quelques jours suite à sa préparation (Selman et Tobias, 1978; Szánto *et al.*,

10. L'oxygène dissout a même déjà été utilisé comme dépolarisant cathodique (Pauli *et al.*, 1991).

2008). De plus, un mélange aqueux de ferri–ferrocyanure est un milieu corrosif. Même si la concentration des espèces est relativement faible, la solution peut réagir avec les matériaux du banc de mesure, venant ainsi altérer sa composition ; il est donc important d'utiliser des matériaux inertes (préférablement le verre, sinon PVC ou PMMA).

Considérant l'ensemble de ces phénomènes parasites, la méthode ED apparait comme étant plutôt délicate et complexe à mettre en œuvre. Toutefois, plusieurs de ces effets peuvent être considérés à l'intérieur de l'étalonnage stationnaire (cf. section 2.6.4), notamment la variation C_0 et de l'aire active, de même que certaines conséquences des processus d'adsorption et d'empoisonnement.

CHAPITRE 3 MÉTHODOLOGIE ET STRUCTURE DES RÉSULTATS

La problématique présentée en introduction (chapitre 1) a exposé la difficulté qu'ont les méthodes de mesure du frottement pariétal à estimer les deux composantes du cisaillement (i.e. son amplitude et sa direction) dans un écoulement instationnaire à forte amplitude. Ce même défaut concerne également les sondes ED puisqu'aucun post-traitement ne permet de corriger les effets d'inertie de la couche de diffusion pour une sonde tri-segmentée, type de sonde ayant le meilleur potentiel pour donner accès aux deux composantes du gradient pariétal de vitesse instantané. Pour ce faire, une adaptation du problème inverse de convection–diffusion a été envisagée dans le cadre de cette thèse.

3.1 Résumé des travaux

Alors qu'à la base le projet se veut de nature expérimentale considérant qu'une méthode de mesure cherche à être développée, une importante partie des travaux repose également sur des aspects numériques et analytiques, notamment sur la méthode des éléments finis et sur l'analyse et le développement d'algorithmes de minimisation, lesquels sont au cœur des problèmes inverses. Ainsi, l'approche sélectionnée a d'abord consisté à concevoir, développer et tester différents algorithmes adaptés au post-traitement du signal de sondes tri-segmentées. Alors que beaucoup de temps fut consacré à cette étape, les différentes solutions envisagées et testées ne seront pas présentées dans ce document ; seul l'algorithme final sera considéré, soit celui offrant les meilleures propriétés de convergence et démontrant un potentiel supérieur. La validation numérique du problème inverse a ensuite été effectuée en simulant des mesures de sondes réelles au travers du *problème direct* (i.e. en résolvant l'équation de CD) pour diverses variations temporelles de S et α, les deux composantes du gradient pariétal de vitesse.

Puis, la méthode a été utilisée pour traiter le signal de sondes réelles dans un banc de mesure modulaire. Ce dispositif, conçu spécialement pour la méthode électrodiffusionnelle, permet d'étudier la réponse des sondes à des sollicitations harmoniques dont la fréquence et l'amplitude sont contrôlées. Une mesure de référence du gradient pariétal instantané y est également accessible grâce à une méthode de mesure complémentaire, l'anémométrie Doppler à laser (LDA). Il est en effet indispensable d'obtenir des valeurs de référence fiables auxquelles seront confrontées les résultats obtenus pour ainsi valider l'approche proposée ; par ailleurs, les mesures LDA permettent également d'étalonner les sondes.

Alors que ce banc d'essai permet de générer un écoulement laminaire présentant un chan-

gement de sens périodique du cisaillement, une variation temporelle de sa direction n'avait pas été envisagée au moment de la conception en raison des complexités additionnelles impliquées. Pour palier à ce manque, un second banc de mesure a été élaboré, plus simple bien que moins complet. Les expériences supplémentaires effectuées ont tout de même permis de compléter la validation de la méthode inverse bidimensionnelle proposée.

3.2 Structure des résultats

Les principaux travaux et résultats du présent projet sont synthétisés dans trois articles ; toutefois, certains résultats préliminaires et complémentaires sont d'abord présentés au chapitre suivant. En particulier, l'approche choisie pour le calcul des sensibilités dans le problème inverse de même que des détails sur les méthodes numériques employées s'y retrouvent. Ce chapitre analyse aussi la stabilité du problème inverse unidimensionnel (i.e. où seulement l'amplitude du gradient pariétal de vitesse est concernée) et sert de transition vers la méthode bidimensionnelle, présentée et analysée dans les chapitres 5, 7 et 8 au travers d'articles publiés ou soumis pour révision. Le chapitre 6, où sont détaillées l'approche expérimentale ainsi que la mise en œuvre de la méthode ED, sert notamment de pont entre les deux premiers articles. Des résultats additionnels viennent aussi compléter l'étude de la réponse en fréquence et l'utilisation des sondes ED.

Dans le premier article, intitulé *On the inverse problem for two-component unsteady wall shear rate measurements : Application to the electrodiffusion method* et soumis au journal *International Journal of Thermal Sciences* (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017), la méthode inverse bidimensionnelle est présentée, laquelle permet de retrouver l'angle du gradient pariétal de vitesse en plus de son amplitude dans un écoulement instationnaire. L'approche est ensuite validée de façon numérique dans des écoulements instationnaires à forte amplitude et de complexité grandissante, incluant le cas d'un écoulement turbulent.

Le second article présente les premiers résultats de la validation expérimentale de l'approche proposée, où une sonde tri-segmentée réelle est exposée à de fortes fluctuations du frottement pariétal (incluant des changements de sens) au sein d'un écoulement de Poiseuille dans une conduite rectangulaire ; un adimensionnement spécifique aux sondes tri-segmentées, permettant de relier la géométrie réelle et les imperfections d'une sonde au modèle numérique, y est également proposé. Ces travaux apparaissent dans la publication intitulée *Two-component instantaneous wall shear rate measurements in reversing flows*, soumis au journal *Experiments in Fluids* (Lamarche-Gagnon *et al.*, 2017b).

Puisque la génération d'un écoulement présentant une variation de la direction du frottement

pariétal est difficile à reproduire de façon contrôlée dans un canal rectangulaire, un second montage a été conçu et utilisé pour compléter la validation de la méthode inverse. Le dernier article, également soumis au journal *Experiments in Fluids* et portant le titre *Diagnostic of the fluctuating wall shear rate components using an uncalibrated three-segment electrodiffusion sensor* (Lamarche-Gagnon *et al.*, 2017a), présente ainsi cette étape finale de validation, où l'écoulement d'un fluide visqueux près d'un cylindre en rotation et en translation est étudié. La viscosité très élevée ($\mu = 0.330\,\mathrm{Pa\,s}$) du mélange eau–glycérine utilisé permet, d'une part, d'épaissir la couche cisaillée autour du cylindre, réduisant les gradients de vitesse et la variation spatiale du gradient pariétal de vitesse dans les environs de la sonde. D'autre part, une hausse de la viscosité s'accompagne généralement d'un affaiblissement de la diffusivité du mélange tel que stipulé par la relation d'Einstein–Stokes (cf. section 2.6.7), augmentant ainsi l'inertie de la couche de diffusion. Bien qu'une telle situation réduit l'efficacité des sondes, elle offre des conditions ED plus intenses (i.e. Sr plus élevé) à des fréquences moins élevées et, par conséquent, offre la possibilité de tester la méthode inverse dans des conditions plus difficiles.

Enfin, un parallèle entre les méthodes inverses unidimensionnelle et bidimensionnelle est établi en chapitre 9, où une discussion générale est présentée.

CHAPITRE 4 APPROCHE NUMÉRIQUE ET RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES

Une majeure partie du travail de thèse a été consacrée à la mise au point et au développement d'un problème inverse multidimensionnel pour corriger les effets inertiels affectant le signal d'une sonde tri-segmentée et ainsi prédire les deux composantes du cisaillement instantané. Pour simuler le transfert de masse à la sonde, essentiellement représenté par l'équation de convection–diffusion (CD), la méthode des éléments finis a été utilisée. Alors que la méthode des volumes finis a plus couramment été employée dans les travaux sur la méthode électrodiffusionnelle (Maquinghen, 1999; Mao et Hanratty, 1991a; Rehimi *et al.*, 2006), les éléments finis ont été choisis considérant les ressources disponibles au Laboratoire de dynamique des fluides (LADYF) de l'École Polytechnique de Montréal. Les outils et méthodes numériques utilisés pour mettre en œuvre le problème seront détaillés dans les sections suivantes. Seul le problème inverse unidimensionnel (i.e. lorsque seulement le module du cisaillement est recherché, donc impliquant l'équation de CD 2D) sera à l'étude dans ce chapitre, d'abord afin d'introduire l'approche utilisée pour l'évaluation de la sensibilité $\partial Sh^*/\partial S$ (cf. section 2.5.3), mais aussi pour exposer plus aisément le caractère instable d'un problème inverse.

4.1 Choix des outils numériques

Le solveur libre `FreeFem++` (Hecht, 2012) a été utilisé pour résoudre les équations de CD et des sensibilités, générer les maillages de même que pour intégrer tout l'algorithme du problème inverse. `FreeFem++` est un regroupement de librairies écrites en `c++` servant avant tout à résoudre un système d'équations différentielles non-linéaires en deux et trois dimensions à l'aide de la méthode des éléments finis. Ce solveur est développé par le laboratoire Jacques-Louis Lions de l'Université Pierre et Marie Curie, à Paris. `FreeFem++` est doté de son propre langage adapté à la résolution de systèmes d'équations, lequel s'apparent fortement au `c++`. Une force de cet outil est la facilité d'apprentissage pour un utilisateur nouveau, malgré l'absence d'interface graphique : les formes faibles des équations aux dérivées partielles sont en fait directement transcrites (presque littéralement) dans son éditeur de texte préféré. `FreeFem++` permet également de générer des maillages en deux et trois dimensions avec des éléments isotropes et anisotropes, notamment en se servant de métriques associées à un certain champ scalaire. Cet aspect est l'une des principales raisons du choix de ce code, considérant que les conditions limites associées au problème à résoudre (cf. Figure 2.9) engendrent une discontinuité aux bords d'attaque et de fuite de la sonde, bornés de part et d'autre par

des conditions de Dirichlet et de Neumann. Une telle discontinuité fait en sorte que des éléments de très petite taille doivent être utilisés en ces endroits pour, d'une part, stabiliser le problème et, d'autre part, obtenir une convergence en maillage adéquate concernant le flux de concentration $\partial C/\partial Y$ à la sonde, quantité numérique caractérisant la réaction de transfert de masse. La taille des éléments au bord d'attaque est effectivement cruciale puisque de forts gradients de concentration s'y produisent. De plus, l'équation de CD est sujette à des instabilités à haut nombre de Péclet. Alors que des techniques de stabilisation existe pour palier à ce problème (e.g. SUPG), ces dernières ajoutent des contributions diffusives. Un tel ajout est ici indésirable puisque la réaction à la sonde, au cœur du problème, pourrait être altérée.

Grâce à `FreeFem++`, un maillage bien adéquat au problème a toutefois pu être généré sans l'utilisation de tels schémas, formé d'éléments anisotropes étirés suivant la métrique associée au champ de concentration du problème stationnaire, offrant à la fois précision dans l'évaluation du transfert de masse et diminution drastique du nombre d'éléments requis. Un tel maillage est illustré en Figure 4.1 pour le cas 2D, conjointement avec un des champs de concentration requis pour le calcul de la métrique. En fait, pour tenir compte des changement de sens de l'écoulement ($S < 0$), le maillage a été construit en considérant deux champs de concentration, soit ceux résultant de contraintes positive ($S = 1$) et négative ($S = -1$). Une telle procédure procure un semblant de symétrie dans le maillage, tel qu'observé à la Figure 4.1.

4.1.1 Évaluation du transfert de masse

Le transfert de masse par diffusion est le phénomène physique central gouvernant la mesure d'une sonde ED. Numériquement, il est souvent représenté par le nombre de Sherwood modifié (cf. section 2.5.3) et se formule par

$$Sh^* = \int_0^1 \left.\frac{\partial C}{\partial Y}\right|_{Y=0} dX \tag{4.1}$$

lorsque la sonde est située en $0 \leq X \leq 1$. Considérant la présence des points de singularité en bords d'attaque et de fuite de la sonde, le flux de concentration selon (4.1) ne devrait pas être évalué en utilisant la dérivée spatiale traditionnelle (i.e. par différences finies) si une mesure précise est recherchée. En éléments finis, cette quantité est également accessible au travers des *variables secondaires* ou *réactions*, correspondant en fait aux conditions limites naturelles aux extrémités d'un élément (Fortin et Garon, 2017). Les réactions sont propres à la méthode des éléments finis et ressortent naturellement des formulations variationnelles élémentaires ;

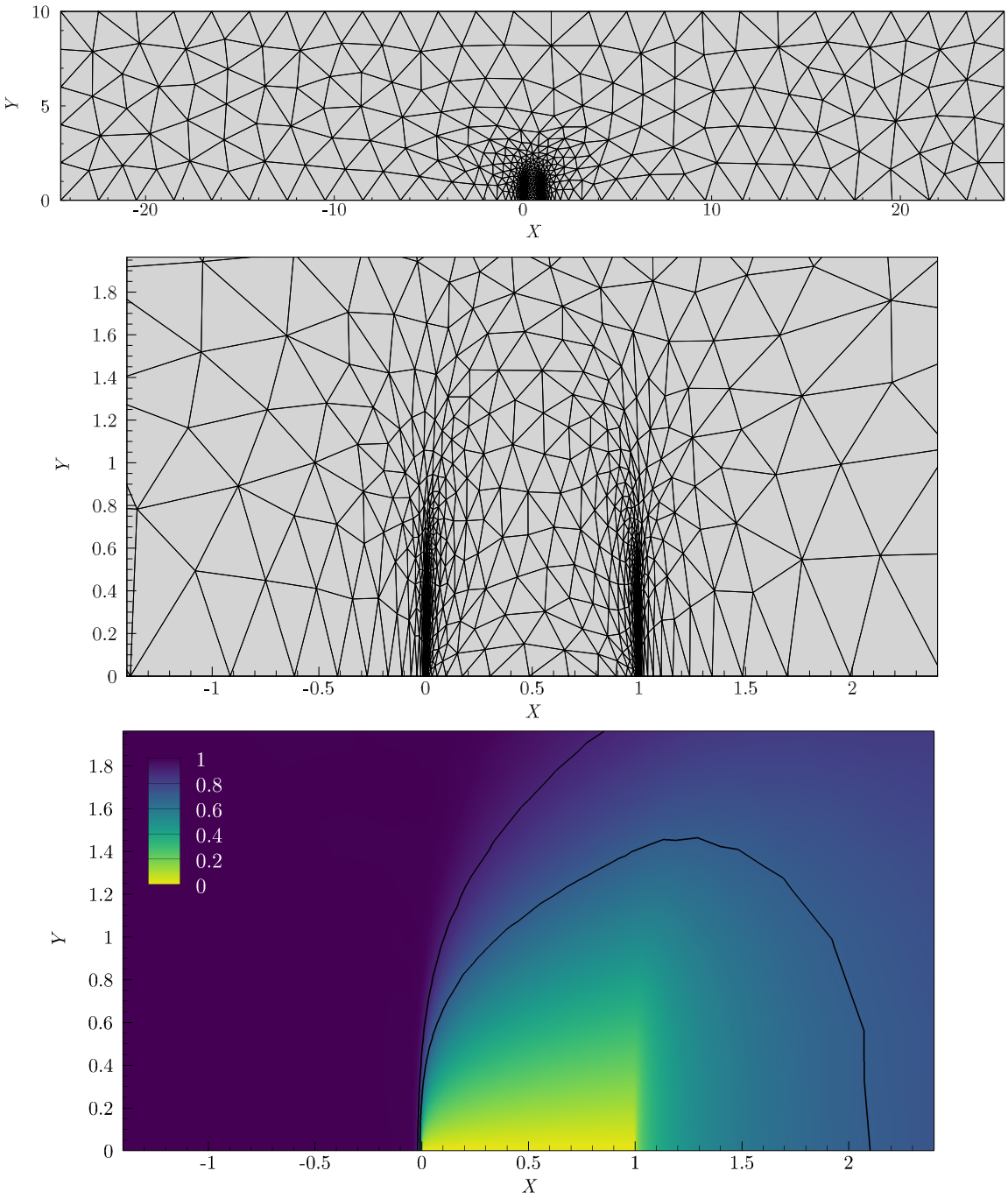


Figure 4.1 Maillage typique utilisé pour le problème direct 2D, visualisé dans son domaine complet (haut) et dans une zone agrandie près de la sonde (milieu), située entre $X = 0$ et $X = 1$. La figure du bas illustre le champs de concentration C avec deux lignes de contour ($C = \{0.7, 0.9\}$) lorsque le fluide s'écoule de la gauche vers la droite ($S > 0$, $Pe = 1 \times 10^4$)

cette façon d'évaluer un flux est donc plus précise par définition. Cette méthode permet aussi de mieux prendre en compte les singularités lorsque des éléments assez fins sont utilisés. Bien que les variables secondaires ne soient pas directement accessibles dans `FreeFem++`, les fonctions et outils matriciels disponibles permettent d'évaluer le flux de concentration à la sonde (4.1) à l'aide de la méthode des réactions, ce qui a été fait dans le cadre de ces travaux. Certains détails sont disponibles en annexes A et B.

L'incidence d'une telle méthode est importante dans le calcul de (4.1) considérant le présent problème ; les gains en précisions sont considérables comme il sera exposé en prochaine section.

4.2 Étude et validations du problème direct 2D

Rappelons la forme adimensionnelle (2.44) utilisée pour l'équation de CD :

$$Sr\frac{\partial C}{\partial \tau} + SY\frac{\partial C}{\partial X} = Pe^{-2/3}\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2}. \tag{4.2}$$

Le problème direct 2D consiste à résoudre (4.2) pour C avec les conditions limites présentées en Figure 2.9, en imposant une contrainte S connue. Il permet notamment d'évaluer le flux ou transfert de masse à la sonde associé à la contrainte S.

4.2.1 Cas stationnaire et maillage

La validation du problème direct implique d'abord une étude de convergence en maillage, possible au travers du problème 2D stationnaire sans diffusion axiale ($Pe \to \infty$) puisque une solution analytique existe (solution de Lévêque, cf. section 2.3.3). La Figure 4.2 illustre l'évolution de l'erreur

$$\epsilon = |1 - Sh^*/Sh^*_{\mathrm{q}}| \tag{4.3}$$

selon le nombre total de nœuds du maillage, où

$$Sh^*_{\mathrm{q}} = 0.80755\, S^{1/3} \tag{4.4}$$

est le transfert de masse adimensionnel selon la solution de Lévêque. En Figure 4.2, le transfert de masse est évalué de deux manières : en utilisant la dérivée spatiale traditionnelle (ou par différences finies) et avec la méthode des réactions. L'influence du degré des éléments est également exposé (éléments linéaires P1 ou quadratiques P2). Le gain en précision offert par la méthode des réactions est considérable, autant avec des éléments P1 que P2. Bien que

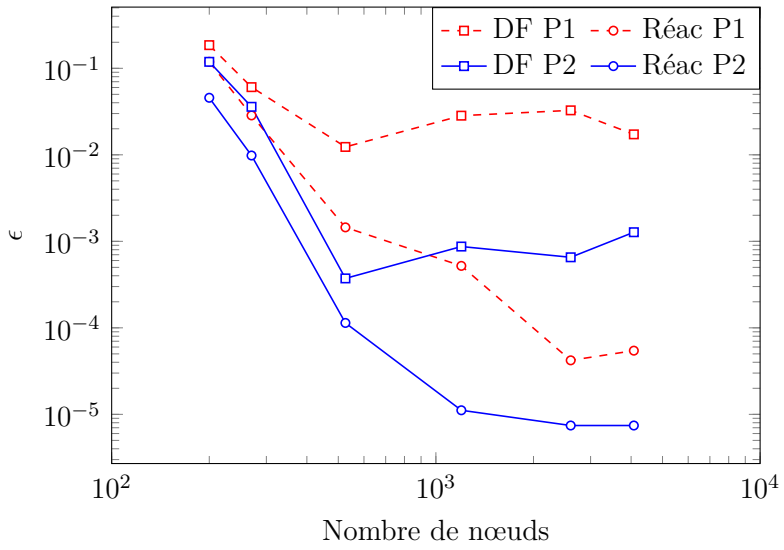


Figure 4.2 Effets du raffinement du maillage sur la mesure du transfert de masse selon deux méthodes, les différences finies (DF) et les réactions (Réac), en utilisant des éléments linéaires (P1) et quadratiques (P2)

l'erreur soit sous les $\sim 0.1\,\%$ avec les différences finies et éléments P2 lorsque le nombre de nœuds est important, cette méthode n'offre pas une convergence consistante contrairement aux réactions, c-à-d que, globalement, l'erreur ne diminue pas avec le nombre d'éléments. Ainsi, on notera pour la suite *que tous les flux à la sonde sont évalués à l'aide de la méthode des réactions* ; de même, un maillage avec $\sim 2\,500$ nœuds sera utilisé avec des éléments P2, sauf indication contraire.

Par ailleurs, il importe de mentionner que les différents maillages utilisés en Figure 4.2 ont été construits à l'aide d'un outil d'adaptation de maillage intégré à `FreeFem++`. Ce dernier prend en entrée un champ scalaire (ici, C) et un maillage, puis en génère un nouveau selon une métrique adaptée à la matrice hessienne de C. Accentuer la sévérité des critères pour la construction de la métrique résulte en un nombre plus élevé d'éléments près de la sonde, où se retrouvent les plus forts gradients et donc où l'erreur d'interpolation est la plus importante. Le nombre d'éléments du maillage peut ainsi être indirectement augmenté par l'entremise de ces critères. La décroissance du taux de convergence pour un nombre de nœuds élevé (Figure 4.2) peut s'expliquer par un positionnement incorrect des nœuds par l'outil d'adaptation lorsque ce nombre devient plus important.

Une seconde étape de validation consiste à vérifier qu'en augmentant progressivement le nombre de Péclet et, donc, en réduisant la contribution du terme de diffusion axiale dans l'équation de CD (4.2), le transfert de masse converge vers la solution de Lévêque. Bien qu'il

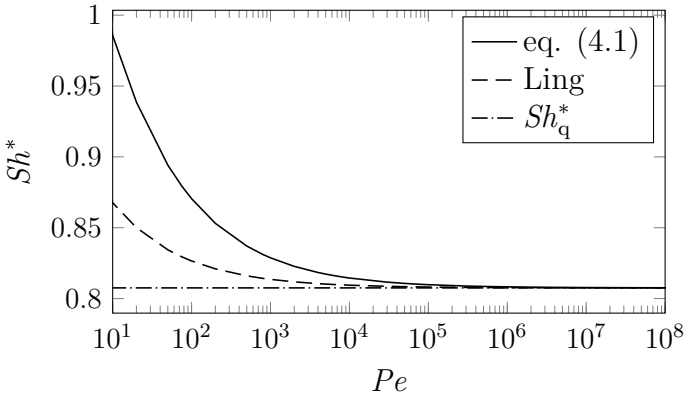


Figure 4.3 Effet du nombre de Péclet sur le transfert de masse dans le problème direct 2D stationnaire, comparé aux solutions de Ling et de Lévêque avec $S = 1$

n'existe pas de solution analytique pour le problème stationnaire 2D avec diffusion axiale, Ling (1963) proposa une correction de la forme

$$Sh^*_{\mathrm{corr}} = Sh^*_{\mathrm{q}} + 0.19 S^{-1/6} Pe^{-1/2}. \tag{4.5}$$

Une synthèse de travaux expérimentaux effectuée par Maquinghen (1999) montre toutefois que (4.5) sous-estime la diffusion axiale lorsque Pe est faible. Un tel effet peut être observé en Figure 4.3. Dans le cas présent, la diffusion axiale devient négligeable pour $Pe \gtrsim 7 \times 10^3$, où l'erreur avec la solution de Lévêque tombe sous les 1 % comparativement à $Pe \simeq 5 \times 10^2$ pour le modèle de Ling.

4.2.2 Cas instationnaire : réponse impulsionnelle

La réponse d'une sonde ED à un saut de tension a été introduite en section 2.5.2, où il a été exposé que, dans les premiers instants, les effets diffusifs et inertiels sont en équilibres ; le transfert de masse suit alors l'asymptote de Cottrell et tend vers la solution de Lévêque pour $t \to \infty$. Il est possible de vérifier numériquement un tel comportement instationnaire en résolvant l'équation de CD avec la condition initiale suivante :

$$C(X, Y, 0) = 1, \quad \forall\, X,\, Y \tag{4.6}$$

et les conditions aux frontières indiquées en Figure 2.9 lorsque $\tau > 0$. L'évolution du transfert de masse sous ces conditions est illustrée à la Figure 4.4 pour différents pas de temps lorsque $S = 1$ et $Pe \to \infty$. Une excellente concordance est observée avec l'asymptote de Cottrell $Sh^*_{\mathrm{cott}} = (\pi\tau)^{-1/2}$ lorsqu'un pas de temps assez fin est utilisé. La déviation pour des temps

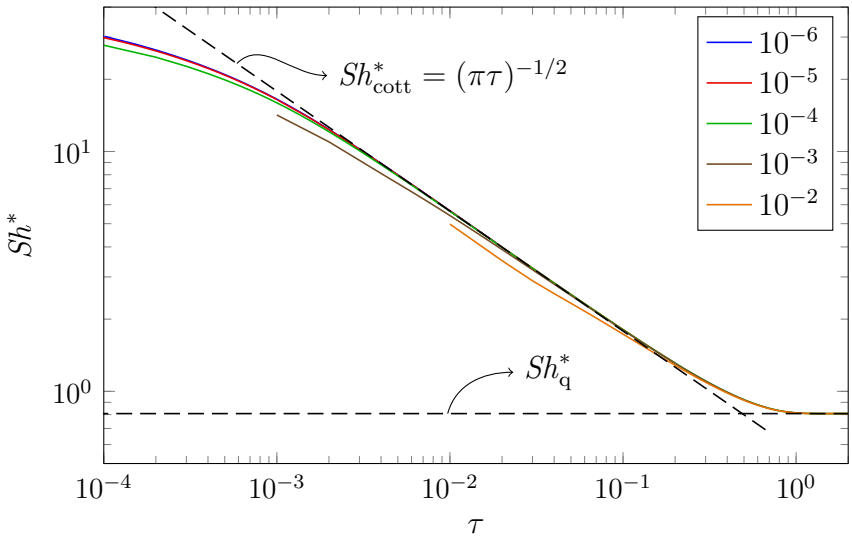


Figure 4.4 Simulation de la réponse d'une sonde à un saut de tension, en utilisant différents pas de temps $\Delta\tau$

faibles ($\tau \lesssim 10^{-3}$) peut s'expliquer par le fait que, numériquement, Sh^* tend vers une valeur finie lorsque $\tau \to 0$, alors que la formulation de Sh^*_{cott} n'est pas définie en $\tau = 0$.

4.2.3 Étude de l'inertie de la couche de diffusion

On parle d'effets inertiels notamment lorsque le transfert de masse n'est pas en phase avec les fluctuations de l'écoulement (cf. section 2.2.4). Puisque ces effets proviennent d'instationnarités dans l'écoulement, ils sont numériquement associés au terme $\partial C/\partial\tau$. Le nombre de Strouhal permet donc ici de caractériser ou de moduler l'intensité de ces effets. Lorsque $Sr = 1$, les termes inertiel et de diffusion (en Y) dans (4.2) sont en équilibre ; on parlera alors d'une fluctuation à « haute fréquence » ou de forts effets inertiels. Pour illustrer l'impact de Sr, le problème direct a été résolu pour trois valeurs différentes de Sr, mais en imposant la même contrainte $S(\tau)$, évoluant selon l'onde triangulaire

$$S = \begin{cases} 1 - \beta(4\tau^* - 1) & 0 \quad \leq \tau^* < 0.5 \\ 1 + \beta(4\tau^* - 3) & 0.5 \leq \tau^* < 1, \end{cases} \tag{4.7}$$

où $\tau^* = \tau - \text{int}(\tau)$, $\text{int}(x)$ réfère à la partie entière de x et β est une constante. Cette contrainte est répétée pendant plusieurs périodes afin de se défaire de l'influence des conditions initiales. La Figure 4.5 présente certains résultats lorsque $\beta = 1.5$ est utilisé, occasionnant ainsi une phase d'écoulement de retour ($S < 0$). En (a), les champs de concentration C des trois évolutions sont d'abord comparés aux quatre instants illustrés en (b). Lorsque $Sr = 0.01$,

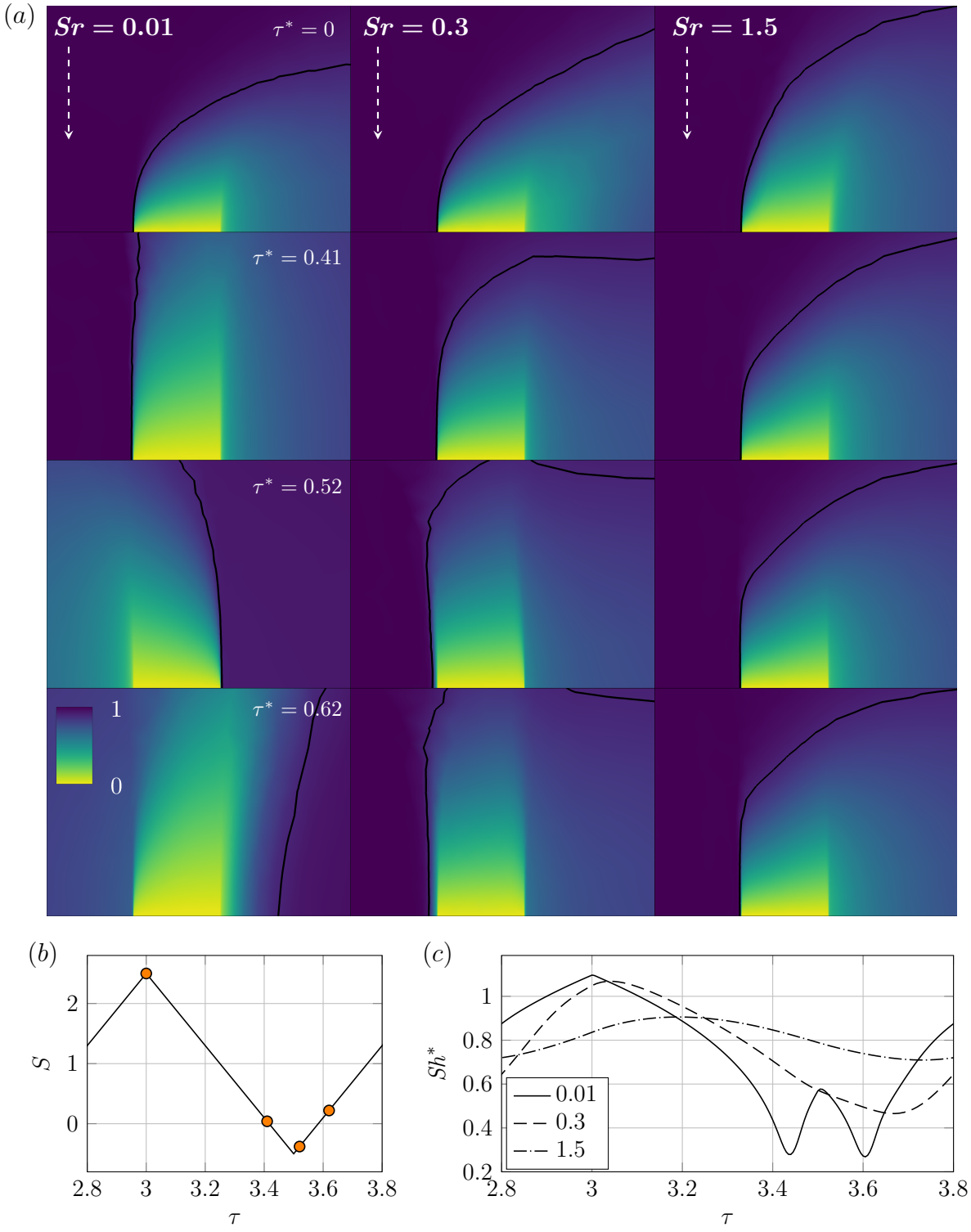


Figure 4.5 (a) : champs de concentration et lignes de contour ($C = 0.9$) associés à trois conditions d'écoulement, soit de gauche à droite $Sr = 0.01$, 0.3 et 1.5, à quatre instants dans la période. Les résultats illustrés sont obtenus après deux périodes de la fluctuation. Les évolutions de la contrainte et du transfert de masse sont respectivement montrées en (b) et (c) sur une période ; les symboles réfèrent aux instants illustrés en (a)

les effets inertiels sont faibles et la couche de diffusion suit très bien l'évolution de $S(\tau)$, même durant la phase où $S < 0$. Une telle évolution peut ainsi être considérée comme étant *quasi-stationnaire*. En utilisant Sr 30 fois plus élevé, la couche de diffusion ne renverse que faiblement lorsque S atteint sa valeur minimale à $\tau^* = 0.5$. Puis, dans le cas $Sr = 1.5$, la forme de la couche de diffusion demeure pratiquement la même tout au long de la période et le changement de sens peut difficilement être discerné. Le transfert de masse pour chacune de ces conditions d'écoulement est illustré en Figure 4.5(c). En plus des effets de déphasages, de fortes atténuations du transfert de masse sont spécialement notables lorsque le nombre de Strouhal augmente.

Une particularité intéressante des écoulement de retour est l'effet du sillage sur la mesure de Sh^*. En Figure 4.5(c) par exemple, les deux minimums locaux du cas $Sr = 0.01$ ne montrent pas exactement la même valeur puisque la concentration du fluide en bord d'attaque est inférieure à 1 durant cette phase. C'est particulièrement grâce à cette information additionnelle, issue du sillage de la couche limite, que la méthode inverse sera apte à détecter les changements de sens.

4.3 Problème inverse unidimensionnel

En section 2.5.3, les principaux éléments de l'algorithme inverse couramment utilisé avec la méthode ED (entre autres : Mao et Hanratty, 1991a; Maquinghen, 1999; Labraga *et al.*, 2002; Rehimi *et al.*, 2006; Fourrié *et al.*, 2013) ont été présentés. Alors que certains d'entre eux ont été utilisés dans le cadre de cette thèse, une approche différente a été mise en œuvre pour le calcul de la *sensibilité* du transfert de masse $\partial Sh^*/\partial S$ (étape 4, section 2.5.3) et est présentée ici.

4.3.1 Calcul de la sensibilité du transfert de masse

Plutôt que d'utiliser une approche par différence finie, il est également commun dans un problème inverse d'évaluer $\partial Sh^*/\partial S$ à l'aide de *l'équation des sensibilités* (Ozisik, 2000). Cette dernière consiste à dériver l'équation de CD par rapport au module du gradient pariétal de vitesse ($\partial(2.4)/\partial s$) de façon à obtenir une équation pour la sensibilité du champ de concentration $c(x, y, t)$ par rapport à $s(t)$. Une telle équation se formule par

$$\frac{\partial c_1}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla c_1 = D\nabla^2 c_1 - \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial s} \cdot \nabla c, \tag{4.8}$$

avec $c_1 = \partial c/\partial s$. On remarque l'ajout d'un terme source par rapport à l'équation (2.4). En présence d'un profil de vitesse linéaire, de la forme $\mathbf{u} = sy\mathbf{i}$, le cas 2D de l'équation (4.8)

s'écrit

$$\frac{\partial c_1}{\partial t} + sy\frac{\partial c_1}{\partial x} = D\left(\frac{\partial^2 c_1}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c_1}{\partial y^2}\right) - y\frac{\partial c}{\partial x}. \tag{4.9}$$

En utilisant l'adimensionnement (2.43), l'équation devient

$$Sr\frac{\partial C_1}{\partial \tau} + SY\frac{\partial C_1}{\partial X} = Pe^{-2/3}\frac{\partial^2 C_1}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C_1}{\partial Y^2} - Y\frac{\partial C}{\partial X}, \tag{4.10}$$

où $C_1 = c_1\overline{s}/C_0$. Par analogie avec le calcul du transfert de masse, obtenu en intégrant la quantité $\partial C/\partial Y|_{Y=0}$ à la sonde, on peut relier la sensibilité du transfert de masse au terme $\partial C_1/\partial Y|_{Y=0}$ en dérivant (4.1) par rapport à S :

$$\frac{\partial Sh^*}{\partial S} = \int_0^1 \left.\frac{\partial C_1}{\partial Y}\right|_{Y=0} dX. \tag{4.11}$$

Rappelons que c'est à partir de cette quantité que la correction ΔS est calculée durant le problème inverse (équation (2.51)). L'approche des sensibilités nécessite donc d'abord de résoudre (4.10), puis d'évaluer $\partial Sh^*/\partial S$ à l'aide de (4.11). Comparativement à l'évaluation par différences fines (2.52), le calcul de $\partial Sh^*/\partial S$ ne demande ici que de résoudre une seule fois (au lieu de trois fois) l'équation de CD. Alors que la résolution d'une seconde équation est nécessaire, il est intéressant de noter que la forme de (4.10) est identique à (4.2) avec l'ajout d'un terme source *connu*, considérant que l'équation pour C a préalablement été résolue. Cet avantage est particulièrement notable en éléments finis puisque la matrice élémentaire (i.e. les coefficients des termes inconnus de l'équation différentielle) associée à (4.11) n'a pas besoin d'être reconstruite, étant la même que celle utilisée pour résoudre (4.2). Ceci offre de considérables gains en rapidité pour le calcul de $\partial Sh^*/\partial S$ ($\sim$ 3 fois plus rapide). Enfin, en utilisant cette démarche, on se défait également du choix d'un paramètre ϵ_S pour le calcul de $\partial Sh^*/\partial S$ dans l'approximation linéaire (2.52).

4.3.2 Vérification et validation

La phase de vérification consiste à s'assurer que l'algorithme mis en œuvre ne comporte pas d'erreur. Des cas plus concrets, se rapprochant par exemple des conditions expérimentales, peuvent ensuite être utilisés pour valider le processus.

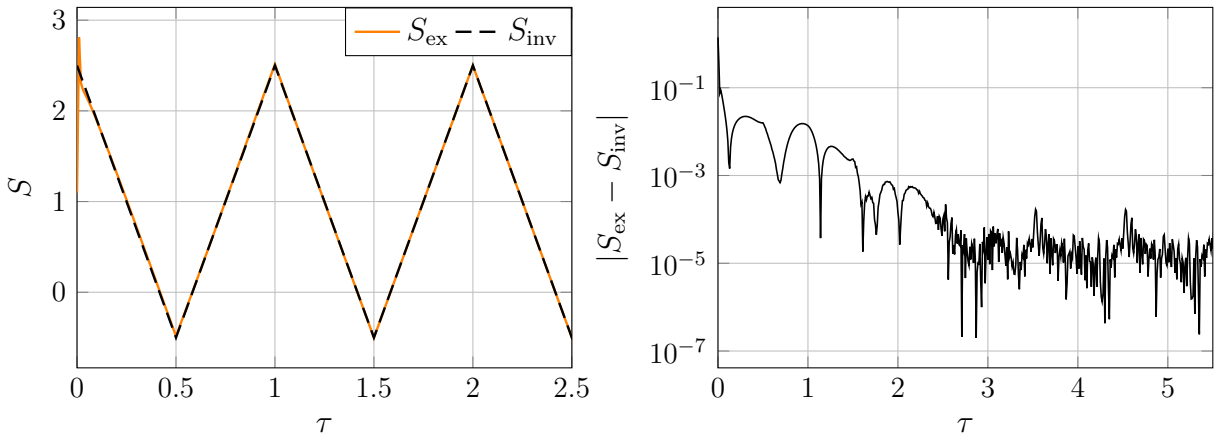


Figure 4.6 Vérification du problème inverse unidimensionnel. Gauche : comparaison des résultats avec la contrainte imposée ou exacte S_{ex}. Droite : évolution de l'erreur sur S

Vérification

L'algorithme inverse est ici testé en simulant d'abord des données de transfert de masse avec le problème direct, puis en les traitant avec l'algorithme du problème inverse en utilisant les *mêmes* paramètres de simulation que ceux du problème direct, tels que le maillage et le pas de temps. On devrait ainsi réussir à retrouver l'évolution temporelle exacte de la contrainte $S(\tau)$ utilisée pour simuler les données.

Bien que plusieurs tests de vérifications ont été effectués, seul un cas est ici présenté, correspondant à des conditions d'écoulement relativement intenses réunissant forte amplitude sur S et inversion du cisaillement, haute fréquence et discontinuités dans le signal $S(\tau)$. La Figure 4.6 présente donc les résultats du problème inverse lorsque le gradient pariétal de vitesse imposé suit l'onde triangulaire définie par l'équation (4.7), avec $\beta = 1.5$ et $Sr = 1.5$; ces conditions correspondent au cas illustré en Figure 4.5(a) (droite). On observe une convergence rapide du gradient pariétal obtenu avec la méthode inverse, S_{inv}, sur la contrainte exacte S_{ex}. Le changement de sens du cisaillement est aussi capturé à perfection. La figure montre également l'évolution de l'erreur sur S avec les périodes, qui se stabilise près de 10^{-5}, alors que l'erreur sur Sh^*, correspondant au critère de convergence du processus inverse, tombe dès le premier pas de temps près de la précision machine (non illustré ici). Une caractéristique importante d'un problème inverse est le fait qu'une convergence du paramètre à minimiser n'assure pas forcément que le paramètre *recherché* soit exact, soit que $S_{\text{inv}} = S_{\text{ex}}$, puisque la solution au problème dépend des conditions initiales. Un décalage est effectivement observé dans les premiers pas de temps considérant que le problème est d'abord résolu en régime stationnaire, permettant d'initialiser le champ de concentration et de stabiliser le processus.

Après un certain nombre de périodes (ici ~ 3) toutefois, l'erreur diminue et se stabilise (Figure 4.6, à droite). Alors qu'il est généralement possible d'obtenir une erreur de l'ordre de la précision machine pour Sh^* dans le problème inverse unidimensionnel, une telle précision est difficilement atteignable pour S. L'ordre de grandeur de l'erreur ici obtenue est toutefois largement inférieure à ce que l'on devrait s'attendre avec des données expérimentales et apparaît ainsi comme étant convenable.

Validation

Une première étape consiste d'abord à s'assurer que le problème direct n'est pas dépendant du maillage et du pas de temps utilisés. En effet, la discrétisation du domaine à l'aide d'éléments n'est qu'un modèle représentant l'environnement d'une sonde réelle. L'utilisation d'un maillage plus grossier que celui utilisé pour générer les données pourrait, par exemple, simuler partiellement cette différence entre mesures et modèle numérique. Ainsi, un maillage comprenant deux fois moins de nœuds que celui ayant servi à simuler les données a été utilisé pour valider le problème, de même qu'en utilisant un pas de temps différent. Deux cas sont présentés ici, tandis qu'une validation utilisant des données expérimentales sera effectuée plus loin en chapitre 6. Une amplitude $\beta = 0.8$ (cf. (4.7)) et un nombre de Péclet $Pe \to \infty$ ont été choisis afin de pouvoir comparer les résultats avec la méthode de Sobolík, se formulant ici par

$$S_{\text{sob}} = S_{\text{q}} + \frac{2}{3\pi k^2} Sr S_{\text{q}}^{-2/3} \frac{\mathrm{d}S_{\text{q}}}{\mathrm{d}\tau}. \tag{4.12}$$

Cette équation est valide même en présence de fortes fluctuations, bien que sans inversion du cisaillement ni diffusion axiale.

La Figure 4.7 présente les résultats pour $Sr = 1$ et $Sr = 50$, que l'on pourrait considérer d'évolutions à haute et très haute fréquence, respectivement. Dans les deux cas, la méthode inverse donne de très bons résultats dans l'ensemble et converge vers une évolution périodique en moins de deux périodes. Pour des temps $\tau \gtrsim 2$, aucune variation n'est notable dans les résultats d'une période à l'autre ; seules les valeurs pour $\tau < 2$ sont donc présentées. Dans le premier cas ($Sr = 1$), on remarque une mince déviation de S_{inv} suite aux instants de discontinuité ($\tau = 1$ et $\tau = 1.5$), ce qui semblerait être dû au pas de temps trop grossier utilisé ($\Delta\tau = 0.02$, soit deux fois le pas de temps des données simulées) considérant un si brusque changement sur S. Cet effet n'est effectivement pas notable dans le second cas à très haute fréquence ($Sr = 50$), résolu avec $\Delta\tau = 4 \times 10^{-3}$ (correspondant à $4\times$ le pas de temps de base dans ce cas). Cependant, à un Sr si élevé, le problème inverse est très instable, tel que démontré par les fortes oscillations pour $\tau \lesssim 0.1$. De plus, la taille du pas de temps affecte fortement cette stabilité ; la résolution en utilisant $\Delta\tau$ plus faible devient trop instable

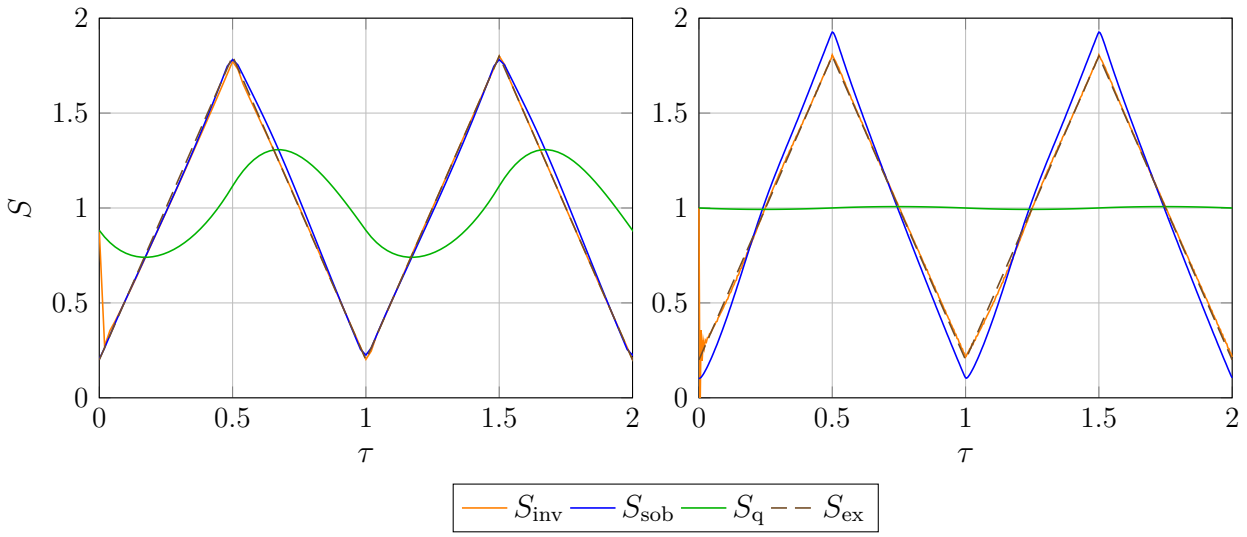


Figure 4.7 Validation du problème inverse unidimensionnel en présence de fortes fluctuations à haute fréquence (gauche, $Sr = 1$) et très haute fréquence (droite, $Sr = 50$). Les évolutions obtenues avec les méthodes quasi-stationnaire (S_{q}, cf. (4.4)) et de Sobolík (S_{sob}, cf. (4.12)) sont également illustrées

et n'a pu être complétée. Néanmoins, une très bonne concordance avec S_{ex} est observée dans l'ensemble avec $\Delta\tau = 4 \times 10^{-3}$. L'intensité de ces effets inertiels peut également être pesée en considérant l'évolution quasi-stationnaire S_{q}, déjà nettement atténuée et déphasée à $Sr = 1$.

Par ailleurs, il est intéressant d'observer que la méthode de Sobolík, basée sur une correction de la solution quasi-stationnaire, donne des résultats bien acceptables, même lorsque $Sr = 50$. Toutefois, n'étant qu'une approximation, la méthode de Sobolík montre aussi certaines déviations à plus faible fréquence, tel qu'observé en Figure 4.8 pour différents nombres de Stouhal et $\beta = 0.8$. La validité de cette méthode ne semble pas suivre une tendance généralisée. En effet, on observe plutôt que pour :

1. $Sr \lesssim 0.1$, la méthode est dans l'ensemble excellente ;
2. $0.1 \lesssim Sr \lesssim 1.5$, des surévaluations sont notables, particulièrement pour $Sr = 0.5$;
3. Vers $Sr \sim 1.5$–2, la correction est adéquate ;
4. $Sr \gtrsim 2$, la surévaluation réapparait et ne fait qu'augmenter avec Sr (testé jusqu'à $Sr = 50$).

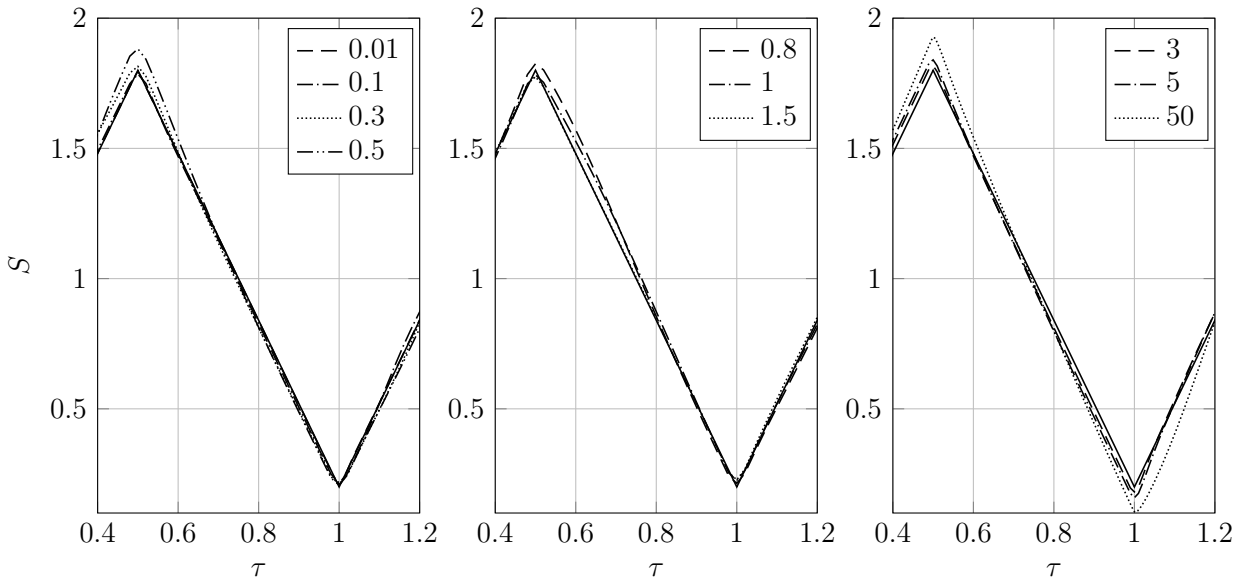


Figure 4.8 Post-traitement avec la méthode de Sobolík pour différents Sr. Les données ont été simulées utilisant $\beta = 0.8$ dans (4.7) et $Pe \to \infty$. Le trait plein représente S_{ex}. Les post-traitements ont été effectués sur des données obtenues après plusieurs périodes pour se défaire des effets des conditions initiales

4.3.3 Caractère instable du problème inverse

Rappelant la section 2.5.3, le problème inverse typiquement utilisé avec la méthode ED se base sur une méthode de Newton, où le zéro de la fonction

$$F = Sh^*_{\text{ex}} - Sh^* \tag{4.13}$$

est recherché à chaque pas de temps. Toutefois, il s'avère que F ne présente généralement pas une racine unique ; il peut donc y avoir plus d'une solution possible pour certaines conditions d'écoulement. Par exemple, en régime stationnaire, la détection du sens de l'écoulement est impossible puisque deux écoulements, caractérisés respectivement par S ou $-S$, généreront le même transfert de masse à la sonde ; deux solutions ou valeurs de S sont ainsi reliées au même Sh^*. En régime instationnaire, le fait de tomber ou non sur la « bonne » solution dans le problème inverse dépendra spécialement des conditions initiales sur C, mais aussi du S imposé sous ces conditions. Basculer vers la mauvaise solution pourrait notamment avoir comme conséquence une évaluation erronée du sens de l'écoulement, mais aussi de la forme générale de $S(\tau)$. De plus, sous certaines conditions d'écoulement (Sr, Pe), F peut même ne présenter *aucune* racine à un pas de temps donné, pour une certaine condition initiale $C_i(X, Y, \tau_i)$.

Cas de deux racines voisines

En général, deux solutions au problème sont possibles, bien qu'elles sont la plupart du temps assez éloignées l'une de l'autre, ce qui assure stabilité et conformité dans le processus. En revanche, une mauvaise initialisation du problème peut graduellement faire tendre la méthode vers une fausse solution. Prenons l'exemple d'une variation sinusoïdale de gradient pariétal de vitesse, de la forme

$$S(\tau) = 1 + \beta \cos(2\pi\tau). \tag{4.14}$$

Comme pour (4.7) concernant l'onde triangulaire, on verra une inversion du cisaillement lorsque $\beta > 1$. La Figure 4.9 présente les résultats du problème inverse pour le post-traitement de données simulées avec (4.14), $\beta = 1.8$ et $Sr = 0.8$. Alors que la méthode converge bien sur S_{ex} dans les premiers pas de temps, S_{inv} change brusquement de direction lorsque $\tau \simeq 0.9$ et s'éloigne fortement de S_{ex}, signe que la « mauvaise » racine de F a été choisie. Malgré le rapprochement lent de S_{inv} vers S_{ex} avec les périodes, le problème inverse ne pourra converger sur S_{ex} sans information ou aide additionnelle. Examinons ce qui a d'abord causé le soudain changement de direction.

La Figure 4.10 offre une vue agrandie de la zone $0.92 < \tau < 0.97$, de même que l'allure de la fonction F à chacun des instants indiqués. F a été calculée en résolvant le problème *direct* pour différentes valeurs de S à l'intérieur même du problème inverse, donc à chaque instant

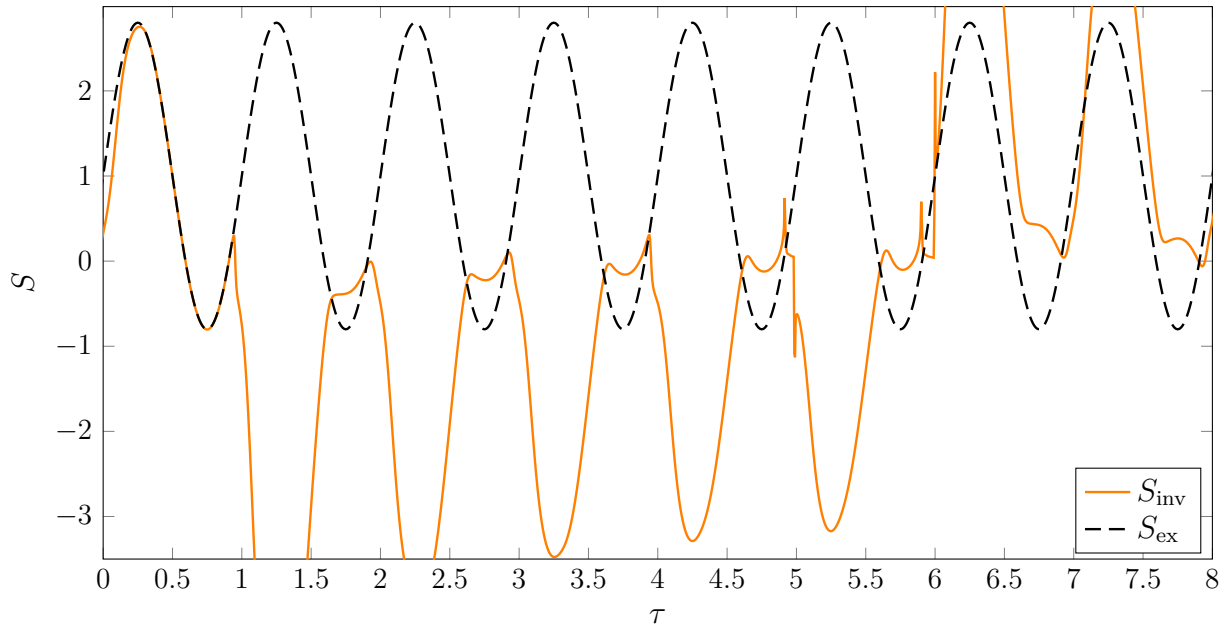


Figure 4.9 Échec dans la détection du sens durant le problème inverse. $Pe = 10^6$, $Sr = 0.8$ et $\beta = 1.8$ dans (4.14)

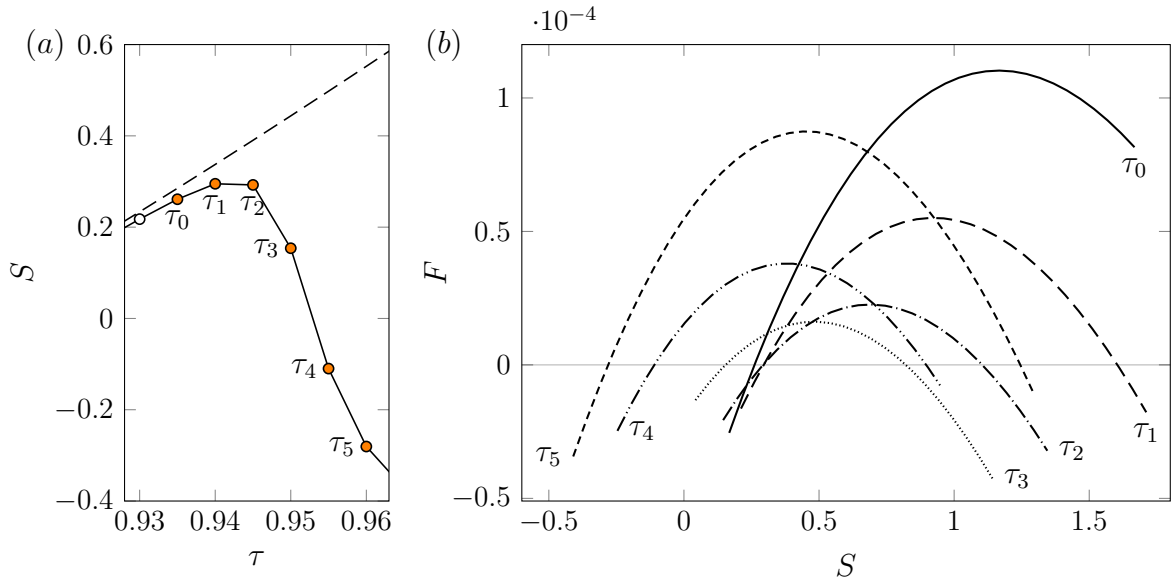


Figure 4.10 (a) : vue agrandie des résultats de la Figure 4.9, près d'un changement de sens du cisaillement. (b) : visualisation de la fonction F aux instants illustrés en (a)

τ_i. Les principales différences entre les différentes courbes de F sont :

- la valeur du transfert de masse $Sh^*_{\text{ex}}(\tau_i)$ au pas de temps τ_i, utilisée dans le calcul de F (cf. (4.13)) ;
- les conditions initiales sur C utilisées.

La présence de plusieurs racines ou solutions est bien exposée dans la figure. Par exemple, à l'instant τ_1, les deux racines de F sont à $S \simeq \{0.3,\ 1.6\}$. On remarque en Figure 4.10(a) que la première racine $S = 0.3$ a été choisie dans le problème inverse, puisque la condition initiale imposée sur S (c-à-d la valeur au pas de temps précédant, $S_{i-1} \simeq 0.25$) était très près de cette valeur ; la méthode a donc convergé vers cette racine qui est la plus proche. C'est ce qui est également observé dans les pas de temps subséquent : la méthode converge sur la racine la moins éloignée, qui s'avère être celle où S est plus faible. Une telle circonstance, où le processus inverse tombe naturellement sur la mauvaise solution, semble provenir des conditions initiales sur C ou, autrement, du fait que la couche de diffusion n'a pas eu un temps suffisant pour se développer adéquatement et bien correspondre à celle des données simulées, au même instant. En d'autres termes, l'évolution du transfert de masse $Sh^*_{\text{ex}}(\tau)$ associée aux conditions initiales sur C et S font en sorte que, à cet instant, la solution naturelle au problème correspond à celle qui a été choisie. Dans leurs travaux, Rehimi *et al.* (2006) suggèrent, lorsque $S \sim 0$, d'utiliser comme première estimation au pas de temps suivant

$$S^{(0)}_{i+1} = 2S_i - S_{i-1}, \tag{4.15}$$

soit de tenir compte de la pente de $S_{\text{inv}}(\tau)$ aux deux derniers pas de temps pour surestimer la prochaine valeur de S et ainsi faciliter ou forcer le changement de sens. Pour des cas modérés, (4.15) est généralement suffisant. Toutefois, afin que le problème inverse converge ici naturellement sur la seconde racine à l'instant τ_3, par exemple, on devrait respecter au minimum $S > 0.5$ afin d'être à droite du maximum de la courbe $F(S)$ au temps τ_3 (cf. Figure 4.10*b*). Il est évident d'après les données en (*a*) que, même en utilisant (4.15), $S_{i+1}^{(0)}$ sera sous-évalué et ne sera pas assez élevé pour que la méthode de Newton converge vers la bonne solution.

Une approche envisageable pour contrer une telle situation est de forcer le méthode vers la bonne solution en imposant une valeur assez importante sur $S_{i+1}^{(0)}$, qui permettrait ainsi de traverser cet extremum sur F. Un tel effet est observé en Figure 4.11 où, lorsque le changement de direction est détecté à l'instant τ_2, on force le processus vers la racine $S \simeq 1.2$. En procédant ainsi, on observe que la méthode peut ensuite converger adéquatement sur S_{ex} et traverse même facilement ce passage aux périodes subséquentes (notamment à $\tau = 2$), considérant que la couche de diffusion a eu un temps suffisant pour bien se développer. Les fortes oscillations qui suivent le changement brusque de S_{inv} vers $\tau \simeq 0.95$ peuvent toutefois causer un retour vers la mauvaise solution ; il faut donc prendre soin de vérifier la réussite de la procédure, parfois en utilisant des critères plus sophistiqués. Par ailleurs, une telle stabilisation du processus observée en Figure 4.11 suite au redressement de la solution est plutôt rare lors du traitement de données expérimentales (cf. section 6.5) dû aux erreurs de mesures.

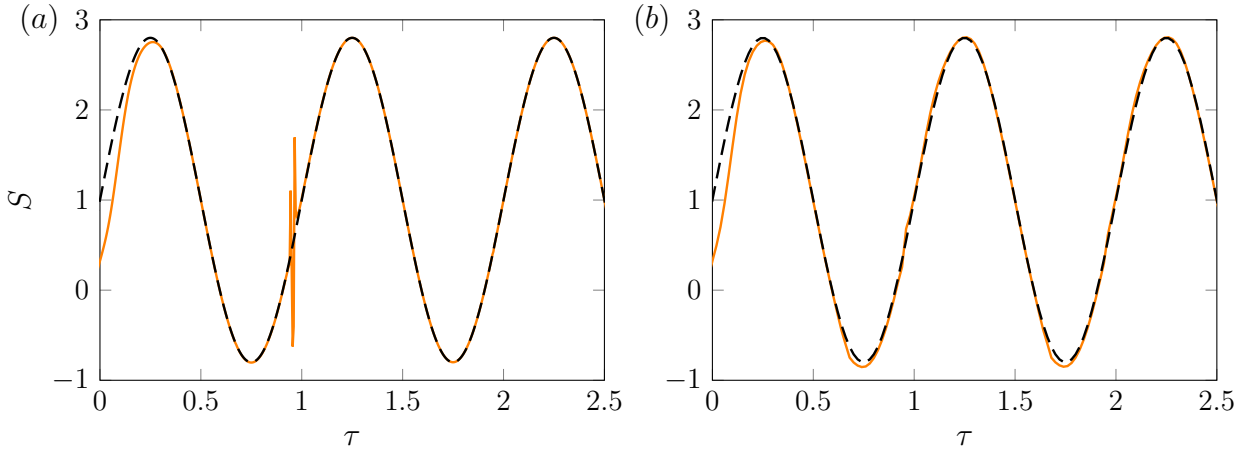


Figure 4.11 S_{inv} lorsque (*a*) le processus est forcé vers la bonne solution et (*b*) un pas de temps 4× plus grossier est utilisé (même cas qu'en Figure 4.9)

Considérant que, en pratique, la forme du gradient pariétal de vitesse est généralement inconnue, il serait légitime de se questionner sur l'utilité d'une telle approche. La courbe de S_{inv} illustrée en Figure 4.9, aussi douteuse qu'elle puisse paraître, pourrait s'avérer être l'évolution temporelle réelle du gradient pariétal de vitesse. Une approche complémentaire est toutefois facilement réalisable et permet en général de corroborer les résultats. Elle consiste d'abord à résoudre le problème inverse avec un pas de temps plus grossier, ce qui offre d'une part une stabilité accrue et, d'autre part, permet souvent de simplement franchir ces instants instables. En effet, un pas de temps quatre fois plus grossier a ici permis de bien retrouver la forme de S_{ex} avec le problème inverse, comme observé à la Figure 4.11(b). Certes, un décalage globalement plus important est observé avec S_{ex} ; une telle procédure sert plutôt à valider la forme de S_{ex} pour ensuite savoir à quels instants il serait nécessaire de contraindre ou forcer S_{inv}.

Cas où $\boldsymbol{F}$ ne présente aucune racine

Dans une telle situation, la méthode de Newton telle que présentée oscille ou diverge puisqu'aucun zéro ne peut être trouvé. Une première solution est d'utiliser une tolérance `tol` plus faible (cf. section 2.5.3) dans la recherche des racines, bien que le succès d'une telle approche n'est pas assuré. Il est également possible de se tourner vers une méthode de *minimisation* : au lieu de rechercher un zéro, on cherchera un minimum de la fonction F^2, par exemple. Cette fonction est par définition toujours positive et présentera donc assurément un minimum, du moins local. Cette procédure nous amènera vers une solution minimisant l'écart avec les données expérimentales ou simulées à un certain pas de temps, considérant qu'une solution n'existe pas. Une telle situation où F ne présente pas de racine peut ne survenir qu'à certains instants durant le processus. Il est donc envisageable de coupler méthodes de minimisation (ici, une méthode de Brent (Press *et al.*, 2007) est utilisée) et de Newton dans le problème inverse, considérant que cette dernière est beaucoup moins couteuse. On pourra ainsi utiliser un algorithme combinant vitesse de convergence et stabilité des méthodes de Newton et Brent, respectivement.

La Figure 4.12 présente les résultats du problème inverse pour le cas $Sr = 1$, $\beta = 1.5$ selon l'évolution sinusoïdale (4.14). La courbe $S_{\text{inv}}(\tau)$ montre, à un instant similaire au cas de la Figure 4.9, une discontinuité résultant d'un échec dans la recherche des racines. Le cheminement menant vers une telle situation est présenté en Figure 4.13, où l'évolution de la fonction F est une fois de plus examinée. À l'instant τ_2, on observe effectivement en (a) que F ne présente aucune racine. L'algorithme inverse élaboré détecte cette situation et fait donc appel à la méthode de Brent, jusqu'à ce que F présente de nouveau une racine. Alors qu'un

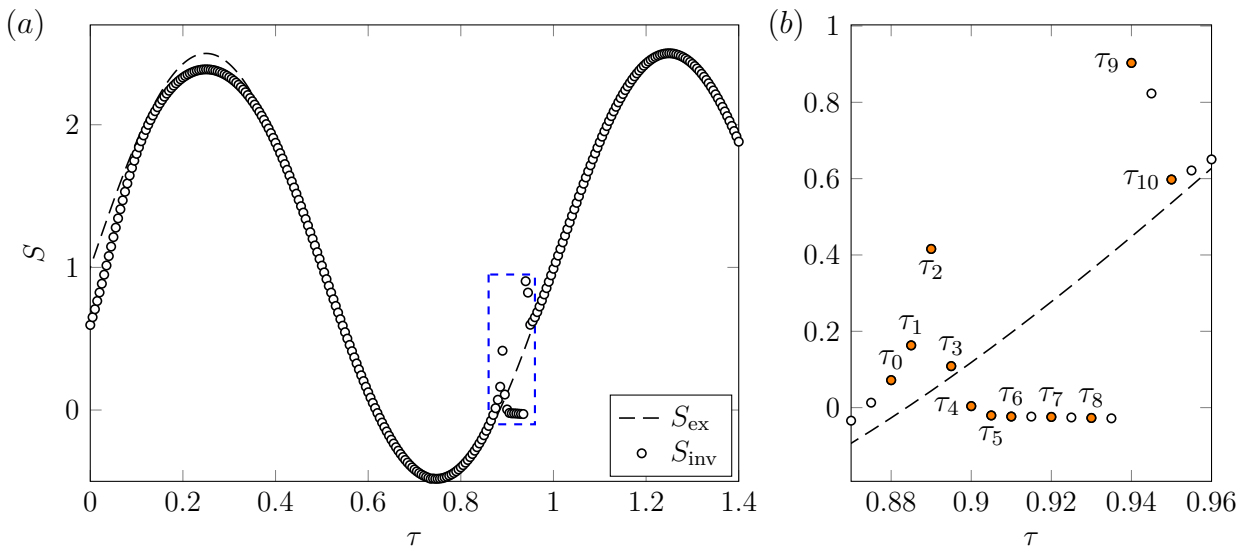


Figure 4.12 Second type d'échec dans le problème inverse ; (*a*) vue d'ensemble ; (*b*) vue agrandie. Cas $Pe = 10^6$, $Sr = 1$ et $\beta = 1.5$ dans (4.14)

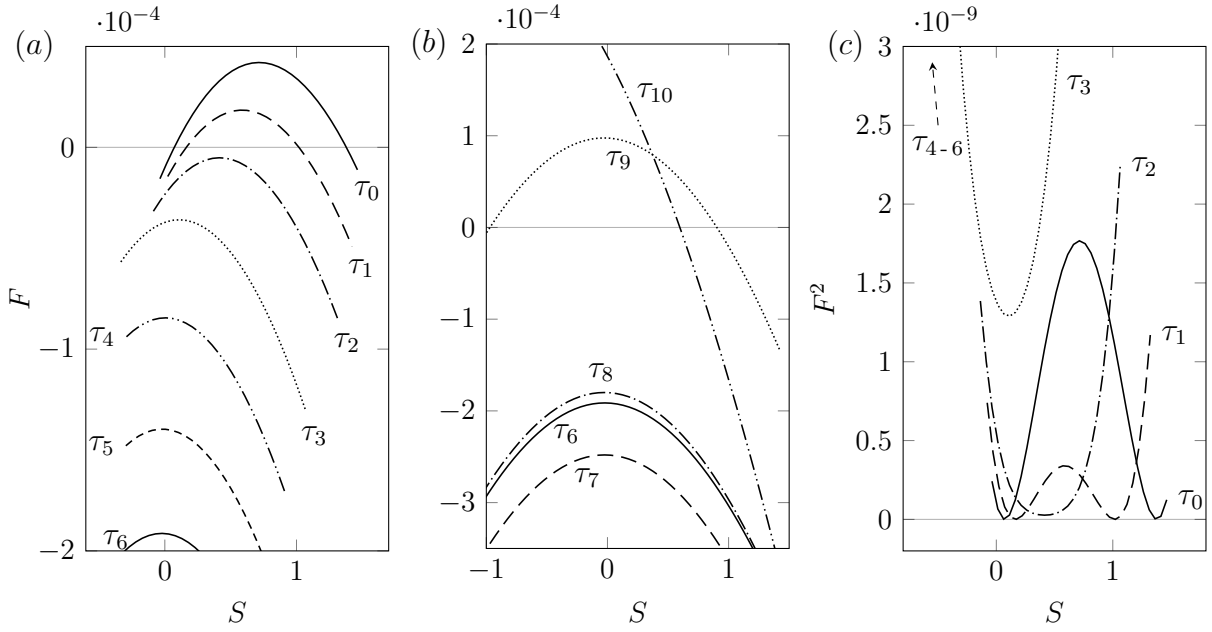


Figure 4.13 Fonction F pour les instants illustrés en Figure 4.12, soit pour (*a*) τ_0 à τ_6 et (*b*) τ_6 à τ_{10} ; (*c*) fonction F^2 utilisée lors de la minimisation, pour certains de ces instants

minimum est facilement calculable par la méthode, on remarque que l'extremum des courbes F aux temps $\tau_3 \leq \tau \leq \tau_8$ se retrouvent pratiquement toujours près de la même valeur, soit ici $S \simeq 0$. Cela explique pourquoi S_{inv} semble stagner pendant quelques pas de temps à la

Figure 4.12. Puis, lorsque $\tau = \tau_9$, F coupe de nouveau l'axe des abscisses (Figure 4.13*b*) et la méthode de Newton peut être réutilisée.

La fonction F^2, utilisée pendant la minimisation, est illustrée pour certains pas de temps à la Figure 4.13(c). On observe bien qu'au moins un minimum est toujours détectable sur F^2, correspondant aux positions des racines de F lorsqu'elles existent et au maximum local de F dans le cas contraire. Alors que la cause exacte expliquant l'apparition de ces deux types d'échec n'est pas connue, ces problèmes ne surviennent qu'en présence d'un changement de sens pour le problème inverse *unidimensionnel*. Il apparait selon toute vraisemblance que la solution n'est tout simplement pas unique. De plus, ces événements dépendent fortement des conditions initiales et du nombre de Strouhal ; d'après l'expérience de l'auteur, ils ne seraient effectivement que très peu fréquents à faible Sr. Toutefois, le simple fait d'augmenter Sr ne les fera pas nécessairement apparaître, bien qu'ils soient plus susceptibles de se manifester.

4.4 Problème inverse bidimensionnel

En section 2.4, les types de sonde ED les plus communément utilisés ont été présentés. Il a été vu qu'une sonde double ou tri-segmentée donne accès à la direction du gradient pariétal de vitesse α en plus de son amplitude s. Toutefois, les modèles permettant la mesure de ces deux quantités sont limités aux fluctuations à faible amplitude, sinon lorsque les effets inertiels sont faibles. Il a été démontré dans les sections précédentes qu'en modélisant la réaction à la sonde au moyen d'un problème inverse, une évaluation précise de $s(t)$ est possible malgré ces deux limitations. Il serait donc réaliste de supposer que, en ajoutant une dimension au problème inverse, $\alpha(t)$ serait également accessible lorsque ce type de sonde est utilisé. Mao et Hanratty (1992), pionniers dans le développement d'un problème inverse dédié à la méthode ED, ont proposé une approche utilisant la sonde double rectangulaire de type « sandwich » (cf. section 2.4). Même si leur problème demeurait unidimensionnel, la détection du sens du cisaillement et des inversions étaient plus naturelles et en toute vraisemblance plus efficaces puisque l'information du sillage de la couche de diffusion était mieux exploitée. Malgré cette approche originale, ces travaux ne furent pas développés davantage.

Considérant la force et le potentiel des problèmes inverses, une variante bidimensionnelle de la méthode inverse a été développée dans cette thèse. Une telle approche donne simultanément accès aux deux composantes instantanées du gradient pariétal de vitesse. La méthode a été spécialement conçue pour une sonde tri-segmentée, car ce type de capteur offre la meilleure résolution angulaire, bien que le concept puisse être adapté à différentes géométries. La théorie derrière cette approche, de même que sa validation à l'aide d'exemples numériques et de cas expérimentaux, suivront dans les prochains chapitres. On notera toutefois que, puisque le

problème devient multidimensionnel, les instabilités présentées en section 4.3.3 prendront une toute autre ampleur. Le nombre de racines dans un problème à deux variables est difficilement évaluable et leur détermination bien plus ardue, spécialement lorsque la « bonne » solution est recherchée. Le succès des problèmes de minimisations demeurera également incertain considérant que plusieurs extrémums locaux peuvent coexister. Ces circonstances amplifieront les instabilités lors de la résolution ; des méthodes plus sophistiquées et couteuses sont ainsi indispensables, spécialement lors du post-traitement de données expérimentales.

CHAPITRE 5 ARTICLE 1 – AN INVERSE PROBLEM TO ASSESS THE TWO-COMPONENT UNSTEADY WALL SHEAR RATE

Marc-Étienne Lamarche-Gagnon, Jérôme Vétel

Cet article a été soumis au journal *International Journal of Thermal Sciences* le 6 septembre 2017.

Abstract

The instantaneous two-dimensional wall shear rate is assessed through an inverse problem using mass transfer data from a three-segment electrodiffusion probe. The method is validated numerically in complex flow conditions involving (i) high amplitude periodic fluctuations on both wall shear rate magnitude and direction and (ii) direct numerical simulation (DNS) data from a turbulent three-dimensional channel flow. The approach is shown to outperform every other post-treatments available for mass transfer sensors, especially regarding its versatility and application range. The impact of the three-segment probe gap size is also examined numerically.

5.1 Introduction

Every wall confined flow is subject to wall shear stress, affecting the efficiency of many industrial systems such as pumps, turbines, heat exchangers or any application implying fluid circulation. Despite the considerable efforts in developing new methods over the years, measurement of wall shear stress remains a challenge, especially when both time and space resolution are required. Among the many available methods, the floating element is interesting due to the probe size and considerably large bandwidth (sometimes up to 4 kHz, see Padmanabhan *et al.*, 1997). However, spatial resolution of the floating element is generally limited by the overall electronic components surrounding the probe and those sensors can rarely measure at the same time the shear stress direction. The hot-film anemometer has also been widely used to assess wall shear rate in unsteady flows. On paper, hot-film frequency response stays flat up to a few kHz (Wietrzak et Lueptow, 1994), but this value is largely weakened considering heat conduction through the wall, which also introduces a bias error. Regardless of the many adaptations developed over the last few decades (among other things: reduction of the substrate thermal conductivity, creation of a vacuum cavity below

the sensor), this problem persists and accurate measurements under unsteady conditions are still an issue (Sheplak *et al.*, 2004). Natural convection caused by the probe heating, known as the induced buoyancy, can also locally alter the flow conditions. He *et al.* (2011) attributed the large dispersions in their calibration data to this phenomenon, observing discrepancies as high as $\pm 10\,\%$ (turbulent pipe flow with $Re < 18\,000$). Although flow direction can be assessed by arranging two or more hot-film sensors with different orientations, the poor probe sensitivity in the transverse direction limits its uses to small angles; such sensor configuration is usually reserved for detecting shear reversal rather than its direction (Bruun, 1995).

The electrodiffusion (ED) method measures the electrolysis reaction rate between an electrode flush-mounted to a wall and a redox couple contained in the flow. The method is in many ways similar to the hot-film anemometry, where the local *mass* transfer is measured instead of the heat transfer; the theory behind the two techniques overlaps in several aspects. Still, one major asset of the ED is the lack of heat loss to the wall, especially profitable in low convection flows. In their review of the wall shear stress produced by an impinging jet, Phares *et al.* (2000) indeed concluded that the ED method provided 'the most accurate data close to the stagnation point', as the ones from hot-film probes suffered from strong discrepancies. While the cutoff frequency associated with ED probes is rather low, adequate post-processing can correct the attenuation and phase shift of the sensor response in highly unsteady flows. In particular, by considering that the reaction at the probe interface is governed by the convection–diffusion equation, one can take advantage of the so-called *inverse problem* to deal with the probe inertia. With this approach, the input wall shear rate is iteratively adjusted by solving the *direct problem* (i.e. the convection–diffusion equation) until the numerical data converge to the experimental ones. According to Rehimi *et al.* (2006), such method allows to accurately correct the probe response in high amplitude unsteady flows, including the case of shear reversal. The authors have demonstrated that this method outmatches every other post-treatments in two-dimensional flows. Considering its success, we propose an enhancement of the method adapted to three-dimensional flows able to capture the wall shear rate magnitude along with its direction in any unsteady flow when using a three-segment probe. The method is validated numerically for flows subjected to periodic and stochastic variations of the wall shear rate.

5.1.1 Basic principles of the electrodiffusion method

The ED method measures the electric current I between the working electrode (probe) and a large counter electrode (Fig. 5.1). This current depends on convective and molecular transfer of active species (O–R) contained in the fluid, which are consumed by a fast electrochemical

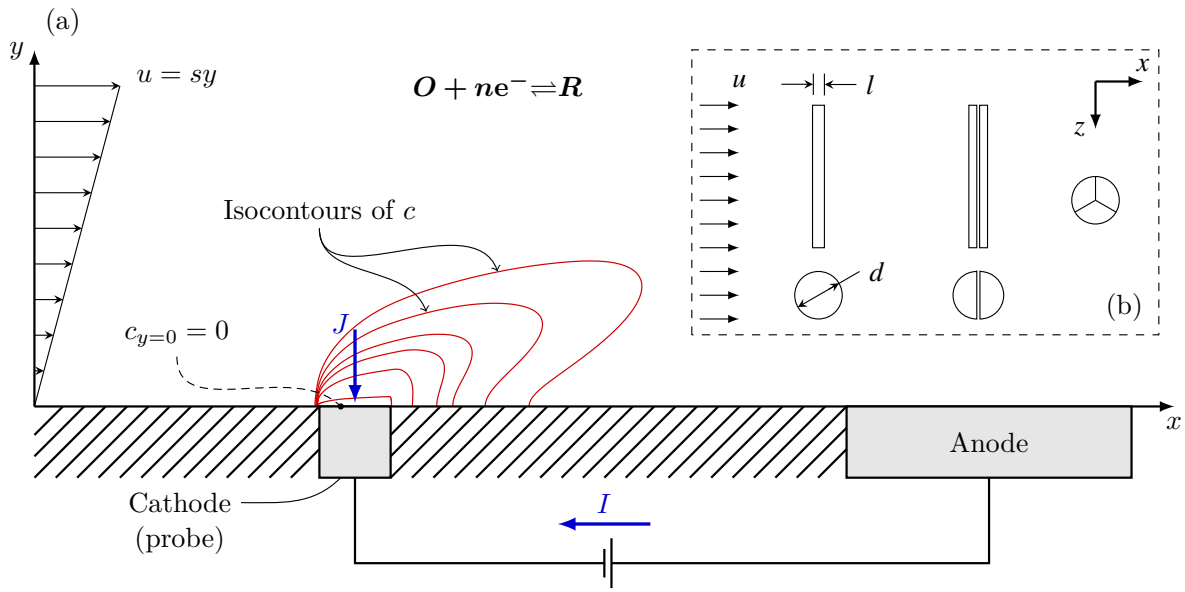


Figure 5.1 Principle of the electrodiffusion (ED) method. (a) Under constant voltage, a time varying current $I(t)$ flows throw the loop cathode-solution-anode, generating concentration gradients at the electrodes surface from C_0 in the bulk to a concentration $c = 0$ at the probe–solution interface. (b) Typical probes, viewed from above. From left to right: single, double (sandwich) and three-segment probes

reaction. This process is initiated by imposing a constant voltage between the anode and the cathode, where a concentration gradient gradually builds up at the electrodes–solution interface. The current flowing through the electrodes and electrolyte is then a function of the solution supply and is directly related to the wall shear rate s under steady conditions. When streamwise convection is dominant, the relation $s \propto I^3$ typically holds over a certain voltage range, namely when the *limiting current* condition is achieved (Hanratty et Campbell, 1996); the reaction then occurs at the maximal rate possible and the concentration at the probe surface is essentially null ($c_{y=0} = 0$). During this process, mass transfer is manifested by an exchange of electrical charges between the O–R species. While this transfer is normally assured by three methods (migration, diffusion and convection), a non-reactive or background electrolyte is usually added in excess to the solution so as to limit migration effects. The divergence of the resulting Nernst–Planck equation, which dictates the mass transfer at an electrode, results in the general convection–diffusion equation in absence of migration:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla c = D\nabla^2 c, \tag{5.1}$$

with D the diffusion coefficient. The relation between (5.1) and measures of $I(t)$ can also be derived from the Nernst–Planck equation. Under the assumption of a Nernst diffusion

layer [1], only the diffusion term remains and the flux or reaction rate J at the probe can be written as

$$J_{y=0} = \frac{I}{nFA} = -\frac{1}{A}\iint_A D\left.\frac{\partial c}{\partial y}\right|_{y=0} dA, \tag{5.2}$$

with n, F, A the number of electron(s) involved in the reaction, the Faraday number and the probe area, respectively. The reaction is then said to be diffusion-controlled.

The fundamental principle behind the ED method is that the reaction occurs very close to the wall owing to the thinness of the concentration boundary layer (also called *diffusion layer*) compared to the hydrodynamic one, so as to assume a linear velocity profile in the vicinity of the probe, $\boldsymbol{u} = \boldsymbol{s}y$, with $\boldsymbol{s}$ the two-dimensional wall shear rate. This is expected when the Schmidt number $Sc = \nu/D$ is large [2], where ν is the kinematic viscosity. While two electrodes are needed for the process to occur, only the half-reaction arising at the working electrode is here relevant. Still, to eliminate the effect of the counter electrode on the measured current, this electrode must be much larger than the probe. Since the cathode is generally chosen as the working electrode, it will hereby be referred to as the probe.

5.1.2 Common post-treatment methods

Various methods have been developed over the years to relate the measured current I from an ED probe to the wall shear rate s using assumptions on the flow or electrochemical conditions to model the process. When one only seeks a time averaged value, the Lévêque solution can be used, obtained from the analytical solution of the two-dimensional steady state convection–diffusion equation with linear velocity profile. The current can then be related to $s = \|\boldsymbol{s}\|$ through (5.2), where

$$I = k_{\mathrm{q}} s^{1/3}, \tag{5.3}$$

with $k_{\mathrm{q}} = 0.80755nFAC_0 l^{-1/3} D^{2/3}$ (Reiss et Hanratty, 1963) and l is the rectangular probe size (cf. Fig. 5.1b). Equation (5.3) is also known as the *quasi-steady method* and its validity is limited to slow time varying processes as the probe inertia is felt even at very low frequencies. The potential of ED probes to study wall turbulence first drove authors to develop models that would improve its frequency response, most of them based on the linearised turbulent fluctuations equation (among others: Mitchell et Hanratty (1966); Fortuna et Hanratty (1971); Mao et Hanratty (1985)). In particular, the ED probe transfer function derived by Deslouis *et al.* (1990) can accurately correct this capacitive effect over a broad frequency

1. At the electrode surface, a stagnant layer of thickness δ_c is assumed; in other words, convection is neglected in this area, resulting in a frozen diffusion layer (Bard et Faulkner, 2001).

2. A typical value encountered is $Sc \sim 1000$.

range; its usage is however limited to small fluctuations on the wall shear rate as a result of the linear theory approximation. The most popular post-treatment for large amplitude unsteady flows is the one developed by Sobolík *et al.* (1987), which was also derived a few years later in the work of Wang et Tarbell (1993). Commonly referred to as the *Sobolík method*, it basically corrects the quasi-steady wall shear rate s_q using its time derivative, namely

$$s_\mathrm{sob} = s_\mathrm{q} + \frac{2}{3}\chi s_\mathrm{q}^{-2/3}\frac{\mathrm{d}s_\mathrm{q}}{\mathrm{d}t}, \tag{5.4}$$

with $\chi = 0.80755^{-2}\pi^{-1}l^{2/3}D^{-1/3}$. Sobolík method is simple and very efficient to correct for the probe inertia, but it fails when dealing with flow reversal. Techniques have been developed to tackle this issue (in particular, the works of Pedley (1976) and Menendez et Ramaprian (1985)), but none of them can match the efficiency of the inverse method to evaluate the magnitude of the wall shear stress in high amplitude unsteady flows. When one also seeks the flow direction, either double or three-segment probes can be used (see Fig. 5.1b), while for the former sensitivity to transverse flow is poor and the use of the so-called 'sandwich' probe (as first developed by Son et Hanratty (1969)) is thus normally limited to flow reversal detection in low-frequency oscillating flows. Turbulent fluctuations in the transverse direction were also extensively investigated by modeling the two-segment probe response (see Sirkar et Hanratty, 1970; Tournier et Py, 1978; Deslouis *et al.*, 2004), but the linear theory again involved limits such usage to low-amplitude perturbations and none have demonstrated the ability to measure the instantaneous two components of the wall shear rate. The three-segment sensor was first developed to fill this gap (Wein et Sobolík, 1987). In steady or low-frequency flows, the probe can successfully detect local flow direction α with precision often better than 10° with an appropriate calibration (Sobolík *et al.*, 1990), but actually fails when unsteadiness is dominant due to the probe inertia (see Section 5.3.1). No direct method can currently correct the capacitive effect on each individual segment, thus explaining the three-segment sensor deficiency for instantaneous measurements. The inverse method was previously used with a sandwich probe by Mao et Hanratty (1992). The authors showed that shear reversal in a turbulent pipe flow is well captured by the method when using such a probe; however, no complementary measures were available to evaluate the actual precision of the method. Axial diffusion was also neglected in their model, hypothesis that is questionable near shear reversal phases and was blamed by the authors and others Labraga *et al.* (2002) to cause discontinuities.

In this work, the inverse method is revisited and numerically verified. Taking advantage of the three-segment probe, both magnitude and direction of the wall shear stress can be assessed in high amplitude unsteady flows. This is possible by considering a second unknown

in the inverse problem, which is the wall shear direction α. In the following section, the direct problem will first be introduced, followed by a description of the inverse problem and algorithm. In Section 5.3, simulated data are used to verify and validate the inverse process in flows of growing complexity, including the case of a three-dimensional turbulent flow. In the verification phase (Section 5.3.1), the inverse process and simulated data are performed using the same mesh, while different probe geometries are used in both data generation and inverse problem for validation (Sections 5.3.2 and 5.3.3). Impacts of the three-segment probe gap size and possible imperfections are also investigated.

5.2 Statement of the problems

5.2.1 Direct problem

The direct problem consists in solving the three-dimensional convection–diffusion equation with a parallel linear velocity profile $\boldsymbol{u} = \boldsymbol{s}y$. This problem is part of the inverse algorithm (see next section) and, in this work, is also used to generate numerical databases. In the presence of periodic flow fluctuations characterized by a frequency f, the dimensionless form of (5.1) can be written as

$$Sr\frac{\partial C}{\partial \tau} + SY\left(\sin\alpha\frac{\partial C}{\partial X} + \cos\alpha\frac{\partial C}{\partial Z}\right) = Pe^{-2/3}\left(\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2}\right) + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2}, \tag{5.5}$$

using the following dimensionless variables

$$\begin{gathered} X = \frac{x}{d}, \qquad Z = \frac{z}{d}, \qquad Y = \frac{y}{\delta}, \qquad \tau = tf, \\ Pe = \frac{\overline{s}d^2}{D}, \qquad Sr = \frac{fd^{2/3}}{\overline{s}^{2/3}D^{1/3}}, \qquad S = \frac{s}{\overline{s}}, \qquad C = \frac{c}{C_0}, \end{gathered} \tag{5.6}$$

where Sr, Pe will be respectively referred to the Strouhal and Péclet numbers, while $\delta = dPe^{-1/3}$ is the diffusion layer thickness under Nernstian approximation and $\overline{(\sim)}$ refers to a time averaged quantity over one period. The direct problem consists of solving (5.5) for given S and α using the domain and boundary conditions synthesized in Figs. 5.2(a,b). A mix Dirichlet–Neumann condition (referred to as 'inlet/outlet') is applied on the boundary $X^2 + Z^2 = D^2/4$, which imposes $\partial C/\partial n = 0$ when $\boldsymbol{u}\cdot\boldsymbol{n} > 0$ (outflow) and $C = 1$ otherwise. The dimensionless flux at the probe surface can be represented by the Sherwood number, defined as

$$Sh = \frac{Jd}{C_0 D} \tag{5.7}$$

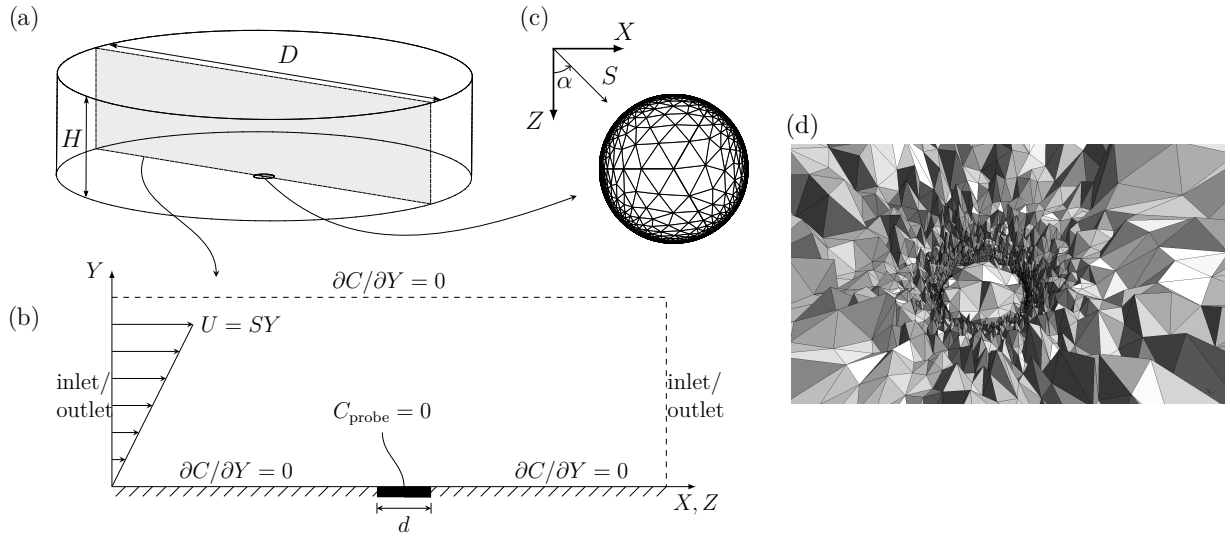


Figure 5.2 (a) Geometry and (b) boundary conditions used in the direct and the inverse problems. An overall diameter $D = 50d$ and height $H = 10d$ ensured that boundary conditions would not interfere with the probe reaction, even in cases of flow reversal. The inlet/outlet switches between Dirichlet ($C = 1$) and Neumann ($\partial C/\partial n = 0$) conditions depending on the flow direction α. (c) Discretized null-gap three-segment probe (mesh G0 in Section 5.3.2). Usage of small triangles near the probe edges are twofold: they help to manage the local strong concentration gradients, but they also serve for numerical stabilization of the problem without the need for a stabilization scheme. (d) Cut view in the $x - z$ plane of a typical mesh used. The three-segment probe is surrounded by the smallest elements

which becomes, using (5.2) and (5.6) for the segment $m \in \{0, 1, 2\}$ of a three-segment probe,

$$Sh_m = \frac{Pe^{1/3}}{A} \iint_{A_m} \left.\frac{\partial C}{\partial Y}\right|_{Y=0} dA \tag{5.8}$$

with A_m the area of the discretized segment m. Often, one is more interested in the more convenient modified Sherwood number, simply defined as $Sh^* = ShPe^{-1/3}$. The problem is solved using the open-source finite element equation solver `FreeFem++` (Hecht, 2012) with the use of P1 and P2 tetrahedral elements. Considering the discontinuity of the boundary conditions at the probe edges, anisotropic triangles were opted to discretize the probe surface (see Fig. 5.2c) which greatly reduced the computational cost and helped to stabilize the problem. In fact, solution of the convection–diffusion equation is subject to spurious oscillations at high Pe. Using elements of small size thus eliminates the need for classical upwinding techniques such as SUPG methods; those inevitably add diffusion contributions in the vicinity of the probe, which here is undesirable considering that diffusion is the actual reaction to measure.

The form of (5.5), being stretched in the y direction, also allowed the use of anisotropic tetrahedral elements. Such effect is observed in Fig. 5.2(d). Metrics associated with the concentration field surrounding the probe were used to evaluate the anisotropy parameters and construct the meshes, thanks again to `FreeFem++`. The time derivative was discretized using a backward differentiation formula (BDF) scheme of first and second orders.

5.2.2 Inverse problem

The time evolution of the *true* (indicated with the subscript 'exp') wall shear rate magnitude $S_{\text{exp}}(\tau)$ and direction $\alpha_{\text{exp}}(\tau)$ are to be found, with $Sh^*_{\text{exp}}(\tau)$ the only known information from, say, three-segment probe mass transfer measurements. For convenience, let $M_{m,i} = Sh^*_{\text{exp},m,i}$ be the Sh^* measured by segment m at time step i. The inverse method iteratively solves (5.5) by correcting the input values S_i and α_i from time step i to T until a certain tolerance `tol` is reached. Then, one can expect the numerical conditions to represent the experimental ones well and so $S_i = S_{\text{exp},i}$, $\alpha_i = \alpha_{\text{exp},i}$. One of the most important aspects in a multidimensional inverse problem is the choice of the correction to be applied, which will affect both the convergence speed and stability of the algorithm, but also the smoothness and accuracy of the solution. For the case being, three M_m measures are known at each time step and two variables are to be found. Hence, instead of using a classic Newton method, a Gauss–Newton algorithm is proposed. Let's consider the residual $r_m = M_m - Sh^*_m$ at time step i and the vector of unknowns $\boldsymbol{p} = [S, \alpha]$. Gauss–Newton algorithm will minimize the function $f = \sum r_m^2$ by using the following correction on vector $\boldsymbol{p}$:

$$\boldsymbol{p}^{(j+1)} = \boldsymbol{p}^{(j)} - (\mathbf{J}'\mathbf{J})^{-1}\mathbf{J}'\boldsymbol{r}^{(j)} \tag{5.9}$$

with

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} \dfrac{\partial r_0}{\partial S} & \dfrac{\partial r_0}{\partial \alpha} \\ \dfrac{\partial r_1}{\partial S} & \dfrac{\partial r_1}{\partial \alpha} \\ \dfrac{\partial r_2}{\partial S} & \dfrac{\partial r_2}{\partial \alpha} \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} \dfrac{\partial Sh^*_0}{\partial S} & \dfrac{\partial Sh^*_0}{\partial \alpha} \\ \dfrac{\partial Sh^*_1}{\partial S} & \dfrac{\partial Sh^*_1}{\partial \alpha} \\ \dfrac{\partial Sh^*_2}{\partial S} & \dfrac{\partial Sh^*_2}{\partial \alpha} \end{bmatrix} \tag{5.10}$$

the jacobian matrix for iteration j. $\mathbf{J}$ can be interpreted as the sensitivity matrix, that is the sensitivity of the segment Sherwood number Sh^*_m to a variation of the parameter p_n, $n \in \{0, 1\}$. One usually wants the magnitude of coefficients J_{mn} to be as large as possible to increase accuracy in the estimates and reduce the effect of measurement errors. Hence, some smoothing methods exist to modify the matrix $\mathbf{J}$ when dealing with noisy experimental data so as to maximize the product $\mathbf{J'J}$ (Ozisik, 2000) or sometimes to remove singular values that

make **J** ill-conditioned, using for instance SVD or other filtering methods (Shenefelt *et al.*, 2002; Beck et Woodbury, 2016). Nevertheless, such treatments were not needed and are not employed in the present paper.

The traditional method to evaluate the sensitivity coefficients J_{mn} in the one-dimensional inverse problem (i.e. when only the wall shear rate magnitude S is sought) is with the finite difference approximation (see for example Rehimi *et al.*, 2006)

$$\frac{\partial Sh^*}{\partial S} = \frac{Sh^*(S+\epsilon S) - Sh^*(S-\epsilon S)}{2\epsilon S}, \tag{5.11}$$

with $Sh^*(S+\epsilon S)$ the Sherwood number under a wall shear rate $(1+\epsilon)S$, with $\epsilon \sim 1\times 10^{-5}$. Considering the present two-dimensional problem with $N=2$ unknowns, this process would require to solve (5.5) $2N$ additional times. A procedure also encountered in inverse problems is the use of sensitivity equations derived from the direct problem (Ozisik, 2000), obtained here by differentiating (5.5) with respect to S and α, namely

$$Sr\frac{\partial C_1}{\partial \tau} + SY\left(\sin\alpha\frac{\partial C_1}{\partial X} + \cos\alpha\frac{\partial C_1}{\partial Z}\right) = Pe^{-2/3}\left(\frac{\partial C_1}{\partial X} + \frac{\partial C_1}{\partial Z}\right) + \frac{\partial C_1}{\partial Y} - Y\left(\sin\alpha\frac{\partial C}{\partial X} + \cos\alpha\frac{\partial C}{\partial Z}\right) \tag{5.12a}$$

and

$$Sr\frac{\partial C_2}{\partial \tau} + SY\left(\sin\alpha\frac{\partial C_2}{\partial X} + \cos\alpha\frac{\partial C_2}{\partial Z}\right) = Pe^{-2/3}\left(\frac{\partial C_2}{\partial X} + \frac{\partial C_2}{\partial Z}\right) + \frac{\partial C_2}{\partial Y} - SY\left(\cos\alpha\frac{\partial C}{\partial X} - \sin\alpha\frac{\partial C}{\partial Z}\right), \tag{5.12b}$$

with $C_1 = \partial C/\partial S$ and $C_2 = \partial C/\partial\alpha$. The sensitivity coefficients of (5.10) are accordingly derived by differentiating (5.8) and thus

$$J_{mn} = \frac{1}{A}\iint_{A_m} \left.\frac{\partial C_{n+1}}{\partial Y}\right|_{Y=0} dA. \tag{5.13}$$

Such a procedure is in many ways more appealing than the finite difference one considering that the computation of N additional equations is required instead of $2N$ and no parameter ϵ needs to be defined. The major benefit still arises from the fact that (5.12a) and (5.12b) are actually the same equation as (5.5) added with a known source term, given that C was already solved for. Hence, no matrix reconstruction is needed by the finite element solver when solving (5.12), reducing computation time of each sensitivity equation by a factor ~ 10.

The following iterative procedure is then proposed, given the starting guesses $\boldsymbol{p}^{(0)}$ from, for instance, the quasi-steady solutions. For each time step $i < T$,

(i) solve the direct problem (cf. Section 5.2.1) for time τ_i using $S = p_0^{(j)}$ and $\alpha = p_1^{(j)}$ and compute f;

(ii) if $f <$ `tol`, return to (i) for time τ_{i+1}; otherwise

(iii) solve the sensitivity equations (5.12) and compute $\mathbf{J}$.

(iv) evaluate the new guesses $\boldsymbol{p}^{(j+1)}$ with (5.9) and return to (i) for iteration $j + 1$.

Note that for stabilization purposes, it is preferred to solve the first time step in steady condition ($Sr = 0$). Convergence speed is also very sensitive to the initial guesses, especially for α, and the quasi-steady estimates are often not the best choices at high Sr number. For the one-dimensional inverse problem, Rehimi *et al.* (2006) suggest supposing that $S(\tau) = a\tau^2 + b\tau + c$ on a short time interval and estimate the coefficients using the Levenberg–Marquardt method to ensure the start-up stability. For the present case, a line search method is coupled to the Gauss–Newton algorithm to ensure boundness of the process. When such approach is not sufficient (for instance, in some high-frequency cases), the safer but costlier conjugated gradient method is used instead of (5.9) to evaluate the corrections on $\boldsymbol{p}$. Most numerical methods and algorithms were implemented using procedures found in Press *et al.* (2007). Moreover, a zero gradient verification is often preferred for the convergence criterion of step (ii), especially for high-frequency cases where the sensitivity coefficients are damped. As the main steps of the inverse process are very similar to the one-dimensional case, the reader is referred to other exhaustive sources for more details (see Mao et Hanratty, 1991a; Maquinghen, 1999; Ozisik, 2000; Rehimi *et al.*, 2006). However, note that compared to most previous methods, a few iterations (denoted with superscript (j)) per time step are performed. Overall, this ensures better convergence properties.

5.3 Results and discussion

Verification of the direct problem is first performed by analyzing the stationary case, i.e. equation (5.5) with $Sr = 0$. Considering a perfectly circular three-segment probe with negligible gaps (see Fig. 5.2c) and equivalent length $l_{\mathrm{eq}} = 0.81356d$ (Hanratty et Campbell, 1996), the non-dimensional variant of the Lévêque solution (5.3) is formulated as

$$Sh_{\mathrm{q}}^{*} = k^{*} S^{1/3}, \tag{5.14}$$

with $k^{*} = 0.86505$, which value is expected when the tangential and transverse diffusion terms in (5.5) are negligible, that is for high Péclet numbers. As observed in Fig. 5.3,

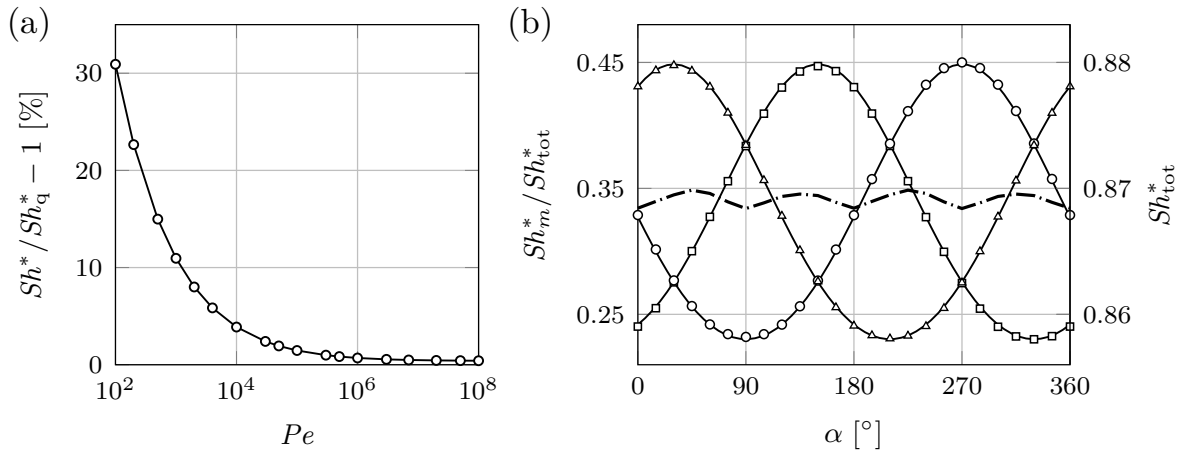


Figure 5.3 Verification of the direct problem. In (a), solution of the stationary case for increasing values of Pe with $S = 1$ indicates that discrepancies with Lévêque solution (5.14) is below 1.3 % (0.5 % using P2 tetrahedral elements) for $Pe > 5 \times 10^6$. (b) The directional characteristics (marks, where symbols refer to distinct segments) of the three-segment probe shown in Fig. 5.2(c) are compared to the modeled ones (solid lines, see Wein et Sobolík (1987)). Also shown is the variation of the total Sherwood number $Sh^*_{\mathrm{tot}} = \sum Sh^*_m$ over a complete rotation of the probe (dashed–dotted line), which is below 0.1% of the mean value

discrepancies with (5.14) is negligible when $Pe \gtrsim 1 \times 10^6$. To assess the direction α using a three-segment probe, its directional characteristics are required, obtained when performing the so-called directional calibration (as modeled by Wein et Sobolík (1987)). Under a steady flow, the probe signal is recorded while being gradually rotated; then, each segment relative signal $Sh^*_m/Sh^*_{\mathrm{tot}}$ can be represented with a Fourier series expansion in α to deal with the probe geometry and imperfections. Such calibration was performed numerically to verify the directional characteristics of the discretized three-segment probe. Only small deviations are observed in Fig. 5.3(b) with the modeled characteristics of the perfect sensor (Wein et Sobolík, 1987).

5.3.1 Verification of the inverse problem

The use of the null-gap three-segment probe only being theoretical, a sensor with small gaps (see Fig. 5.9a) is used in the following section. Nevertheless, the use of the null-gap geometry in the previous section was necessary for verification purposes, considering that the Lévêque solution with $k^* = 0.86505$ is valid for a perfect disk. Note that the mesh generation procedure was the same for all geometries.

Verification of the inverse algorithm was accomplished by first simulating data using the direct

Table 5.1 Parameters used in the simulations, as per equations (5.15)

Case	Sr	β_S	β_α	α_0	ϕ
0	1.5	0.5	0	$\pi/3$	0
1	0.1	1.5	0	$\pi/3$	0
2	1.5	1.5	0	$\pi/3$	0
3	1.5	0.5	$\pi/4$	$\pi/2$	$\pi/6$
4	2	0.9	$2\pi/3$	$\pi/2$	$\pi/6$
5	0.5	0.5	$\pi/4$	$\pi/2$	$\pi/6$

problem for various flow parameters and then applying the inverse procedure of Section 5.2.2. Test cases are here based on the periodic fluctuation of both S and α, as per the following equations:

$$S(\tau) = 1 + \beta_S \sin(2\pi\tau), \tag{5.15a}$$

$$\alpha(\tau) = \alpha_0 + \beta_\alpha \sin(2\pi\tau + \phi). \tag{5.15b}$$

Simulations parameters are detailed in Table 5.1. For all cases, a Péclet number $Pe \to \infty$ was used to offer the best comparison with other post-treatment methods since all are based on the Lévêque solution. P1 (linear) tetrahedral elements instead of P2 were employed for the tests. This does not affect the results as the same mesh and element type are used in both direct and inverse problems. Main drawback concerns the sensitivity equations, resulting in a less sensitive process and may thus imply one or two additional iterations for convergence; still, this greatly reduces computational costs ($\sim$ 10 times faster). Note that the same frequency was used for $S(\tau)$ and $\alpha(\tau)$ in (5.15) to simplify the first step verification. This, however, does not limit the proposed algorithm as it will be exposed in Section 5.3.3.

The inverse method efficiency and convergence speed can first be appreciated in Fig. 5.4 for the constant direction, moderate shear fluctuation amplitude and high-frequency case 0, where only a few time steps are needed to converge on both the imposed values of S and α. Note that only part of the time steps used in the simulations are shown in all figures. In Fig. 5.4(b), one can notice that more time steps are needed for Sh_0^* to properly converge; being in the wake of the other two segments, the sensitivity coefficients related to this segment are lower. While this affects both sensitivity on S and α, the latter is more apparent considering the constant direction.

Since all post-treatment methods give good results for low Sr without shear reversal, the

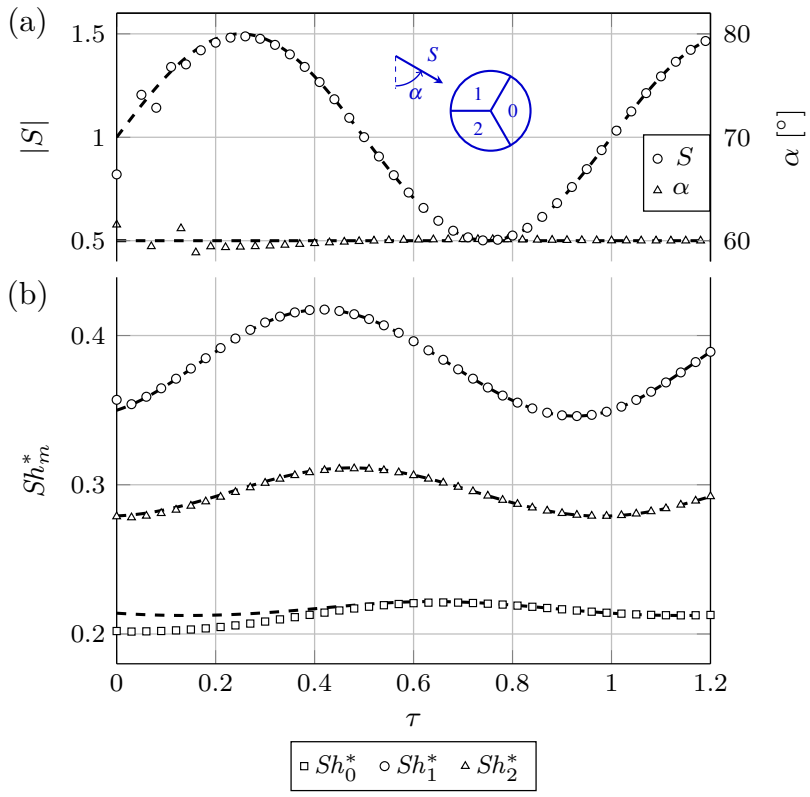


Figure 5.4 Results of the inverse algorithm for constant direction α, moderate amplitude and high-frequency fluctuation on S (case 0, see Table 5.1). (a) After less than one period, S and α converge on the true values (indicated by the dashed lines). Slower convergence for α could be explained by the lesser sensitivity of the back segment; convergence of both α and Sh_0^* appear in fact to be linked as observed in (b)

following examples are limited to flows exhibiting either high Sr, shear reversal, periodic fluctuation of α ($\beta_\alpha \neq 0$) or a combination of the former, namely situations where both quasi-steady and Sobolík solutions fail. Also note that for the remainder of the paper, only results from the last period of periodic processes are shown, after which no further convergence improvements were observed. Cases 1 and 2 (Fig. 5.5) involve shear reversal in low- and high-frequency ranges, respectively. Although Sobolík method theory is limited for flows with constant direction, the combine information of S_{sob} and α_{q} actually suggests the presence of shear reversal, yet suffering from an appreciable phase lag as observed in Fig. 5.5(a). At higher Sr however, the quasi-steady method cannot detect at all the reversal period and no valuable information is neither obtained from S_{sob} under such conditions (Fig. 5.5b). One can notice that S_{inv} and α_{inv} converge almost perfectly on the imposed fluctuations in both cases.

Evolutions of $Sh_m^*(\tau)$ and $J_{m0}(\tau)$, the S sensitivity coefficients, are plotted in Fig. 5.6. A rule

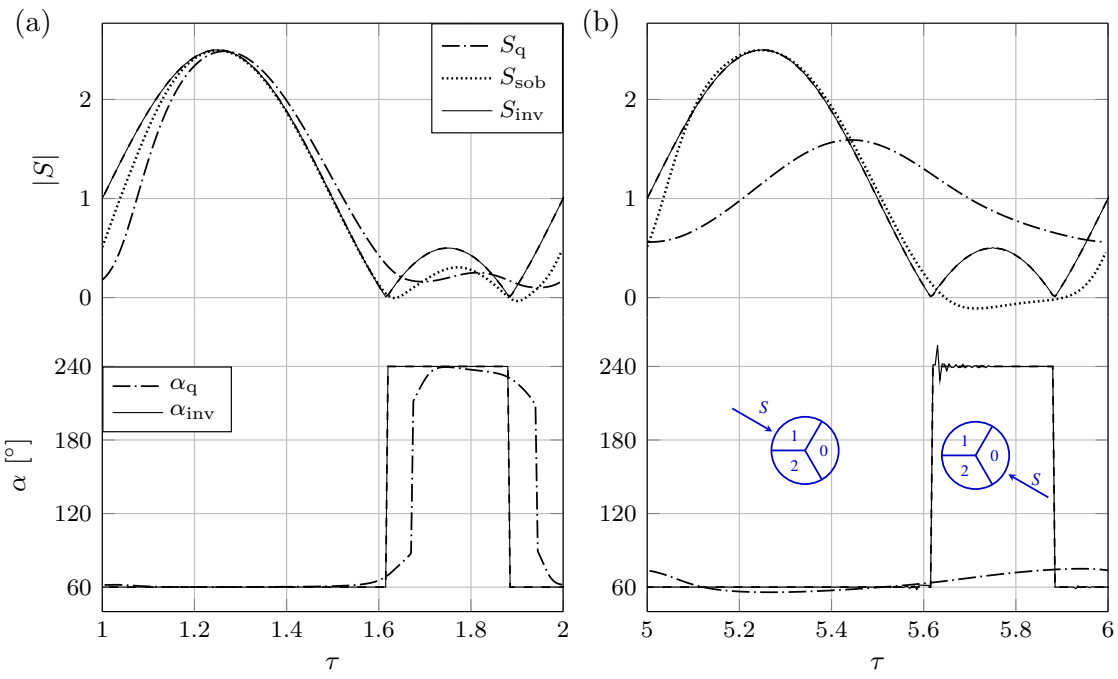


Figure 5.5 Comparison of different post-treatment methods in two flows involving shear reversal. (a) In the low-frequency case 1 (see Table 5.1), the combined information of S_{sob} and α_q still gives a decent approximation of the true wall shear rate, although the reversal period is out of phase; (b) at larger Sr (case 2), no valuable information can be retrieved from S_{sob} in the reversal period, while the quasi-steady method α_q does not detect at all the shear reversal. In both cases, the inverse method shows almost perfect results. Only the last period of the inverse process is shown; two or more periods are sometimes needed for a suitable convergence depending on cases and initial guesses. Note that only the magnitude of S is shown for visualization; when S becomes negative (in cases with $\beta_S > 1$), a 180° offset is added to α

of thumb is that the larger the Sh_m^*, the higher this segment sensitivity will be, at least for quasi-steady processes. This is indeed observed for case 1 (Fig. 5.6a): as the shear reverses, the signal on the back segment Sh_0^* becomes the largest and so does its sensitivity magnitude $|J_{00}|$, which was essentially null for $\tau \lesssim 1.6$. In the high-frequency case however (Fig. 5.6b), the duration of the shear reversal is too short considering the inertia of the process; the lagged sensitivity $|J_{00}|$ only slightly increases and Sh_0^* always stays with the lowest signal. Note that a similar trend is expected for the α sensitivity coefficients J_{10} and J_{12} (not shown here). Also notice the large drop of sensitivity between the two cases of Fig. 5.6 (close to a factor ~ 10), affecting the inverse process on both its stability and convergence speed as more iterations and time steps are needed for Sh_m^* to converge on M_m. As a matter of fact, the more stable conjugated-gradient algorithm is required to procure the results shown for case 2; otherwise, oscillations like those observed on α after shear reversal (Fig. 5.5b) are more frequent and

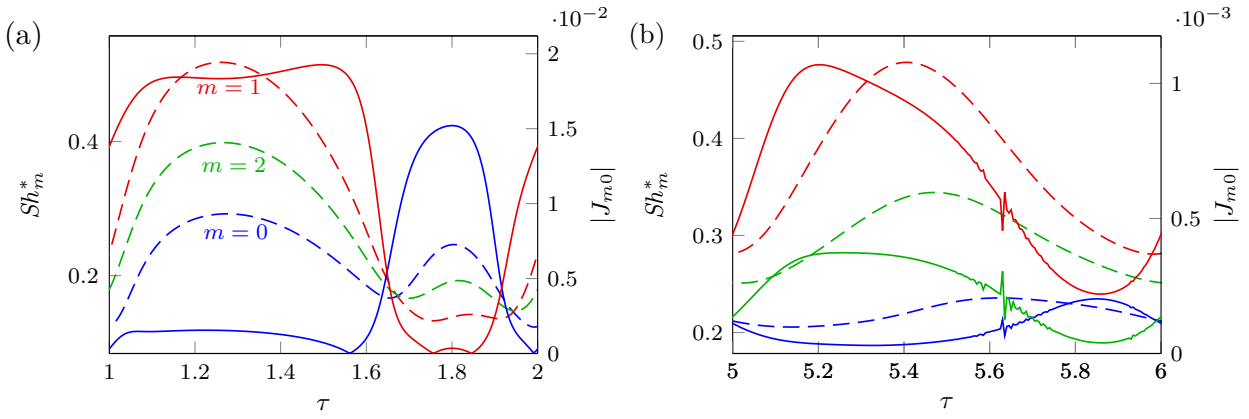


Figure 5.6 Sh_m^* (dashed lines) and absolute values of the S sensitivity coefficients J_{m0} (solid lines) for (a) case 1 and (b) case 2. Refer to Fig. 5.5 for segments numbering. J_{10} is not shown in (a) for visualization purposes

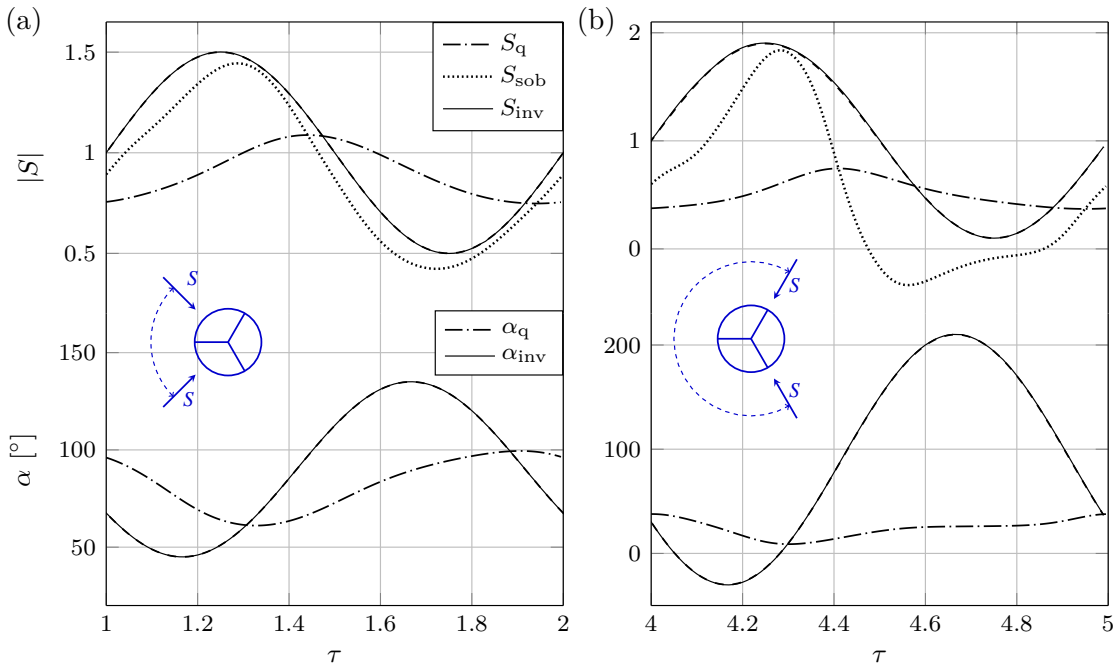


Figure 5.7 Large amplitude, high-frequency fluctuations on both magnitude S and direction α of the imposed wall shear rate, for (a) case 3 and (b) case 4 (see Table 5.1). Dashed lines indicate the true constraints

intense. The inverse method is also flawless when involving large amplitude fluctuations on both S and α at high-frequency, as observed in Fig. 5.7 for cases 3 and 4. Here again, quasi-steady and Sobolík methods exhibit strong departure from the imposed shear rate. Note that for the constant direction cases 1 and 2, the use of the three-segment probe is not essential as the problem becomes one-dimensional; the traditional sandwich probe (see Fig. 5.1b) is more convenient for treating shear reversal cases. Results shown although demonstrate that the proposed inverse method can deal with a very steep variation of the unknown variables such as the $\alpha(\tau)$ step-like signals in cases 1 and 2.

It is interesting to note that in both cases 3 and 4 the time average $\overline{S_\mathrm{q}}$ is shifted from the expected unitary value ($\overline{S_\mathrm{q}} \neq 1$). Recalling (5.14), S_q is calculated from the total Sherwood number $Sh^*_\mathrm{tot} = \sum Sh^*_m$. As a result of the probe imperfections, the value of k^* for mesh G1 (cf. Fig. 5.9a) differs from the theoretical null-gap geometry and is obtained by solving the stationary direct problem with $S = 1$ and $Pe \to \infty$, where in such case $k^* = Sh^*_\mathrm{tot}$. Although Fig. 5.3(b) exposes a slight variation of Sh^*_tot with α for a constant shear rate, this variation is not sufficient to explain the shift of $\overline{S_\mathrm{q}}$ as seen in Fig. 5.7. The offset actually arises considering that the ratio

$$\zeta = \overline{Sh^*}/Sh^*_\mathrm{std} < 1 \tag{5.16}$$

for the unsteady case, with Sh^*_std the steady Sherwood number measured under corresponding conditions (i.e. same Pe and α_0, $Sr = 0$). Fig. 5.8 exposes this effect for a constant β_S value in (a). At low Sr, ζ is only slightly affected by variation of β_α whereas it largely depends on β_S as observed in (b); values at $Sr \to 0$ actually tend to the one-dimensional case ($\beta_\alpha = 0$)

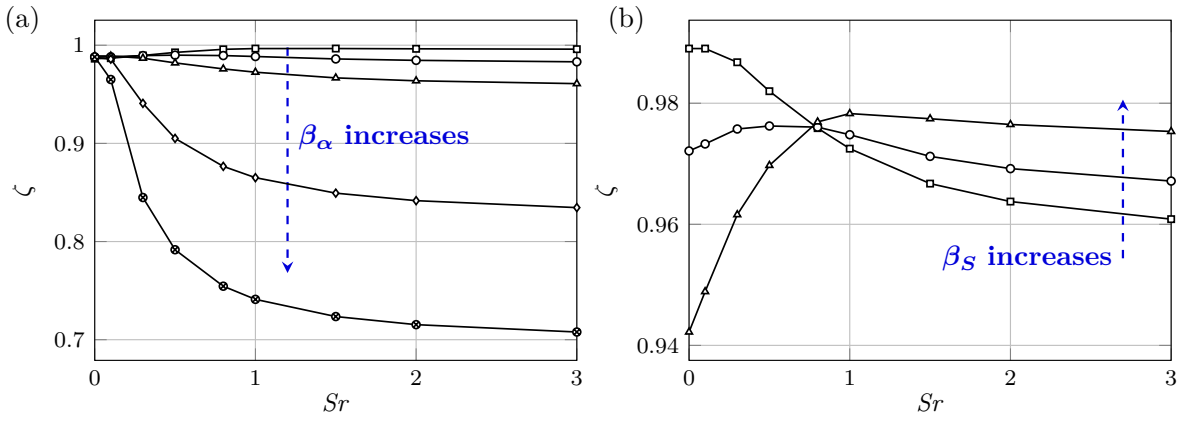


Figure 5.8 Variation of $\zeta = \overline{Sh^*}/Sh^*_\mathrm{std}$ with Sr for a constant amplitude (a) $\beta_S = 0.5$ and (b) $\beta_\alpha = \pi/4$. Values are $\beta_\alpha = \{\pi/12, \pi/6, \pi/4, \pi/2, 2\pi/3\}$ and $\beta_S = \{0.5, 0.7, 0.9\}$ in (a) and (b), respectively. ζ is calculated using the time averaged Sh^* over one period of the solicitation

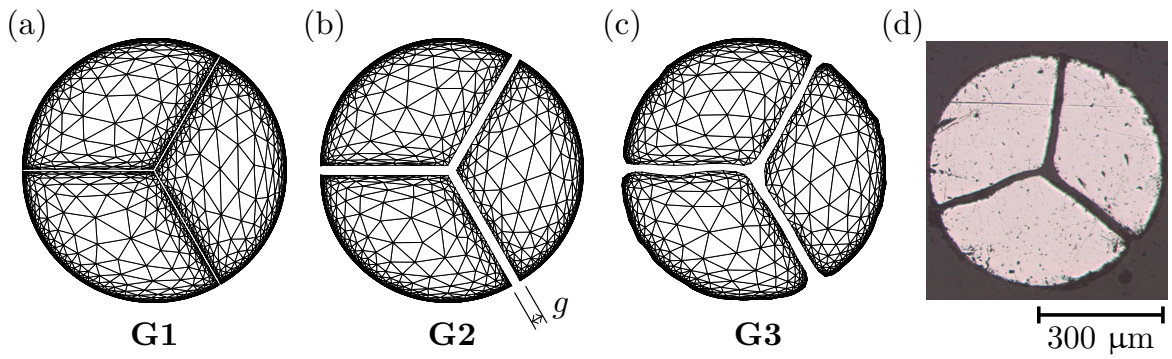


Figure 5.9 Different geometries used to discretize the three-segment probe. (a) Smallest gap with a size equivalent to $g/4$; (b) largest gap, with the size g close to the real probe G3; (c) discretization of the real probe geometry, which was shaped using a contour detection algorithm on (d), the optical microscope photograph of a real three-segment probe. All meshes were constructed so the total area of the three segments would respect $A = \pi/4$, that is the area of the equivalent null-gap probe G0 (Fig. 5.2b) with $d = 1$

and are indeed fairly close to the ones obtained by Kaiping (1983) for the one-dimensional shear rate case. For increasing values of β_α however, the ζ evolutions with Sr considerably differ since they do not converge to a value $\zeta = 1$ at high Sr [3] as observed by Kaiping: the ratio decreases for larger β_α and smaller β_S. With $\zeta \neq 1$, the steady calibration parameter k^* then leads to an erroneous mean wall shear rate $\overline{S_\mathrm{q}}$, altering both $S_\mathrm{q}(\tau)$ and $S_\mathrm{sob}(\tau)$ as shown in Fig. 5.7. Note that while those results stand for the geometry of Fig. 5.9(a), the trends are similar for the null-gap geometry. ζ also varies only slightly with α_0.

5.3.2 Validation and influence of the probe discretization

When treating experimental data from a real three-segment sensor, one could use the actual geometry of the probe in the mesh construction in order to procure simulations as faithful as possible. Yet, taking into account the surface imperfections brings additional computational costs, both in the time committed to mesh generation and in the simulations themselves as more elements may be needed for a proper discretization. Respect of the gaps dimension in the simulated geometry might actually be the most important element in the process. To verify that statement, the two meshes of Figs. 5.9(b,c) were generated, namely G2 and G3. The geometry of the former consists in a perfect three-segment probe with regular gaps of dimension g close to that of a real sensor; the latter is the real geometry itself, retrieved from a contour detection on an optical microscope photograph of the sensor (Fig. 5.9d). To

3. Tested up to $Sr = 50$ for the case $\beta_S = 0.5$, $\beta_\alpha = \pi/4$, where $\zeta = 0.957$.

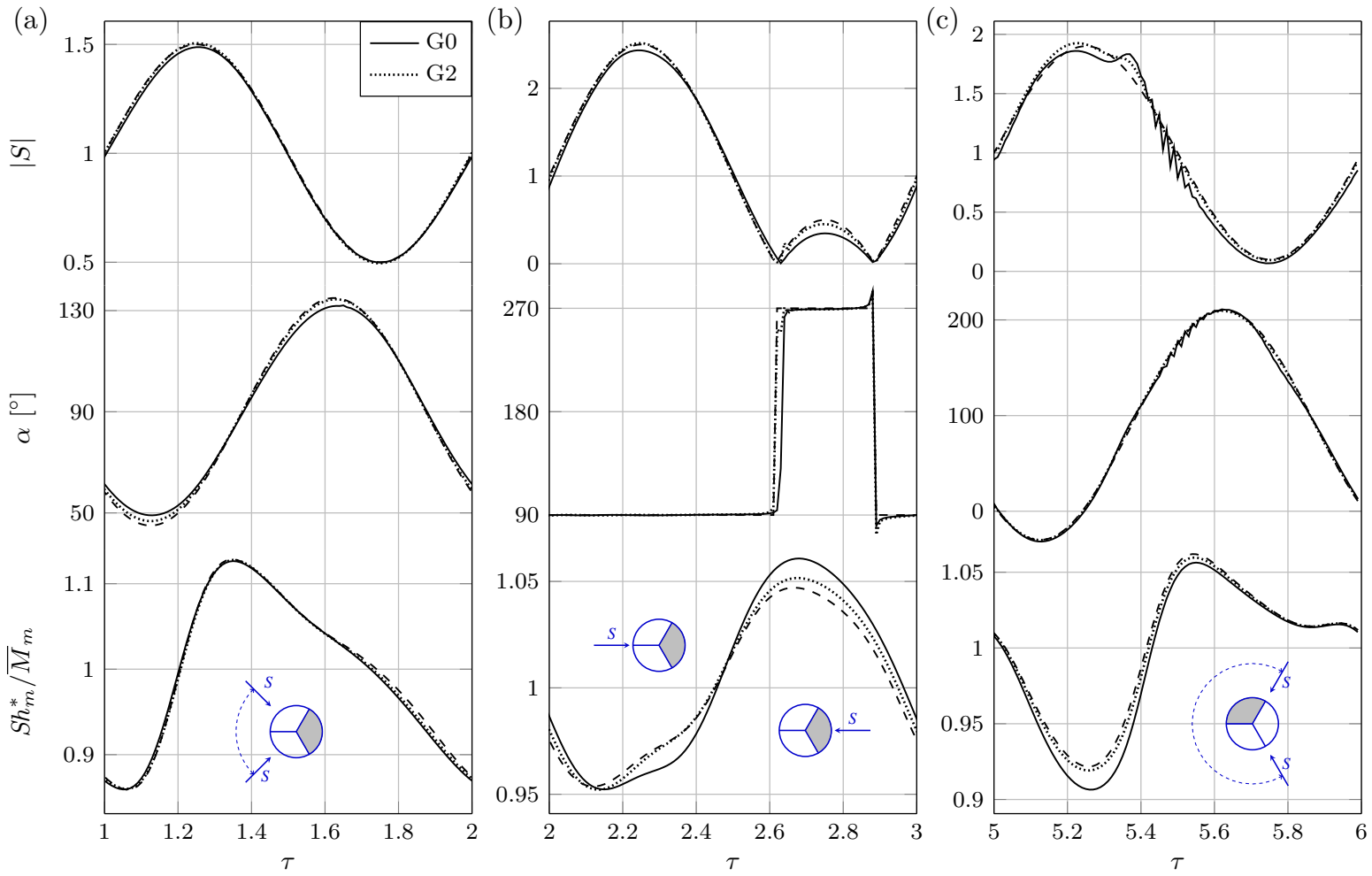


Figure 5.10 Effect of the probe geometry on the inverse method results for (a) case 5, (b) case 2 with $\alpha_0 = \pi/2$ and (c) case 4, here with $Pe = 1 \times 10^5$. In all cases, results using G2 are better than with the null-gap geometry G0, yet offering a decent estimate of the true wall shear rate (illustrated with dashed lines). Phase lag and amplitude attenuation are nonetheless apparent, especially in the shear reversal period of case 2, justified in particular by the form of the filled segment Sh number (bottom figures). Using geometry G2 with large gaps, the convergence is considerably better. Note that the same effect occurs on the other segments, yet at a lesser extent. Results using G1 (not shown here) are very similar to those with G0

simulate experimental conditions, mesh G3 was therefore used in the manner of Section 5.3.1 to generate M_m data using the direct problem for three different cases. Both meshes G0 [4] and G2 were then used separately in the inverse problem to obtain the corrected time evolutions of S and α corresponding to the simulated M_m. To account for the differences in k^* exposed in Section 5.3.1 for the different meshes, a scaling factor of the form $k^*_{\mathrm{G}i}/k^*_{\mathrm{G3}}$, $i \in \{0, 2\}$, was applied on the M_m data. Using this procedure, the impact of the geometry is inspected.

Results for cases 5, 2 and 4 (here with $\alpha_0 = 0$ and $Pe = 1 \times 10^5$, see Table 5.1) are shown in Fig. 5.10. In all three examples, the mesh with realistic gaps G2 provides a better representation of S and α, in particular for case 2 near the shear reversal. As the proposed inverse method is based on minimizing the residuals r_m (see Section 5.2.2) of all three segments, a compromise is unavoidable when the time evolution of the experimental data M_m is complex like the one of case 2, characterized by two adjacent inflection points as seen in the lower Fig. 5.10(b). The absence of gaps in G0 cannot allow such evolution for the back segment Sherwood number and the best fit obtained is largely distorted. The convergence is somewhat better for the two other segments (not shown here), hence providing decent results for S and α. The major drawback is the phase lag and damping especially observable in the shear reversal period. With appropriate gaps, $Sh^*_m(\tau)$ using G2 is remarkably more accurate, providing very good results for both S and α even in the intense flow conditions of case 4 (Fig. 5.10c). The use of G0 here brings additional stabilization issues, manifested by sharp oscillations on S and α. Thus, for a real three-segment geometry without excessive imperfections like the one of Fig. 5.9(d), a perfect geometry with appropriate gaps would be an adequate trade-off between meshing complexity and inverse method results, although a mesh modeled on the actual geometry like G3 is always preferred when achievable. Still, Fig. 5.10(a) also illustrates that discrepancies using the null-gap geometry G0 could still be acceptable for many applications involving a two-dimensional oscillating shear rate.

5.3.3 Validation in a non-periodic flow

While previous test cases were limited to periodic flows, the proposed inverse method can deal with stochastic variations of the wall shear rate magnitude and direction as those observed in turbulent flows. Hence, a direct numerical simulation (DNS) was performed [5] to generate a velocity database for the three-dimensional turbulent channel flow. The time evolution of the two-component wall shear rate was extracted at an arbitrary wall position (see Fig. 5.11)

4. As the inverse method results for meshes G0 (see Fig. 5.2c) and G1 are very similar, the latter are not presented. Also note that if one would use mesh G3 in the inverse problem, nearly perfect results are expected as the same mesh would be used in both direct and inverse problems.

5. The finite difference solver `Incompact3d` (Laizet et Lamballais, 2009) was used for the DNS.

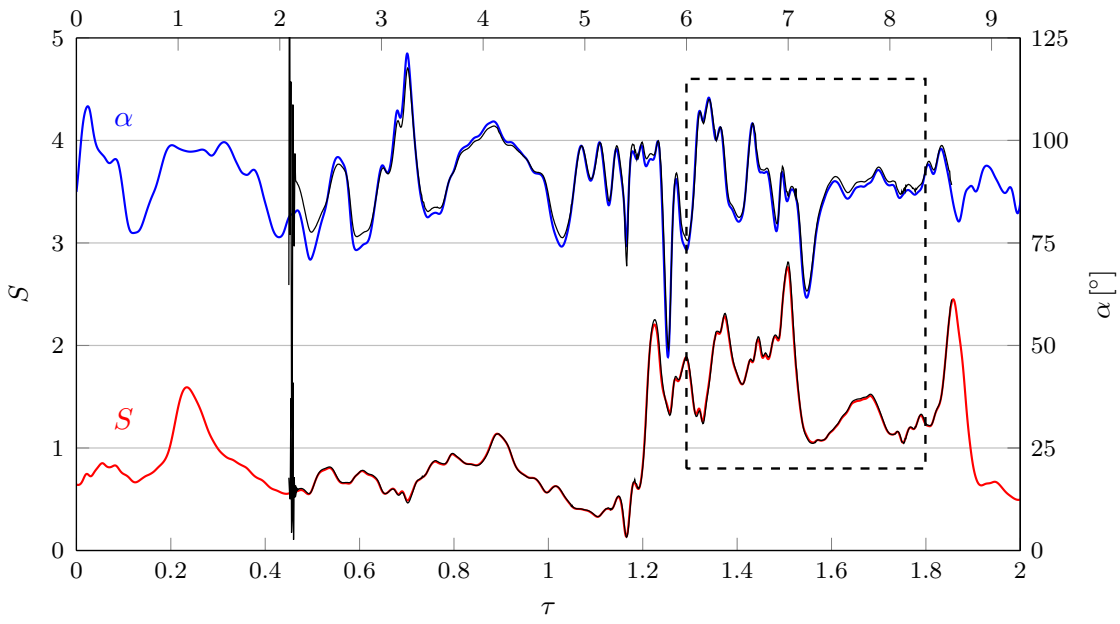


Figure 5.11 Two-component wall shear rate extracted from a DNS database of a turbulent Poiseuille flow at $Re = 10^4$ (colored curves). Results of the inverse method for the high Pe case are illustrated with thin black lines for both S and α. A close-up of the dashed rectangle region is presented in Figs. 5.12 and 5.13. Values for the dimensionless time $\tau = t^*\overline{s^*}Pe^{-1/3}$ on the top and bottom abscissae concern the low and high Pe cases, respectively

and then used to solve the direct problem and generate M_m data for this turbulent flow.

Instead of using a Strouhal number in the convection–diffusion and sensitivity equations, the dimensionless time in (5.6) is replaced with

$$\tau = t\overline{s}Pe^{-1/3} \tag{5.17}$$

or, using the dimensionless DNS variables (here represented with starred coefficients),

$$\tau = t^*\overline{s^*}Pe^{-1/3}. \tag{5.18}$$

With such a parameter, a unitary coefficient then replaces the Strouhal number in front of the time derivative of equations (5.5) and (5.12) (equivalent to $Sr = 1$). s^* was evaluated using finite difference approximation in the viscous sub-layer where a linear velocity profile was observed. Averaging was performed over the entire period shown in Fig. 5.11 to evaluate $\overline{s^*}$. One can notice from (5.18) that a higher Pe will decrease the resulting time step $\Delta\tau$ for the ED analysis, thus creating a more intense case for the inverse method considering its convergence properties are lessened with smaller time steps (Ozisik, 2000). Two values for

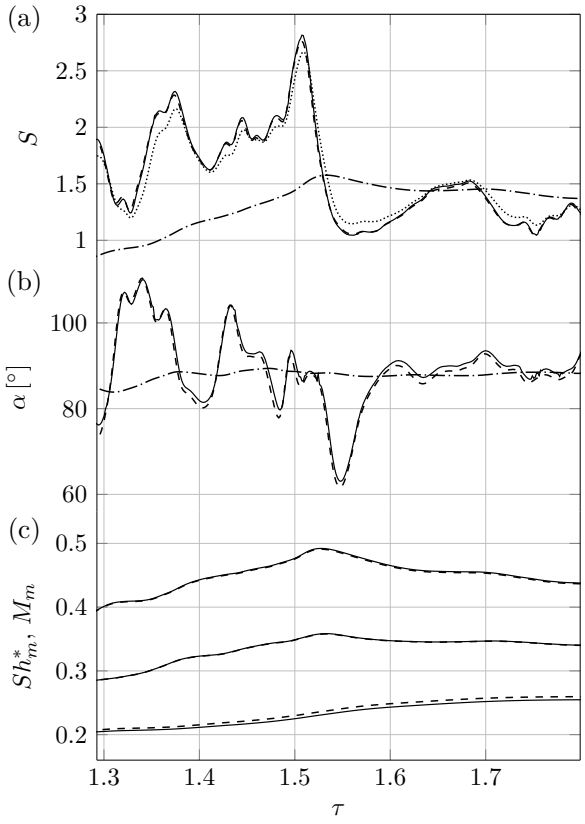


Figure 5.12 Results in the close-up region of Fig. 5.11 for $Pe = 1.2 \times 10^7$. Dashed lines indicate the true constraints

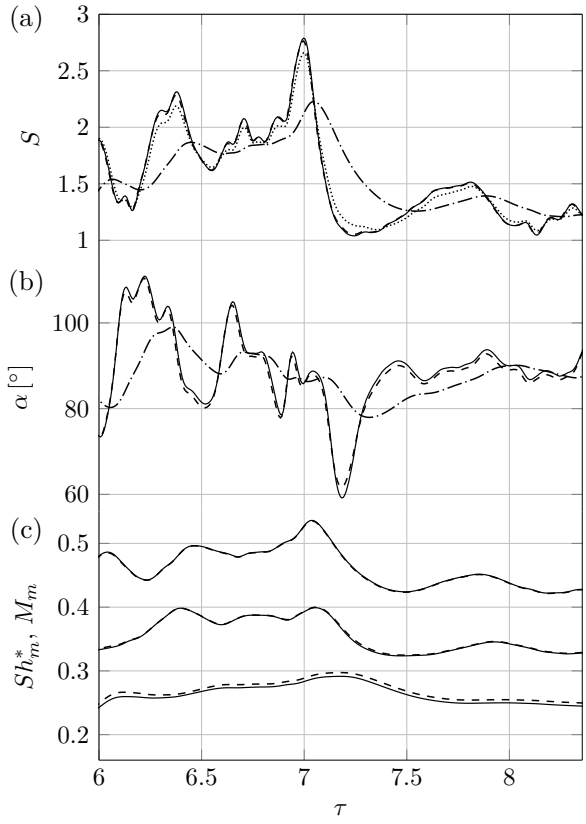


Figure 5.13 Results using the same constraints as in Fig. 5.12, but for $Pe = 1.2 \times 10^5$. See Fig. 5.12 for legend. Dashed lines indicate the true constraints

the Péclet number were tested, namely $Pe = 1.2 \times 10^7$ and $Pe = 1.2 \times 10^5$, which respectively correspond to mean wall shear rates of $36\,000\,\mathrm{s}^{-1}$ and $360\,\mathrm{s}^{-1}$ provided that the typical values $d = 0.5\,\mathrm{mm}$ and $D = 7.5 \times 10^{-4}\,\mathrm{mm}^2\,\mathrm{s}^{-1}$ are used (Sobolík *et al.*, 1998). The Reynolds number $Re = Uh/\nu$ used in the DNS was $Re = 10^4$, with U, h the average cross-sectional velocity and the channel height, respectively.

To simulate experimental ED conditions, a procedure similar to that of Section 5.3.2 was adopted. The M_m data were first generated using mesh G3 while G2 was used to solve the inverse problem. One could see this additional complexity as the inevitable geometrical discordance between a real probe and the discretized one, considering for instance inactive areas on the sensor. Overall results for the high Pe case are presented in Fig. 5.11 (where the inverse problem was started at $\tau = 0.45$) while Figs. 5.12 and 5.13 show a close-up view on the results for $Pe = 1.2 \times 10^7$ and $Pe = 1.2 \times 10^5$, respectively. As per (5.18), the corresponding

dimensionless time is Pe dependent; thus, the same DNS data is here characterized by two time evolutions (top and bottom abscissae in Fig. 5.11). A very good agreement is observed with the imposed wall shear rate for both S and α in the two cases. The unstable character of the inverse method is well illustrated in Fig. 5.11 by the large oscillations in the first tenth time steps, where boundness is ensured using a line search method; otherwise, the process would likely diverge. Time step size is also critical, where larger steps tend to stabilize the process and damp the oscillations. Only one out of four time steps from the simulated turbulent data was indeed used, which could explain the small discrepancies with the imposed solicitations. Note that the distinct meshes used in the data generation and inverse problem also inevitably introduces a certain degree of error, which most likely cannot be accounted for. This may also explain why in Fig. 5.12(c) an offset is observed between the lower Sh_m^* curve and its relative M_m. It is interesting to note the smooth and damped evolution of each segment signal M_m in Fig. 5.12(c) for such unsteady flow, being a consequence of the severe inertia of the diffusion layer which, without usage of the inverse method, could hardly be accounted for. Such damping on the M_m signals also justifies why the inverse method is so sensitive to noise; the use of filtering techniques thus appears to be essential when dealing with real experimental data. Besides, one can notice from Fig. 5.12 that the straightforward Sobolík correction still procures acceptable results for $S(\tau)$, while the quasi-steady method is highly damped. At lower Pe, one can notice from the M_m curves in Fig. 5.13(c) that the probe is far more responsive to the imposed fluctuations; a slightly better agreement is also observed on the inverse results (Fig. 5.13a,b), although only minor differences can be noted between results of Figs. 5.12 and 5.13. This suggests that the method performs well in both cases. Inertial effects are, however, more apparent when comparing results from quasi-steady and, to a lesser extent, Sobolík methods. The reduced Pe also makes the inverse process less sensitive to noise and start-up instabilities.

5.4 Concluding remarks

An inverse problem algorithm coupled with the three-dimensional convection–diffusion equation is proposed in order to assess both magnitude and direction of the wall shear rate using electrodiffusion probes in high amplitude unsteady flows. The method was first validated and tested in flows of increasing complexity using simulated data. Results demonstrate that the inverse process not only surpasses all other post-treatment methods, but is the only valid one when dealing with shear reversal, periodically varying wall shear rate direction and turbulent flows, especially regarding the instantaneous shear direction. Numerical discretization of a real three-segment probe was also inspected. When the actual probe geometry

is not accessible or easily discretized, a perfectly circular geometry with realistic interstices is suggested, which should offer satisfying results in most applications. Experimental work should be performed to complete the validation process and for further improvements of the two-dimensional inverse problem.

Acknowledgements

The authors would like to acknowledge the financial support of the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Fonds de recherche du Québec - Nature et technologies (FRQNT). A most grateful thanks to Prof. V. Sobolík, LaSIE Université de La Rochelle, for valuable advice and teaching of the electrodiffusion method and to Prof. A. Garon, Polytechnique Montreal, for the many recommendations regarding the finite element method.

CHAPITRE 6 APPROCHE EXPÉRIMENTALE

En chapitre 5, le problème inverse bidimensionnel a été validé numériquement au travers d'exemples variés. Il importe également de valider l'approche proposée avec des mesures de sondes réelles, en particulier considérant l'influence d'effets secondaires sur la réaction tels que l'empoisonnement, les courants parasites ainsi que le bruit de mesure, phénomènes plutôt difficiles à modéliser numériquement. De plus, puisque la méthode ED même n'avait jamais été utilisée à l'École Polytechnique, bien des tests préliminaires devaient être effectués d'abord pour s'assurer de bien maîtriser son fonctionnement, mais aussi pour vérifier que les hypothèses à la base de la méthode sont respectées. Notamment, on devra vérifier :

- l'atteinte d'un courant limite à la sonde ;
- la réponse d'une sonde aux expériences de voltampérométrie à balayage linéaire ($I = \text{fct}(E)$) et de chronoampérométrie (saut de tension) ;
- la différence de potentiel à utiliser lors des mesures ;
- les phénomènes limitant la réaction (adsorption, empoisonnement...) ;
- le respect des lois d'étalonnage.

La plupart de ces considérations ont pu être vérifiées grâce à un banc d'essai préliminaire, conçu et fabriqué au tout début du projet de recherche. Les résultats de ces expérimentations ont permis de bien cerner les caractéristiques essentielles lors de la conception du montage actuel (que l'on dénommera le *canal ED*), lequel a été utilisé pour réaliser l'ensemble des mesures ED qui seront présentées en chapitres 6 et 7.

Dans les sections qui suivent, une présentation brève du canal ED et de l'écoulement en section d'essai, de l'instrumentation et des équations du gradient pariétal de vitesse seront fournies, car l'attention sera avant tout portée sur la mise en œuvre de la méthode ED. L'ensemble des considérations expérimentales énumérées ci-haut seront examinées à l'aide d'essais dans le canal ED et autres cellules électrochimiques. Des mesures de transfert de masse seront finalement traitées à l'aide du problème inverse pour évaluer ses performances et valider son utilisation dans un écoulement exposant de fortes variations périodiques du gradient pariétal de vitesse.

On notera qu'une description complète des différents composants du banc d'essai sera incluse dans l'article qui fait l'objet du chapitre suivant. Des détails supplémentaires sont également disponibles en annexe C.

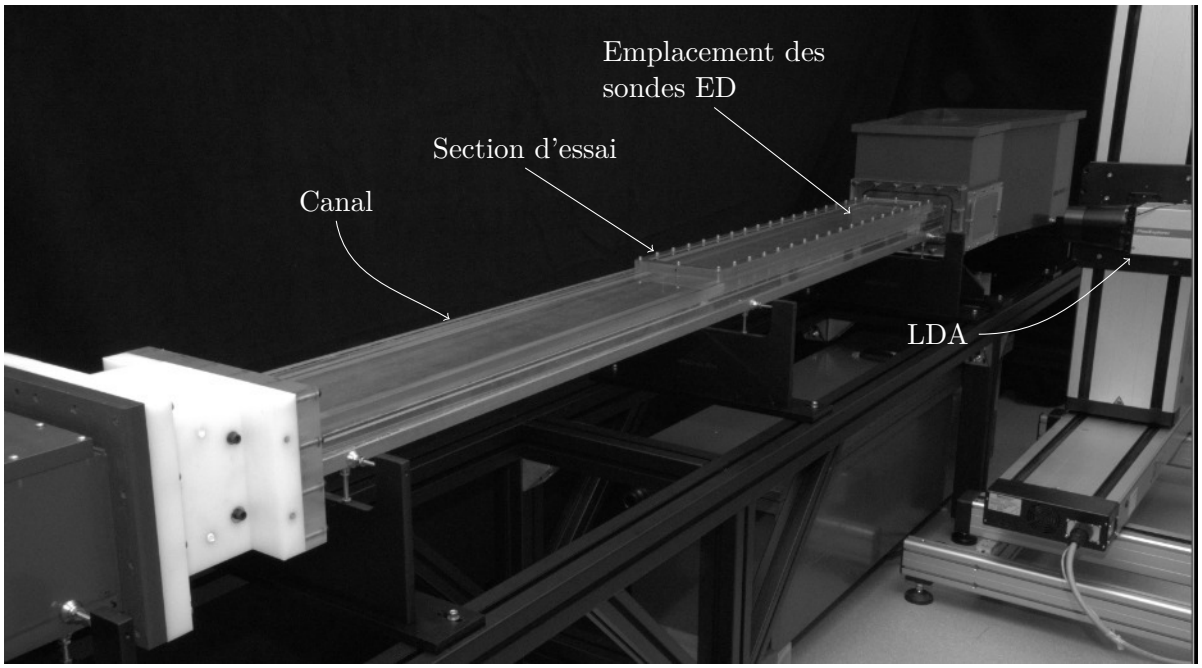


Figure 6.1 Photographie de la section centrale du canal ED

6.1 Présentation du canal ED

Le banc de mesure consiste en un tunnel hydraulique de taille réduite opérant en boucle fermée. La section d'essai (Figure 6.1) est principalement formée de deux plaques parallèles de PMMA (*Plexiglas*) de façon à générer un écoulement de Poiseuille bidimensionnel développé en fin de section, où sont localisées les sondes ED. Un mince espacement sépare les deux plaques : le canal ainsi formé est caractérisé par une hauteur $h \simeq 3\,\text{mm}$. Une telle taille contribue à diminuer la longueur de développement de l'écoulement ainsi qu'à générer un cisaillement élevé.

Le canal ED a été conçu de façon à pouvoir étudier la réponse dynamiques de sondes ED. Un dispositif de pulsation de l'écoulement permet ainsi de générer des sollicitations harmoniques d'amplitude et de fréquence variables. Des mesures de vitesses sont possibles à n'importe quelle position dans la section d'essai grâce à un anémomètre Doppler à laser (LDA) fixé sur un système de déplacement trois axes. Ce dispositif permet notamment d'obtenir une mesure complémentaire du gradient pariétal de vitesse instantané, laquelle est utilisée pour étalonner les sondes et valider les résultats.

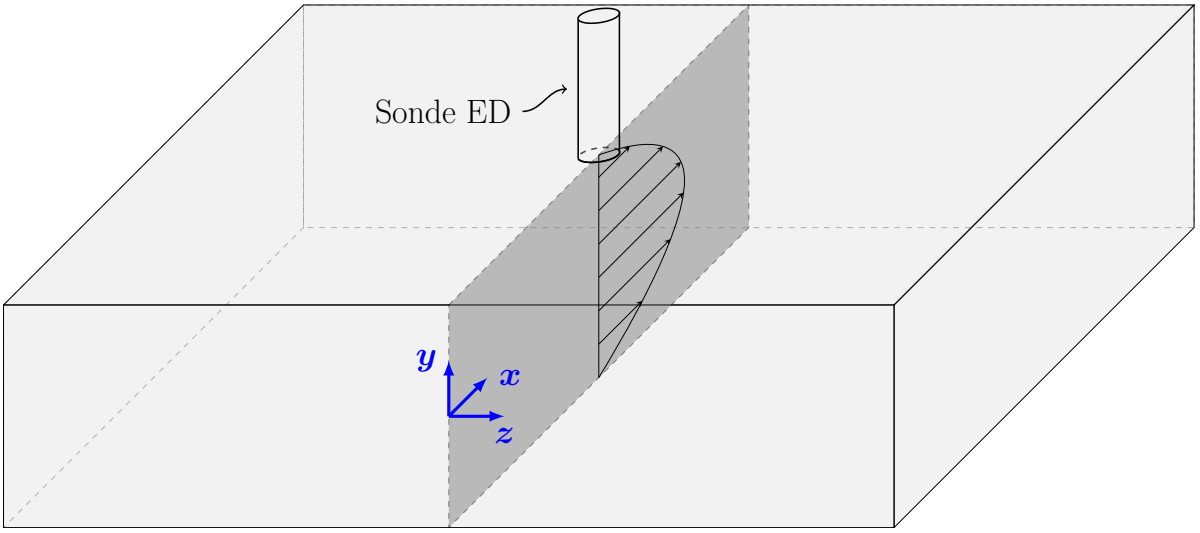


Figure 6.2 Schématisation de l'écoulement dans la section d'essai, avec son système d'axe. On notera que ce système est différent de celui utilisé dans la méthode inverse, où le plan $y = 0$ est plutôt à la paroi

6.2 Écoulement dans la section d'essai

Les équations reliant une mesure ponctuelle de vitesse au gradient pariétal de vitesse sont présentées dans cette section. Le lecteur est invité à consulter le chapitre 7 pour la démarche complète et le raisonnement menant à ces résultats.

Supposant un écoulement bidimensionnel ($w = 0$), développé ($v = 0$) et stationnaire, un écoulement de Poiseuille plan est attendu en section d'essai loin des parois latérales, comme schématisé en Figure 6.2. Lorsqu'une fluctuation périodique du gradient de pression axial est superposée à ce mouvement et supposant que l'écoulement peut se décomposer en une composante moyenne $\overline{(\sim)}$ et fluctuante $(\sim)'$, il est possible de montrer que le gradient pariétal de vitesse analytique en $y = \pm h/2$ suit la formulation suivante :

$$\overline{s}_{\text{ana}} = \mp \frac{4\overline{u}_{\text{axe}}}{h}, \tag{6.1}$$

$$s'_{\text{ana}} = \pm \sum_{n=1}^{N} \frac{\lambda_n K_n}{\omega_n} \mathrm{e}^{i\omega_n t} \tanh\left(\lambda_n h/2\right), \tag{6.2}$$

où $u_{\text{axe}} = u(y = 0)$ est la vitesse axiale au centre de la section, $\lambda_n = \sqrt{i\omega_n/\nu}$, $\omega_n = 2\pi f_n$ et K_n est une série de constantes, chacune associée à une fréquence f_n caractérisant le gradient de pression. La valeur de ces constantes peut être déterminée en représentant les mesures de vitesse faites par LDA à l'aide d'une série de Fourier (cf. annexe D). Le gradient pariétal de

vitesse analytique total est donc la somme de ces deux composantes, soit

$$s_{\text{ana}} = \overline{s}_{\text{ana}} + s'_{\text{ana}}; \tag{6.3}$$

On considérera que cette formulation représente bien le gradient pariétal de vitesse retrouvé en section d'essai ; une erreur de mesure $\sim 5\,\%$ est toutefois attendue, provenant principalement de l'incertitude sur la valeur de h (cf. annexe E).

6.3 Instrumentation et mesure de vitesse par LDA

Considérant le rôle important des mesures par LDA dans le cadre de cette thèse, une brève revue de son principe de fonctionnement suivra dans cette section. En effet, ce dispositif a d'abord été utilisé pour mesurer le profil de vitesse en section d'essai et pour vérifier que l'écoulement est pleinement développé (Poiseuille), de même que pour mesurer la vitesse $u_{\text{axe}}(t)$, apparaissant notamment dans le calcul du taux de cisaillement instantané (cf. section 6.2).

6.3.1 Principe de mesure LDA

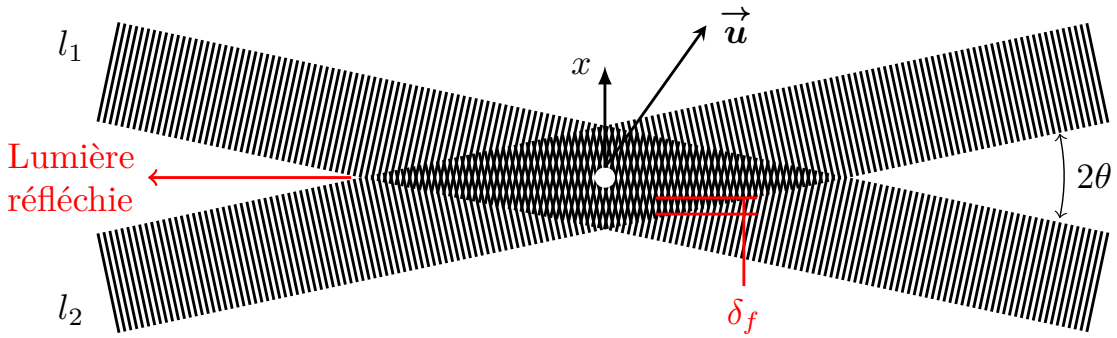


Figure 6.3 Schématisation des faisceaux laser et du modèle de franges en LDA

Un anémomètre à laser Doppler permet de mesurer ponctuellement la vitesse d'un fluide au lieu de croisement de deux faisceaux laser, région portant le nom de *volume de mesure* ($\mathcal{V}_{\text{m}}$). Dû à l'effet Doppler, la fréquence des ondes lumineuses réfléchies par des particules ensemencées dans l'écoulement et traversant le $\mathcal{V}_{\text{m}}$ sera différente de leur fréquence d'émission, ce qui permet de remonter à la vitesse du fluide.

En LDA, une partie de la lumière réfléchie est d'abord captée par un photodétecteur. Le signal ainsi reçu est la somme des contributions lumineuses de l_1 et l_2, les deux faisceaux

laser (Figure 6.3). Même s'ils ont été émis à la même fréquence f_0, les ondes de l_1 et l_2 seront toutefois perçues à des fréquences f_1 et f_2 différentes, résultat de la configuration spatiale des lasers et de l'effet Doppler. Dû à cette différence, le signal mesuré par le photodétecteur sera caractérisé par une fréquence de battement, la fréquence Doppler, définie par (Zhang, 2010)

$$f_D = \frac{2\sin\theta}{\lambda_0} u, \tag{6.4}$$

où λ_0 est la longueur d'onde des faisceaux émis, u la composante de vitesse axiale des particules et $f_D = |f_1 - f_2|$. La fréquence f_D est beaucoup plus faible que f_1 et f_2 ; elle pourra facilement être mesurée par des appareils conventionnels, permettant ainsi de calculer la vitesse u du fluide avec (6.4).

On utilise communément un modèle de *franges d'interférence* pour représenter le principe de fonctionnement LDA. Au croisement des deux faisceaux laser, on verra effectivement apparaître un réseau de franges horizontales (Figure 6.3). Ces zones correspondent aux endroits d'interférence des deux rayons l_1–l_2 et sont caractérisées par une intensité lumineuse maximale. En fait, considérant que la lumière perçue varie proportionnellement avec le carré de l'amplitude du signal mesuré E_m par le photodétecteur, on peut écrire (Zhang, 2010)

$$E_m^2 = 2E_0^2 \left[1 + \cos(2\pi x/\delta_f)\right], \tag{6.5}$$

où E_0 est l'amplitude de l'onde émise et δ_f est l'espacement entre les franges, défini par

$$\delta_f = \frac{\lambda_0}{2\sin\theta}. \tag{6.6}$$

Selon (6.5), on remarque effectivement que, lorsqu'une particule traverse une frange ($x = \delta_f$), l'intensité est maximale. En utilisant (6.6), (6.4) peut se réécrire comme

$$u = \delta_f f_D. \tag{6.7}$$

f_D peut donc être vue comme la fréquence caractérisant la variation de l'intensité lumineuse réfléchie par les particules. La valeur de δ_f, typiquement de l'ordre de 5 µm, est propre à la configuration du système LDA et devrait être constante. Considérant la forme du volume de mesure en Figure 6.3, une particule traversant $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ en son centre coupera un maximum de franges ; le signal d'intensité lumineuse (6.5) propre à cette particule comportera donc un nombre maximal de période, offrant ainsi une meilleure précision pour le calcul de u (Dantec, 2006). En contrepartie, le signal d'une particule traversant près des bords pourrait être rejeté par le processeur LDA dû à un nombre insuffisant de franges rencontrées.

Décalage des fréquences

La fréquence f_D mesurée par le photodétecteur n'est pas signée. Ainsi, pour déterminer le sens de l'écoulement dans $\mathcal{V}_\mathrm{m}$, la fréquence d'un des faisceaux laser est communément modifiée au travers d'une cellule de Bragg, ce qui simule une certaine vitesse de déplacement des franges dans la direction x négatif. La fréquence de battement devient essentiellement (Dantec, 2006)

$$f_D \simeq f_0 + \frac{2\sin\theta}{\lambda_0} u. \tag{6.8}$$

Avec une fréquence de décalage $f_0 \sim 40\,\mathrm{MHz}$, cet ajout permet de mesurer des vitesses négatives jusqu'à $u \simeq -50\,\mathrm{m/s}$. De plus, ce décalage est également bénéfique lorsque $u > 0$: puisque les franges avancent vers les particules, ces dernières traverseront plus souvent une frange lors du passage dans $\mathcal{V}_\mathrm{m}$, augmentant ainsi le nombre de périodes enregistrées dans le signal et donc sa qualité.

6.3.2 Signal LDA et erreur de mesure

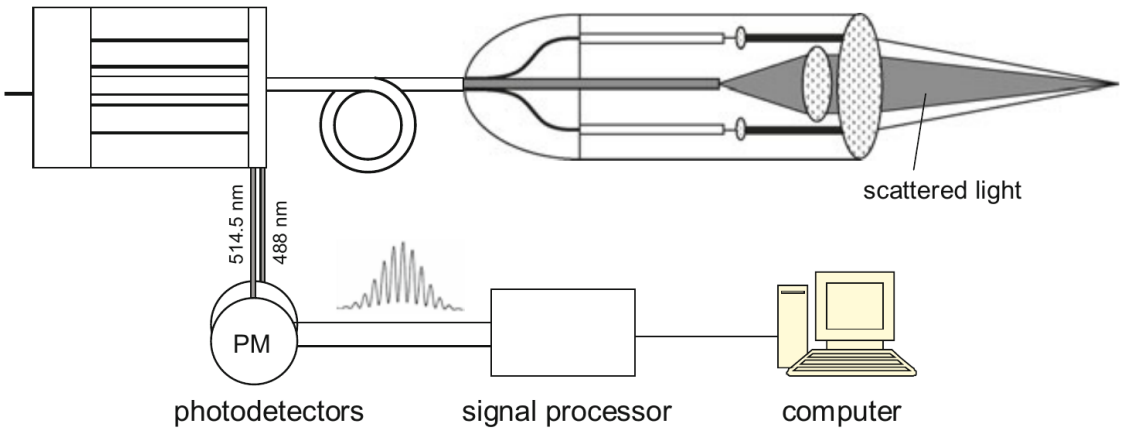


Figure 6.4 Schématisation d'un système de mesure LDA, notamment composé d'un photodétecteur et d'un processeur. Image tirée de (Zhang, 2010), avec permission de *Springer*

Un système de mesure LDA est généralement composé d'un processeur traitant le signal envoyé par le photodétecteur (cf. Figure 6.4). Ce signal correspond essentiellement à une impulsion de courant du photodétecteur, résultant de la somme de la lumière réfléchie par l'ensemble des particules traversant $\mathcal{V}_\mathrm{m}$. Plus le nombre de particules est important, meilleur sera la qualité du signal et, du même coup, plus élevée sera la fréquence d'échantillonnage. Cette dernière est en fait directement reliée au nombre de particules détectées par seconde, donc dépendra de la densité de particules mais aussi de la vitesse du fluide.

Une des principales sources de bruit dans les signaux LDA provient de sources lumineuses externes ou reflets lumineux, lesquels sont particulièrement importants lors de mesures en proche paroi. La taille et la forme des particules viendront également affecter la qualité du signal, où une particule plus grosse réfléchira plus de lumière et offrira ainsi un meilleur signal. Toutefois, la taille doit être assez petite pour bien suivre l'écoulement et les fluctuations de vitesse. Des tailles de 0.1 à 50 µm sont typiquement utilisées dépendant des conditions d'écoulement (Dantec, 2006).

L'aspect ponctuel d'une mesure LDA est en fait limité par la taille du volume de mesure, normalement $\sim 0.1\,\text{mm}$ dans la direction perpendiculaire à l'écoulement. Par exemple, dans le cas du canal ED, cette dimension correspond à près de 3 % de la hauteur h en section d'essai ; des gradients de vitesse sont donc susceptibles d'exister au sein même de $\mathcal{V}_\text{m}$, biaisant la valeur mesurée. Alors que certaines techniques permettent de corriger en partie cet effet sur les quantités moyennes (cf. section 6.3.3), les mesures LDA ont ici souvent été effectuées loin des parois, soit à une position y où les gradients de vitesse sont plus faibles. Certains systèmes LDA permettent également d'ajuster des paramètres tels que le gain du photodétecteur, agissant comme une sorte de filtre sur la lumière reçue, au sens où seules les particules réfléchissant une certaine intensité seront considérées. Ce faisant, celles traversant $\mathcal{V}_\text{m}$ plus près de son centre seront privilégiées, étant plus lumineuse considérant la répartition gaussienne d'énergie dans les faisceaux. Ce paramètre permet donc de modifier le diamètre *effectif* ou utile de $\mathcal{V}_\text{m}$. En contrepartie, les particules reflétant le plus de lumière sont généralement les plus grosses, lesquelles peuvent représenter moins fidèlement les fluctuations dans l'écoulement. La sensibilité du photodétecteur peut également être modifiée pour amplifier le signal, bien que cette pratique amplifie aussi le bruit de mesure.

L'alignement des faisceaux laser et du photodétecteur avec l'écoulement considéré est également important en LDA, surtout lorsque les rayons doivent traverser des parois solides, par exemple pour des mesures dans une enceinte ou un canal. Lorsque le système est disposé de façon perpendiculaire à la paroi, seul un certain décalage du volume de mesure est noté dû au phénomène de réfraction et aucune correction n'est nécessaire sur le signal mesuré. Un désalignement du système peut toutefois engendrer une déformation de $\mathcal{V}_\text{m}$ et du réseau de franges. Des effets d'astigmatisme sont généralement rencontrés, correspondant à une perte d'un point focal unique. Un facteur de correction doit être apporté lorsque des mesures désaxées sont effectuées et la qualité du signal est généralement diminuée. Dans une situation plus extrême, aucun croisement des faisceaux réfractés ne peut même être noté. L'alignement du système LDA avec la section d'essai du canal ED a donc été soigneusement vérifié (cf. section 6.3.6).

6.3.3 Correction du biais de vitesse LDA

Parmi les erreurs de mesures rencontrées en LDA, l'erreur de biais sur la vitesse moyenne mesurée est ici la plus contraignante considérant l'écoulement dans la section d'essai. Ce biais provient du principe d'échantillonnage même de la méthode, basé sur le nombre de particules traversant le volume de mesure $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ en une seconde. En effet, ce sont les particules les plus rapides qui seront échantillonnées le plus souvent, pouvant ainsi engendrer une erreur systématique sur les moments statistiques tels que la moyenne ou l'écart type. Certaines méthodes permettent de corriger ce biais. La plus courante est l'utilisation du temps de résidence t_r (ou temps de transit) des particules, défini comme le temps pris par une particule pour traverser $\mathcal{V}_\mathrm{m}$. La vitesse mesurée pour chacune des particules i est ainsi pondérée par t_r dans le calcul de la vitesse moyenne :

$$\overline{u} = \frac{\sum t_{\mathrm{r}i} u_i}{\sum t_{\mathrm{r}i}}, \tag{6.9}$$

où les sommes sont effectuées sur le nombre N de particules détectées par le photodétecteur en une période d'échantillonnage. On notera qu'avec un temps de résidence constant dans (6.9), on retrouve la formulation pour la moyenne arithmétique. t_r est généralement directement calculé par un processeur LDA.

L'utilisation de ce type de pondération est particulièrement efficace pour un écoulement turbulent isotrope (à l'échelle de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$) loin d'une paroi solide. Au contraire, lorsque les gradients de vitesse au sein même de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ sont non négligeables, la pondération basée sur t_r ne permet plus de corriger les erreurs de biais (Zhang, 2010). C'est le cas de l'écoulement retrouvé en proche paroi dans la section d'essai du canal ED où, en plus de la forme parabolique du profil de vitesse, l'épaisseur d_y de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ est non négligeable devant la hauteur h ($d_y \simeq 0.03h$). Il demeure heureusement possible de corriger ces effets, du moins en partie. Supposant :

(1) une distribution homogène de particules dans $\mathcal{V}_\mathrm{m}$;

(2) que l'écoulement est aligné avec $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ et

(3) que la fréquence d'échantillonnage est proportionnelle à la vitesse mesurée,

la densité de probabilité de la distribution de vitesse au sein de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ permet de relier les vitesses moyennes *biaisée* $\overline{u}_\mathrm{biais}$ (c-à-d celle mesurée par LDA) et corrigée $\overline{u}$ par la relation (Zhang, 2010)

$$\overline{u}_\mathrm{biais}\overline{u} = \overline{u}^2 + \frac{1}{12}(\Delta\overline{u})^2 + \overline{u'^2}, \tag{6.10}$$

avec $\Delta\overline{u}$ la différence de vitesse moyenne dans le volume de mesure, qui n'est a priori pas

connue. Il en est de même pour u' qui, dans (6.10), représente la vitesse fluctuante *corrigée*. Il est cependant possible de reformuler (6.10) en supposant également que la vitesse moyenne varie linéairement dans $\mathcal{V}_\mathrm{m}$, ce qui permet de se défaire de $\Delta\overline{u}$. La vitesse ainsi corrigée se formule par

$$\overline{u} = \frac{1}{4}\left(3\overline{u}_\mathrm{biais} + \sqrt{\overline{u}^2_\mathrm{biais} - 8\overline{u'^2}_\mathrm{biais}}\right). \tag{6.11}$$

La formulation (6.11) est intéressante puisque seule deux quantités sont requises et qu'elles sont, en général, directement calculées par un processeur LDA : $\overline{u}_\mathrm{biais}$ et $\overline{u'^2}_\mathrm{biais}$ correspondant respectivement à la vitesse moyenne et la variance mesurées. On notera que la correction apportée par (6.11) n'a que peu d'influence sur les mesures loin des parois, où le taux de fluctuation est plus faible.

6.3.4 Paramètres et caractéristiques du système LDA utilisé

Le système FlowExplorer de Dantec Dynamics© a été utilisé pour les mesures LDA, composé d'un processeur BSA F60 et d'une sonde de mesure deux composantes (4 lasers au total), bien que seule la vitesse axiale soit ici mesurée. La sonde est montée sur un système de déplacement trois axes (cf. Figure 6.1). Les principales caractéristiques du système sont rassemblées au Tableau 6.1. Des particules de polyamide (nylon 12, $\rho = 1030\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$) d'un diamètre moyen de 10 µm ont été utilisées pour l'ensemencement du fluide.

Détails du volume de mesure

Dû aux effets de réfraction, certaines dimensions du volume de mesure $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ et paramètres optiques sont modifiés lorsque les faisceaux laser changent de milieu. Bien que la méthode

Tableau 6.1 Principales caractéristiques du système LDA

Sonde de mesure	
Puissance	35 mW (standard) ; 90 mW (haute puissance)
Fréquence de Bragg	80 MHz
Dimensions	$98 \times 98 \times 396$ mm
Fréquence d'échantillonnage moyenne ($y = 0$)	300–500 Hz, selon le débit
Système de déplacement	
Portée	$61 \times 61 \times 61$ cm
Résolution	6.25 µm

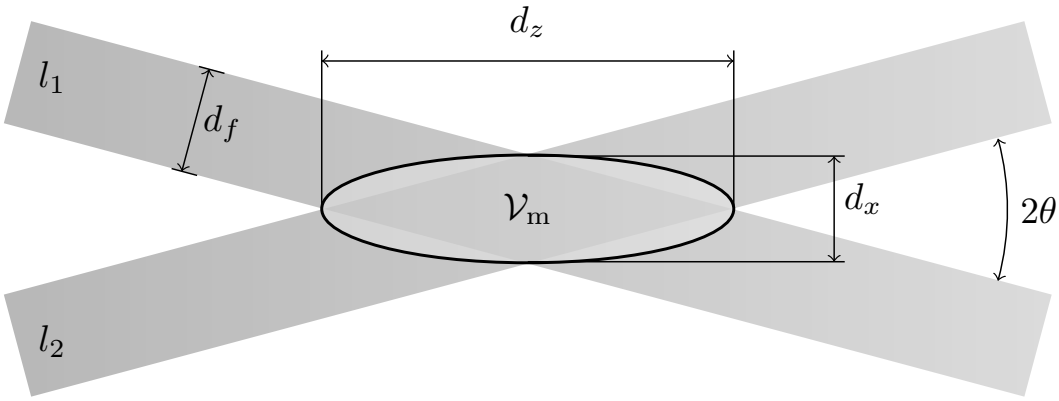


Figure 6.5 Dimensions du volume de mesure LDA

LDA ne nécessite pas de calibration par l'utilisateur, un étalonnage est normalement effectué par le fabricant. Les caractéristiques suivantes sont retrouvées dans le fichier de calibration du FlowExplorer, soit le système LDA utilisé pour les mesures dans le canal ED :

- distance interfranges : $\delta_f = 3.382\,\mu\mathrm{m}$;
- longueur d'onde : $\lambda_0 = 660\,\mathrm{nm}$;
- distance focale : $f_0 = 300\,\mathrm{mm}$;
- distance entre les laser l_1 et l_2 (aux lentilles) : $d_l = 60\,\mathrm{mm}$;
- diamètre des faisceaux (avant les lentilles) : $d'_f = 2.6\,\mathrm{mm}$.

L'ensemble des dimensions et paramètres relatifs à $\mathcal{V}_\mathrm{m}$ peuvent ensuite être déduits de ces données, notamment les longueurs d_z et largeur d_x de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$, l'angle entre les faisceaux θ ainsi que le diamètre d'un rayon au volume de mesure d_f (cf. Figure 6.5), à l'aide des équations ci-dessous (tirées de Dantec, 2006).

$$d_f = \frac{4 f_0 \lambda_0}{\pi d'_f} \qquad d_x = \frac{d_f}{\cos\theta} \qquad d_z = \frac{d_f}{\sin\theta} \qquad \theta = \arcsin\left(\frac{\lambda_0}{2\delta_f}\right) \tag{6.12}$$

Lors du passage d'un milieu a vers un milieu b, les rayons laser sont réfractés, ce qui modifie la forme du volume de mesure puisque la longueur d'onde des faisceaux λ_0 et l'angle θ deviennent

$$\lambda_{0,b} = \frac{\lambda_{0,a} n_a}{n_b} \qquad \theta_b = \arcsin\left(\frac{n_a \sin\theta_a}{n_b}\right), \tag{6.13}$$

avec n_i l'indice de réfraction du milieu i. Le Tableau 6.2 rassemble ainsi des paramètres additionnels de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$, calculés en utilisant (6.12) et (6.13), considérant que les faisceaux sont émis dans l'air et supposant que l'indice de réfraction de la solution utilisée en méthode ED égale celui de l'eau. On notera que la distance interfranges n'est pas altérée lors du changement de milieu et que l'épaisseur du volume de mesure $d_y = d_f$.

Tableau 6.2 Paramètres des faisceaux laser et du volume de mesure LDA dans deux milieux

	Air	Eau
n	1	1.33
λ_0 (nm)	660	496
d_f (mm)	0.0970	0.0729
d_x (mm)	0.0974	0.0731
d_z (mm)	0.994	0.994
θ (°)	5.60	4.21

Paramètres d'acquisition

Le contrôle du système de déplacement ainsi que des paramètres d'acquisition du processeur et de la sonde a été effectué avec le logiciel commercial BSA Flow Software v4.50. Ces paramètres doivent être ajustés par l'utilisateur en fonction des conditions d'écoulement, notamment de la vitesse du fluide, du taux de fluctuation, du niveau d'ensemencement et des conditions optiques. Les principaux paramètres sont rassemblés au Tableau 6.3 et leur rôle est détaillé ci-dessous. On notera que les noms originaux (en anglais) ont été conservés pour éviter les ambiguïtés.

- *Center velocity* et *Velocity span* : vitesse approximative au lieu de mesure et étendue de vitesse, servant principalement à filtrer le signal mesuré. Selon l'équation (6.4), la vitesse obtenue par LDA est reliée à la fréquence de passage des particules dans $\mathcal{V}_\mathrm{m}$. Ces deux valeurs sont ainsi utilisées pour former un filtre passe-bande autour de la fréquence (ou vitesse) mesurée. Une valeur élevée pour *velocity span* augmentera la largeur de ce filtre et donc la fréquence d'échantillonnage résultante, bien que le bruit de mesure sera aussi accentué. La valeur optimale est essentiellement choisie en étudiant la forme du signal LDA (cf. Figure 6.6).
- *Record length* : paramètre relié au nombre d'impulsions lumineuses à utiliser durant le traitement du signal. Lorsque le photodétecteur détecte une série d'impulsions (dé-

Tableau 6.3 Paramètres d'acquisition LDA

Velocity span	(m/s)	1.59 ($y = 0$, cas général) 0.40 (proche paroi) à 3.17 (débit élevé)
Record length		256 (fixe)
Sensitivity	(V)	1200 – 1400
Signal gain	(dB)	10 – 12
Level validation ratio		4

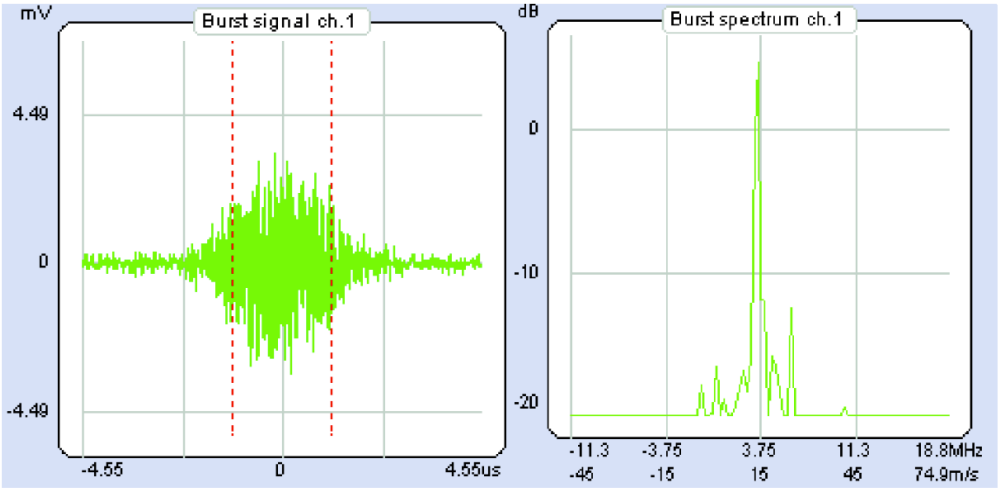


Figure 6.6 Signal temporel (gauche) et spectre (droite) caractéristique à un échantillonnage (ou un paquet) LDA. On notera que les deux signaux ne correspondent pas exactement à la même condition d'écoulement

nommée *burst* ou « paquet »), un certain nombre d'échantillons du signal, défini par *record length*, est sélectionné et traité par transformée de Fourier rapide (FFT) pour déterminer f_D. Un plus grand nombre procurera un signal plus propre, bien que la durée associée sera plus importante. Un compromis peut être utilisé en utilisant une durée auto-adaptative. Ici, comme les fluctuations de vitesse sont caractérisées par une fréquence plutôt faible, une durée fixe (et maximale) a été utilisée. En Figure 6.6, la durée d'enregistrement est comprise entre les traits pointillés ; le spectre résultant de la FFT y est également tracé, à droite.

- *Sensitivity* : sensibilité du photodétecteur, établie en terme de la tension employée. Plus cette valeur est élevée, plus le photodétecteur sera sensible aux particules reflétant le moins de lumière comme, par exemple, celles se trouvant aux extrémités du volume de mesure. Ainsi, meilleure sera la cadence d'échantillonnage, bien que le bruit sera aussi amplifié.
- *Signal gain* : amplification du signal (et donc, aussi, du bruit). Comme pour la sensibilité, ce paramètre influencera la taille effective de $\mathcal{V}_\mathrm{m}$, c'est-à-dire qu'avec une valeur de gain plus élevée, les contributions lumineuses des particules émettant moins de lumière pourraient s'ajouter au signal résultant du processus de validation.
- *Validation* : terme utilisé pour caractériser la qualité du signal et des paquets, défini par le rapport suivant :

$$\frac{\text{Nombre de paquets valides}}{\text{Nombre de paquets valides + rejetés}}\,[\%]. \tag{6.14}$$

Un paquet sera rejeté par le processeur dépendant du *level validation ratio* ou si un niveau trop élevé de bruit caractérise le signal. L'échantillonnage LDA se compte ainsi en nombre de paquets (valides) par seconde.

– *Level validation ratio* : si le rapport d'amplitude entre les deux pics les plus importants du *spectre* d'un paquet (cf. Figure 6.6, droite) est plus grand que cette valeur, le paquet est valide ; sinon, il est rejeté.

En général, on notera qu'augmenter la sensibilité du photodétecteur est une manière plus propre pour accroître la cadence d'échantillonnage que d'utiliser le gain. Toutefois, une tension plus élevée augmente le courant au photodétecteur et peut l'endommager ; un compromis entre sensibilité et gain est donc inévitable. Afin de limiter la taille effective du volume de mesure, un faible gain (cf. Tableau 6.3) a été utilisé pour les mesures en section d'essai du canal ED.

6.3.5 Mesures LDA dans le canal ED et moyennes de phase

Des exemples de signaux LDA sont illustrés en Figure 6.7 dans trois conditions d'écoulement périodique, chacune accompagnée du signal moyenné en phase. Étant fonction du nombre de particules traversant $\mathcal{V}_{\mathrm{m}}$, l'échantillonnage LDA n'est pas constant et ne peut être directement contrôlé. Il est possible de varier cette fréquence essentiellement de deux façons : en augmentant la vitesse du fluide ou le nombre total de particules dans l'écoulement. Cet échantillonnage variable en LDA peut causer des problèmes en présence de fortes fluctuations comme observé en sous-figure (*b*), où beaucoup moins de particules sont détectées près des instants de vitesse minimale ; certaines périodes apparaissent visiblement sous-échantillonnées. En contrepartie, dans un écoulement périodique, cette variabilité permet d'échantillonner chaque période différemment, offrant ainsi des moyennes de phase bien définies. Le nombre de périodes nécessaires pour générer un signal moyenné propre dépend des conditions d'écoulement et de la qualité du signal. Environ 30, 150 et 3000 périodes ont été utilisées dans le calcul des moyennes des cas (*a*), (*b*) et (*c*) illustrés en Figure 6.7, respectivement. Le bruit observé dans les mesures correspond essentiellement au taux de fluctuation d'arrière-plan de l'écoulement ($\sim 1\,\%$, cf. annexe C). On notera que l'écoulement en (*a*) correspond à une condition typiquement utilisée pour l'*étalonnage quasi-stationnaire* des sondes ED (cf. section 6.4.5).

Synchronisation des mesures de vitesse et électrodiffusionnelles

La synchronisation des signaux a été effectué à l'aide d'un codeur rotatif fixé à l'arbre du moteur pas à pas du dispositif de pulsation (cf. Figure C.2, annexe C ; codeur non illustré).

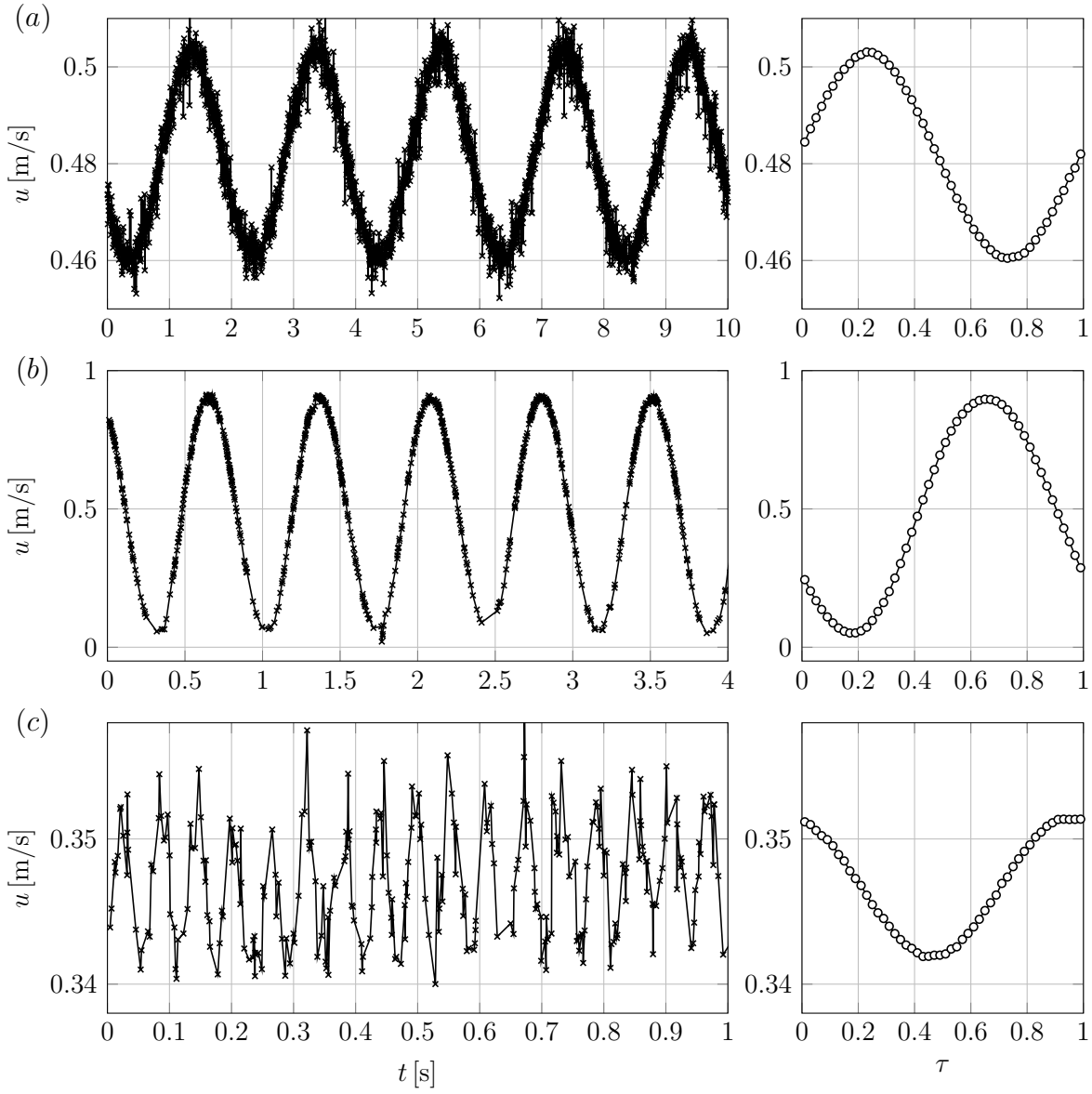


Figure 6.7 Mesures de vitesses instantanées (gauche) et moyennées en phase (droite), obtenues par LDA dans le canal ED à différentes fréquences et amplitudes de pulsation. (*a*) $f = 0.5\,\mathrm{Hz}$; (*b*) $f = 1.4\,\mathrm{Hz}$; (*c*) $f = 17\,\mathrm{Hz}$

Le signal de sortie du codeur est divisé et enregistré simultanément aux niveaux ED et LDA. Du côté LDA, l'enregistrement est déclenché par le processeur BSA F60, lequel envoie un signal TTL 0–5 V lorsque l'acquisition de vitesse est démarrée. Ceci permet de lier l'échelle temporelle LDA au débit pulsé. Du côté ED, l'enregistrement est réalisé en continu puisque ce dispositif d'acquisition ne peut être déclenché automatiquement. Comme les évolutions sont périodiques, les signaux sont ensuite synchronisés en fixant le début de la période à une

certaine position angulaire du codeur rotatif. On notera qu'une telle procédure n'est utile que pour effectuer les moyennes de phase puisque, de cette façon, rien ne garantit que l'instant choisi pour la première période LDA ne correspondra à celui de la première période ED.

6.3.6 Incertitudes de mesure – LDA

Une première incertitude sur la mesure de vitesse est due à l'alignement de la sonde LDA avec la section d'essai. Ce dernier a été assuré grâce à un système de préhension permettant une rotation trois axes de la sonde. L'alignement suivant les axes x et y (cf. Figure 6.2) a été vérifié en évaluant le déplacement des points de focalisation des faisceaux laser lorsque la sonde est déplacée le long de l'axe z sur une distance de 40 cm. Un décalage de moins de 2 mm a été noté dans les deux directions. Pour l'alignement suivant z, la sonde a été positionnée le plus loin possible du canal en dirigeant les faisceaux sur une paroi solide. Puis, l'angle entre l'axe x, établi à l'aide d'un niveau, et la droite passant par les deux points de focalisation, a été mesuré. Dans tous les cas, les défauts d'alignement demeurent sous les 0.5°, engendrant ainsi une erreur négligeable sur la vitesse mesurée ($\sim 0.0038\,\%$). On notera que le canal ainsi que le système de traverse ont préalablement été mis à l'horizontal à l'aide d'un niveau. L'erreur associée à cette opération a été négligée.

En terme d'incertitudes propres à la méthode LDA même, on peut noter les erreurs :

1. de calcul de la fréquence f_D par le processeur ;
2. sur la phase du signal, ce qui est dû à la présence de multiples particules dans $\mathcal{V}_\mathrm{m}$;
3. de calibration, donc sur la détermination des paramètres comme l'angle θ entre les faisceaux dans (6.4).

Toutefois, il a été jugé que ces erreurs demeurent faibles comparativement à l'erreur sur la valeur de la hauteur h en section d'essai (cf. annexe E), laquelle engendre une erreur $\sim 5\%$ sur la valeur de $\overline{s}$. En effet, les mesures de vitesse ont avant tout été utilisées pour obtenir une valeur de référence du gradient pariétal de vitesse s.

Enfin, la position du centre du canal ($y = 0$) a été déterminée par régression quadratique sur le profil de vitesse local. Il a été jugé que l'imprécision sur cette position devrait être inférieure à 0.01 mm.

6.4 Mise en œuvre de la méthode ED

La suite du présent chapitre est essentiellement consacrée à la description et la mise en pratique des méthodes utilisées pour les mesures ED.

6.4.1 Fluide et électrolyte

Le mélange consiste en une solution de ferricyanure et ferrocyanure concentrée à 0.025 M (équimolaire) et contenant du sulfate de potassium (K_2SO_4, 0.15 M) comme électrolyte support. De l'eau déionisée par osmose inverse sert ici entièrement de solvant ; un mélange d'eau–glycérine a toutefois été utilisé dans certaines expériences (seulement au chapitre 8). Bien que la viscosité d'un tel mélange s'apparente fortement à celle de l'eau, elle a été mesurée à l'aide d'un viscosimètre Cannon-Fenske à différentes températures. La relation linéaire suivante :

$$\mu = (-0.0241T + 8.114) \times 10^{-3}\,\mathrm{Pa\,s} \tag{6.15}$$

offre une bonne précision sur μ près de la température utilisée pour les mesures, soit pour $T = 22 \pm 1\,^{\circ}\mathrm{C}$. À $T = 22\,^{\circ}\mathrm{C}$, on obtient $\mu = 1.00 \times 10^{-3}\,\mathrm{Pa\,s}$. Cette relation a surtout été utilisée pour corriger la valeur du coefficient de diffusion à la température des mesures, qui pouvait légèrement varier. Une masse volumique de $\rho = 1032\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$ a été mesurée à l'aide d'un densimètre portable Anton-Paar.

Des tests ont également été effectués en diminuant la concentration en ferricyanure et ferrocyanure de la solution, jusqu'à un mélange dix fois moins concentré. Les principales conclusions d'une diminution de la concentration sont :

- le courant mesuré diminue proportionnellement avec la concentration, comme suggéré par l'équation du courant en régime stationnaire (2.14) ;
- les plateaux de courant limite durant une expérience de voltampérométrie à balayage linéaire (cf. section 2.6.3) sont moins bien définis et plus inclinés.

Ce dernier point semble en fait être une conséquence du premier : alors que le courant généré par la réaction ED I_{ED} est plus faible, les courants des réactions parasites I_{p} (e.g. dus à l'oxygène dissout) demeurent inchangés et ont donc un poids relatif plus important dans le courant total mesuré $I_{\mathrm{tot}} = I_{\mathrm{ED}} + I_{\mathrm{p}}$. Cette hypothèse a été vérifiée en barbotant les solutions avec de l'azote pour purger l'oxygène dissout, procédure ayant un impact considérablement plus significatif sur le courant mesuré lorsque la concentration C_0 est plus faible. Bref, les meilleurs résultats ont été obtenus avec la solution la plus concentrée en ferricyanure ($C_0 = 0.025\,\mathrm{M}$). Des détails additionnels sont disponibles en annexe F.

La concentration de l'électrolyte support K_2SO_4 a également été variée, bien qu'aucun changement notable n'a été remarqué avec des essais en voltampérométrie et en chronoampérométrie. Une concentration de 0.15 M a été choisie puisque, d'une part, la masse volumique du mélange résultant concorde fortement avec celle des particules d'ensemencement utilisées pour les mesures de LDA (polyamide, $\rho = 1030\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$). D'autre part, cette concentration est du même ordre de grandeur, sinon supérieure, à celles communément rencontrées dans la

littérature pour un mélange constitué des mêmes espèces.

6.4.2 Sondes et conditionnement de signal

Huit sondes ED ont été gracieusement fournies par le professeur V. Sobolík de l'Université de La Rochelle. Les cathodes (platine) sont montées sur des tubes en acier inoxydable qui servent à la fois de support et d'anode (cf. Figure 6.8). Les sondes sont isolées électriquement de l'anode et l'une de l'autre grâce à une résine d'époxy (en noir dans les figures). Les huit cathodes sont montées sur quatre supports, numérotés de 1 à 4 : sur chacun des supports 1 et 2 (3 et 4) se trouve une sonde tri-segmentée (trois sondes simples circulaires de diamètre différent). Les principales caractéristiques de ces sondes sont retrouvées au Tableau 6.4, où « T » désigne une sonde tri-segmentée tandis que « C » réfère à une sonde simple circulaire. On notera que, dans la suite, la sonde tri-segmentée T2 n'est que peu utilisée considérant ses défauts géométriques plus importants.

Tableau 6.4 Caractéristiques des sondes ED utilisées. L'aire A réfère à l'aire géométrique, obtenue à l'aide de photographie par microscope optique (cf. Figure 6.8). Le diamètre d est calculé à partir de A en supposant une sonde parfaitement circulaire (et sans interstice pour T1 et T2). Les incertitude sont indiquées pour d puisque ce paramètre est plus souvent utilisé

Support	Dénomination	A (mm^2)	d (mm)
1	T1	0.212	0.520 ± 0.004
2	T2	0.212	0.520 ± 0.004
3	C1	0.208	0.515 ± 0.003
	C2	0.0594	0.275 ± 0.004
	C3	0.0104	0.115 ± 0.003
4	C4	0.204	0.510 ± 0.003
	C5	0.0594	0.275 ± 0.004
	C6	0.0102	0.114 ± 0.003

Le potentiostat EDIK4 [1] a été utilisé pour conditionner les sondes ED. Cette tâche consiste essentiellement à mesurer des variations de courant tout en gardant une différence de potentiel stable entre les électrodes. Alors que l'appareil EDIK4 est normalement utilisé conjointement avec une carte d'acquisition NI PCI-6221 (16 bits) pour la conversion analogique–numérique, le dispositif a été modifié afin d'être utilisé avec la carte 24 bits NI PXI-4495. En plus d'une résolution accrue, cette carte est caractérisée par un rapport signal sur bruit bien supérieur, ce qui est spécialement utile en méthode ED considérant la très faible amplitude des courants

1. Provenant de *Institute of Chemical Process Fundamentals ASCR*, en République tchèque.

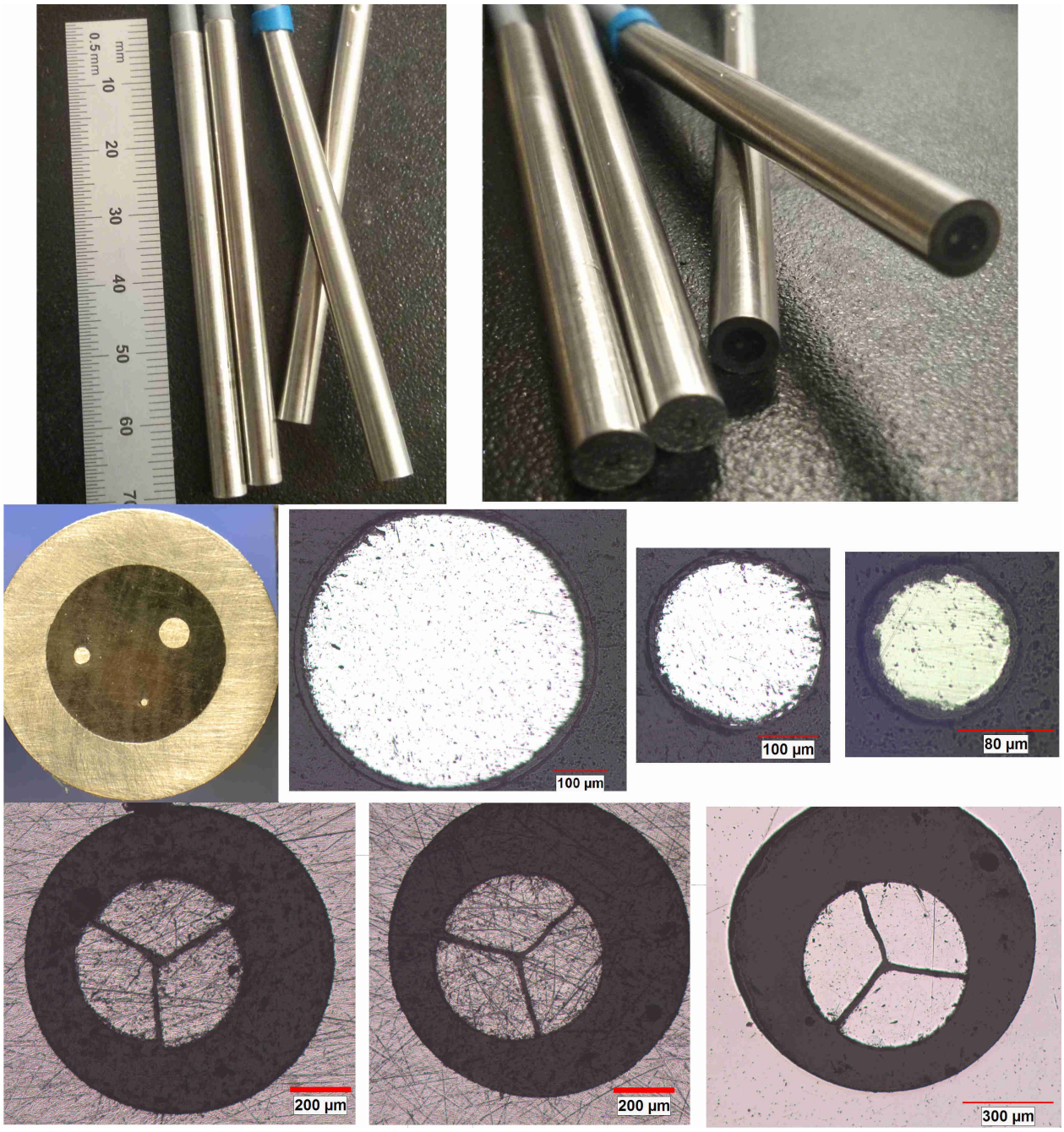


Figure 6.8 Sondes ED utilisées. Haut : vues des quatre supports (anodes), au bout desquels se trouvent les sondes (cathodes). Milieu, de gauche à droite : vue d'ensemble du support 4 avant d'être poli (pour la première fois) avec la pâte d'alumine, puis vues agrandies des sondes C4, C5 et C6 une fois polies, respectivement. Bas : vues de T2 (gauche) et T1 (milieu) avant le polissage, puis T1 après le polissage (droite)

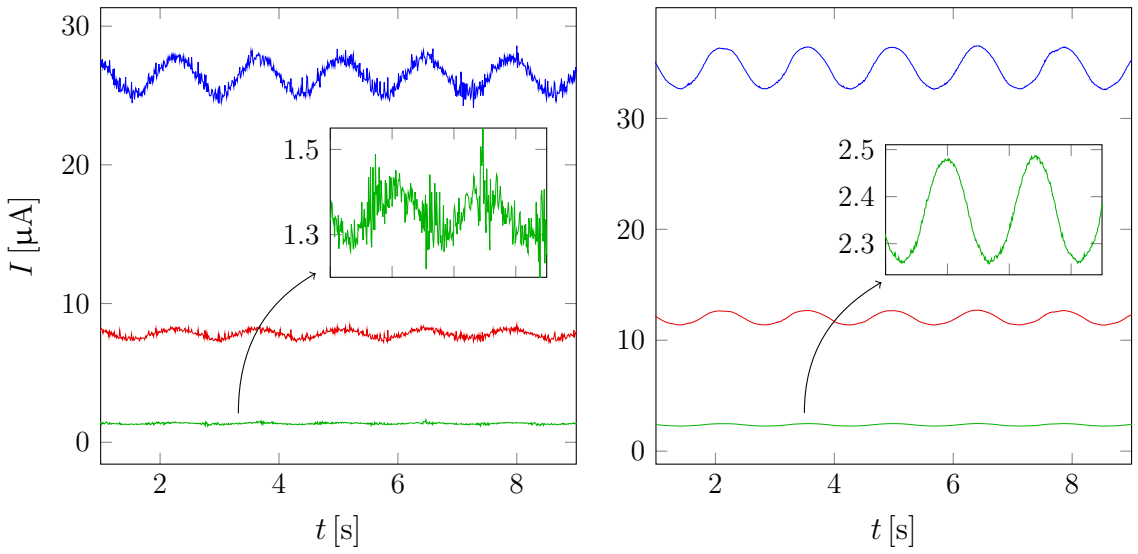


Figure 6.9 Signaux des sondes C1, C2 et C3, positionnées dans le canal ED et en utilisant (*a*) la carte PCI-6221 et (*b*) la carte PXI-4495. Les mesures n'ont pas été effectuées exactement au même débit ni à la même amplitude de pulsation

mesurés ($\sim$ 10 µA). De plus, puisque les mesures effectuées avec le système EDIK4 sont, à la base, référencées à la masse, les signaux sont plus sensibles aux bruits des appareils environnants. L'usage de moteurs pas à pas dans le système de pulsation a particulièrement intensifié le bruit de mesure. En utilisant la carte PXI-4495 toutefois, ces bruits ont presque entièrement été éliminés. Des signaux typiques de sondes ED obtenus avec ces deux cartes sont comparés en Figure 6.9.

6.4.3 Protocole de mesure

Au cours d'une réaction d'électrolyse, on observe généralement une altération graduelle de la surface active due aux phénomènes d'adsorption et d'empoisonnement de la sonde (cf. section 2.6.9). La durée de ces effets n'est toutefois pas indéfinie et il semblerait qu'ils surviennent particulièrement dans les premières minutes à dizaines de minutes suivant la mise sous tension d'une sonde ; ils sont également ressentis plus rapidement pour une sonde de petite taille (cf. section 6.4.5). Ainsi, bien que la littérature suggère de fréquemment polir et nettoyer les sondes, il apparait tout aussi important de faire *vieillir* les sondes une fois installées dans le montage jusqu'à ce que ces effets se stabilisent, soit durant une dizaine de minutes ou plus. Une procédure similaire a par ailleurs déjà été proposée par plusieurs auteurs concernant des films chauds cylindriques et coniques utilisés dans l'eau (Bruun, 1995, p.115), où ces derniers devaient être vieillis de 30 min jusqu'à parfois 100 h pour obtenir des paramètres d'étalonnage

qui soient constants durant la campagne de mesure. Ces variations semblaient provenir d'une contamination graduelle des films par des particules adhérant à leur surface et dépendent donc de la qualité de l'eau utilisée et du système de filtration.

La procédure de vieillissement des sondes ED devrait ainsi précéder tout étalonnage. Une telle approche a effectivement permis d'obtenir des constantes d'étalonnage beaucoup plus stables dans le temps. Or, les principales étapes effectuées avant chaque campagne de mesure se résument à :

1. polir les sondes avec une solution aqueuse de fines particules (ici l'alumine, avec une taille de particules ~ 0.3 à $0.05\,\mu\text{m}$) ;
2. dégraisser les surfaces ;
3. bien nettoyer et frotter les sondes avec un linge en microfibre pour éliminer tout résidu sur les surfaces ;
4. rincer à l'eau distillée ;
5. installer les sondes dans le banc d'essai, en s'assurant que les surfaces sont bien affleurantes à la paroi ;
6. mettre le banc d'essai en marche et attendre que la température du fluide se stabilise à la consigne demandée ;
7. mettre les sondes sous tension pendant une dizaine de minutes ;
8. procéder à un étalonnage en régime stationnaire ou quasi-stationnaire (cf. section 6.4.5).

On notera que les étapes 6 et 7 sont parfois effectuées simultanément.

6.4.4 Caractérisation de la réaction électrochimique

Cette étape consiste d'abord à vérifier que la condition de courant limite est bien atteinte lors de la réaction. Une expérience de voltampérométrie à balayage linéaire permet notamment de vérifier cette condition et de révéler la présence d'anomalies. On observe en Figure 6.10 un plateau bien défini pour l'ensemble des sondes circulaires utilisées ; la condition apparait effectivement respectée pour $E \lesssim -300\,\text{mV}$, où seule une légère pente est notée dans les différentes évolutions de courant. Une tension $E = -600\,\text{mV}$ a donc été utilisée pour les mesures, assez éloignée de l'extrémité inférieure du plateau sans être trop élevée, limitant ainsi le déclenchement de réactions parasites. On notera qu'une tendance similaire est également observée pour les sondes tri-segmentées.

Deux balayages sont illustrés pour chaque sonde : directement suivant le pré-traitement des sondes et après un « vieillissement ». On observe d'abord qu'une électrolyse prolongée n'affecte que légèrement la qualité des plateaux, mais entraîne une augmentation de l'amplitude

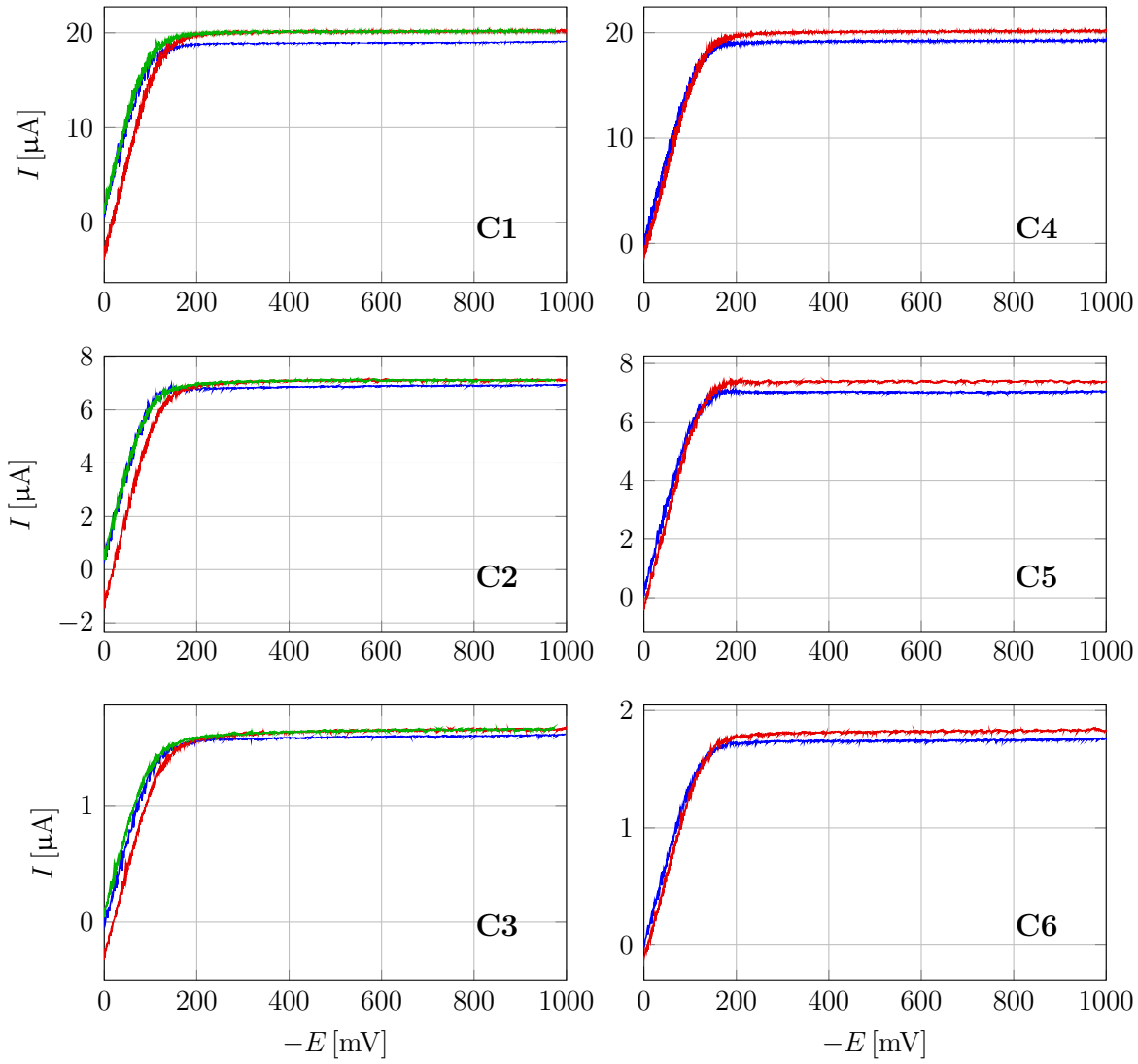


Figure 6.10 Courbes de voltampérométrie à balayage linéaire pour les différentes sondes utilisées. Les courbes en bleu réfèrent aux essais effectués directement après un nettoyage et polissage de la sonde ; celles en rouge ont été enregistrées suite à un « vieillissement » de la sonde ; celles en vert correspondent à ces mêmes données, décalées de 25 mV. On notera que les tensions E sont négatives

du courant limite. On note aussi un courant considérablement plus faible à la tension $E = 0$ pour le support 1 (sondes C1–3) ainsi qu'un décalage du plateau. Cet effet apparaît en fait comme un déphasage ou une modification du potentiel de référence de ces sondes : en décalant ces courbes de 25 mV, on retombe essentiellement sur la courbe sans vieillissement avec un courant limite plus élevé. Alors que la cause exacte de ce phénomène n'a pas été déterminée, cet effet ne semble pas affecter la réaction à la tension utilisée pour les mesures.

6.4.5 Étalonnage des sondes ED

Trois types d'étalonnage sont généralement effectués en méthode ED : l'étalonnage en régime stationnaire, dynamique et directionnel.

Étalonnage en régime stationnaire

Ce type d'étalonnage permet de calculer la constante k_q de la relation quasi-stationnaire

$$s_\mathrm{q} = (I/k_\mathrm{q})^3. \tag{6.16}$$

Connaissant k_q, (6.16) donne notamment accès au gradient pariétal de vitesse moyen $\overline{s}$ sans devoir connaitre les propriétés de la cellule électrochimique. Dans le canal ED, un tel étalonnage consiste à réaliser des mesures à différents débits en régime stationnaire. Supposant un écoulement de Poiseuille développé, le gradient pariétal de vitesse est relié à la vitesse au centre du canal u_axe selon (6.1). Des courbes d'étalonnage respectant (6.16) sont montrées par les traits pointillés en Figure 6.11, où k_q a été calculée avec la moyenne des mesures aux différents débits. On observe un bon accord pour les sondes de plus grandes tailles (T1, C1, C2, C4, C5), tandis que des écarts sont notés pour C3 et C6, surtout lorsque s est faible. Cet effet s'explique par des effets convectifs trop faibles pour des sondes d'une telle taille où, par exemple, un nombre de Péclet $Pe \simeq 1500$ (cf. section 4.2.1) caractérise la réaction lorsque $s = 100\,\mathrm{s}^{-1}$. En utilisant la forme corrigée proposée en section 2.6.4

$$s_\mathrm{q,cor} = \left[\frac{(I^4 - I_0^4)^{1/4}}{A}\right]^{1/n}, \tag{6.17}$$

une excellente concordance est observée dans tous les cas (traits pleins de couleur, Figure 6.11). Les coefficients A, I_0 et n ont été calculés à l'aide d'une régression des moindres carrés entre (6.1) et (6.17). Bien qu'il soit toujours préférable d'utiliser (6.17), l'apport en précision par rapport à (6.16) est négligeable à haut Pe. Les avantages de cette formulation et des résultats additionnels en régime instationnaire sont présentés en annexe G. On notera également que, dans la présente configuration du banc d'essai, un étalonnage à débit plus élevé n'a pas pu être effectué puisque la transition vers la turbulence débute vers $s \simeq 1000\,\mathrm{s}^{-1}$. Des écarts de 0.5% ou moins sont typiquement rencontrés sur le coefficient d'étalonnage k_q après 1 à 2 heures de mesures lorsque la température du fluide est maintenue constante ; selon (6.16), une telle variation entraine une erreur trois fois plus élevée sur $\overline{s}$. Ces écarts pourraient provenir des effets de vieillissement de la sonde discutés en section 6.4.3.

Par ailleurs, il est intéressant de noter que les résultats d'étalonnage présentés en Figure 6.11

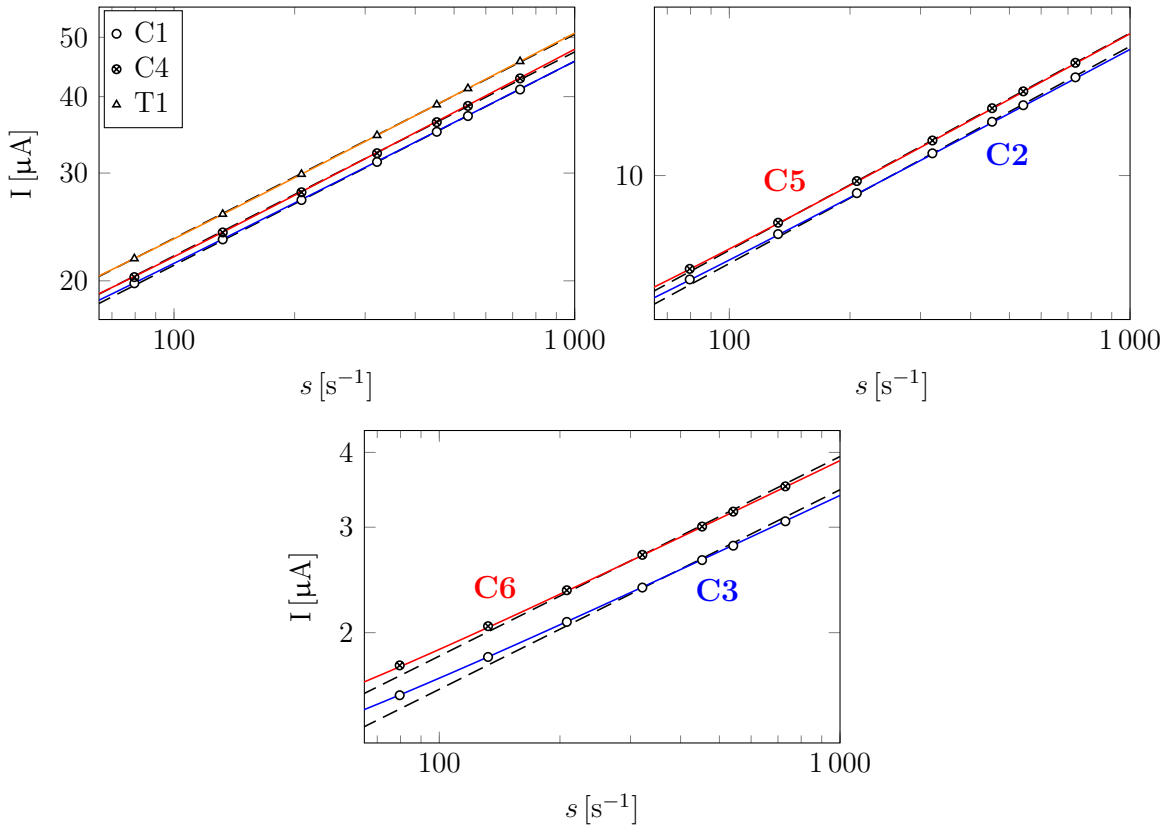


Figure 6.11 Étalonnage stationnaire des sondes ED. Les points de mesures sont représentés par les symboles. Les traits pointillés et pleins réfèrent respectivement aux formes quasi-stationnaire (6.16) et corrigée (6.17)

ont été obtenus en utilisant une solution de ferricyanure préparée plus d'un an auparavant. Aucune tendance ni changement notable n'ont été observés sur les valeurs des coefficients k_q au cours de l'année suivant sa préparation ; les variations étaient plutôt aléatoires, résultant fort probablement des opérations de polissage et de manipulation des sondes. Les valeurs des constantes d'étalonnage utilisées en Figure 6.11 sont rassemblées au Tableau 6.5.

Tableau 6.5 Constantes d'étalonnage en régime stationnaire associées à (6.16) et (6.17) et utilisées pour représenter les courbes en Figure 6.11

	T1	C1	C2	C3	C4	C5	C6
k_q	5.06	4.57	1.58	0.347	4.73	1.65	0.394
A	4.85	4.58	1.62	0.387	4.44	1.62	0.413
I_0	10.2	8.50	3.40	0.902	10.1	3.68	1.05
n	0.340	0.333	0.328	0.314	0.344	0.336	0.324

Étalonnage quasi-stationnaire

Considérant le fait que k_q peut varier durant une même campagne de mesure, il est préférable d'étalonner souvent les sondes. La procédure utilisée pour l'étalonnage en régime stationnaire peut toutefois demander un certain temps de stabilisation de l'écoulement entre les différentes consignes de débit, en plus de demander plusieurs mesures ED et LDA. Une procédure alternative, efficace et plus rapide, est ici proposée.

L'approche consiste à pulser légèrement le fluide de façon à générer un écoulement périodique à faible fréquence, où la vitesse de cisaillement $s(t)$ est connue. Les paramètres d'étalonnage peuvent ensuite être calculés de la même manière qu'en section précédente, en utilisant l'une ou l'autre des formes (6.16) ou (6.17), mais cette fois à l'aide d'une seule évolution temporelle plutôt qu'avec des données discrètes à différents débits ; les principales étapes sont schématisées par :

$$\text{Mesures temporelles de } \left.\begin{matrix} I(t) \\ s(t) \end{matrix}\right\} \quad \text{Moindres carrés} \quad \Rightarrow \quad k_\mathrm{q} \text{ ou } \{A,\, I_0,\, n\}$$

Certes, un certain déphasage sera inévitable entre la courbe obtenue suite à l'étalonnage $s_\mathrm{q}(t)$ et la valeur exacte $s(t)$ dû à l'inertie de la couche limite, ressenti même aux faibles fréquences. Cet effet est notamment observé en Figure 6.12 pour la sonde C1 ($d \simeq 0.5\,\mathrm{mm}$), tandis qu'il est pratiquement inexistant pour C3 ($d \simeq 0.1\,\mathrm{mm}$). On remarque également l'avantage considérable d'utiliser la forme (6.17) pour la sonde de petite taille, caractérisée par $Pe \sim 25$ fois plus faible que C1. Les paramètres d'étalonnage ainsi calculés demeurent toutefois similaires à ceux obtenus avec l'étalonnage traditionnel et offrent une évaluation aussi adéquate sur s_q. Outre la rapidité d'exécution, cette procédure est intéressante puisque l'étalonnage et les mesures subséquentes peuvent être effectués au même débit moyen ou $\overline{s}$. On notera enfin que l'amplitude des fluctuations doit demeurer faible pour minimiser les erreurs dans l'étalonnage puisque le rapport $\overline{I}/I_\mathrm{std}$ n'est parfois pas tout à fait unitaire (cf. Figure 5.8 et Kaiping, 1983), où l'indice « std » réfère au courant mesuré en régime stationnaire au même débit.

Étalonnage dynamique – Chronoampérométrie

Il a été vu en section 2.6.6 que la réponse d'une sonde ED à un saut de tension, aussi appelée chronoampérométrie, est une méthode rapide permettant de calculer un second paramètre d'étalonnage, k_cot, notamment utile dans la méthode de post-traitement de Sobolík. Cette technique est aussi souvent utilisée pour évaluer la diffusivité D d'un mélange. Les réponses

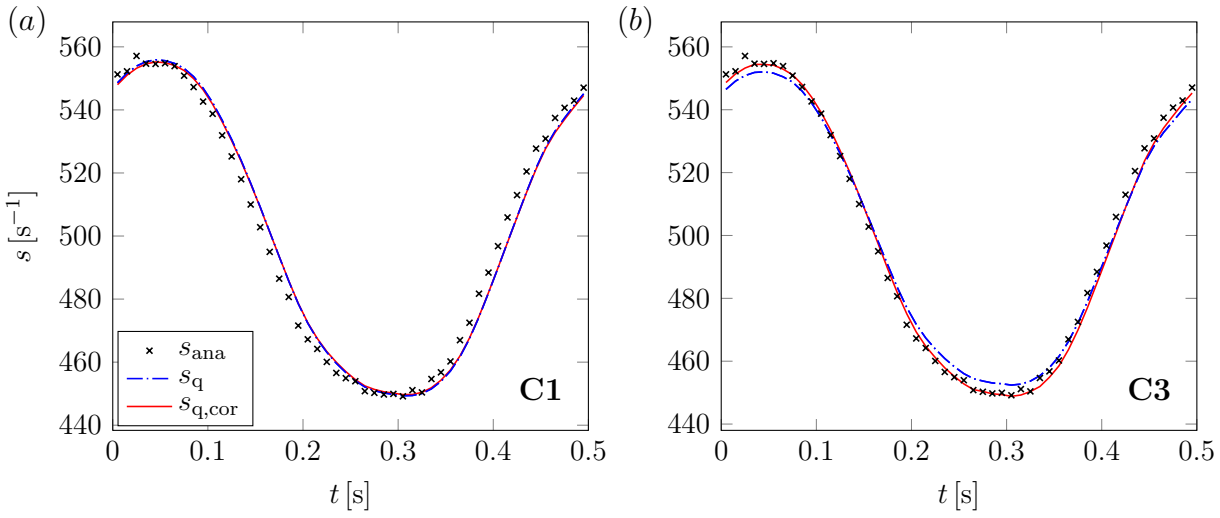


Figure 6.12 Courbes résultant d'un étalonnage quasi-stationnaire (traits pleins) pour les sondes (*a*) C1 et (*b*) C3, comparées à la vitesse de cisaillement exacte ou analytique s_{ana} provenant de mesures LDA et calculée avec (6.3). Les données LDA et ED ont été moyennées en phase ($f = 0.5\,\text{Hz}$)

des sondes C1, C2, C3 et T1 obtenues lors de ces expériences sont illustrées en Figure 6.13. On remarque d'abord que, plus la taille de la sonde est importante, plus large est la zone de concordance avec l'asymptote de Cottrell (traits pointillés) puisque l'inertie de la couche de diffusion est moindre pour une plus petite sonde ; elle sera donc affectée plus rapidement par les effets de convection (naturelle) et il sera parfois difficile de retrouver l'asymptote de Cottrell, comme observé pour C3. Une concordance satisfaisante est tout de même notée sur une décade. Ainsi, il est souvent préférable d'utiliser des sondes de plus grande taille en chronoampérométrie, pratique également suggérée par Legrand *et al.* (2000). Ces sondes sont aussi moins affectées par l'empoisonnement (voir ci-bas). Le décalage observé en début d'expérience ($t \lesssim 10^{-3}\,\text{s}$) peut s'expliquer par la très mince couche de diffusion à ces instants, où δ_c peut ici être de l'ordre de la rugosité de surface comme observé en Figure 6.14. L'aire *effective* de la sonde peut ainsi se rapprocher de l'aire microscopique A_m (cf. section 2.6.8), amplifiant le courant mesuré durant les premiers instants (Figure 6.13).

Les phénomènes d'adsorption sont très courants en chronoampérométrie et peuvent fortement altérer le signal obtenu avec une sonde empoisonnée, comme démontré avec les sondes actuelles en annexe H. Il semblerait que la cause première de ces effets soit ici l'oxygène dissout dans la solution. Un étalonnage à l'aide de l'asymptote de Cottrell n'est donc plus valide en utilisant un capteur empoisonné, où la valeur du paramètre k_{cot} ainsi déterminée est faussée par les effets d'adsorption. D'ailleurs, l'asymptote peut même devenir impossible

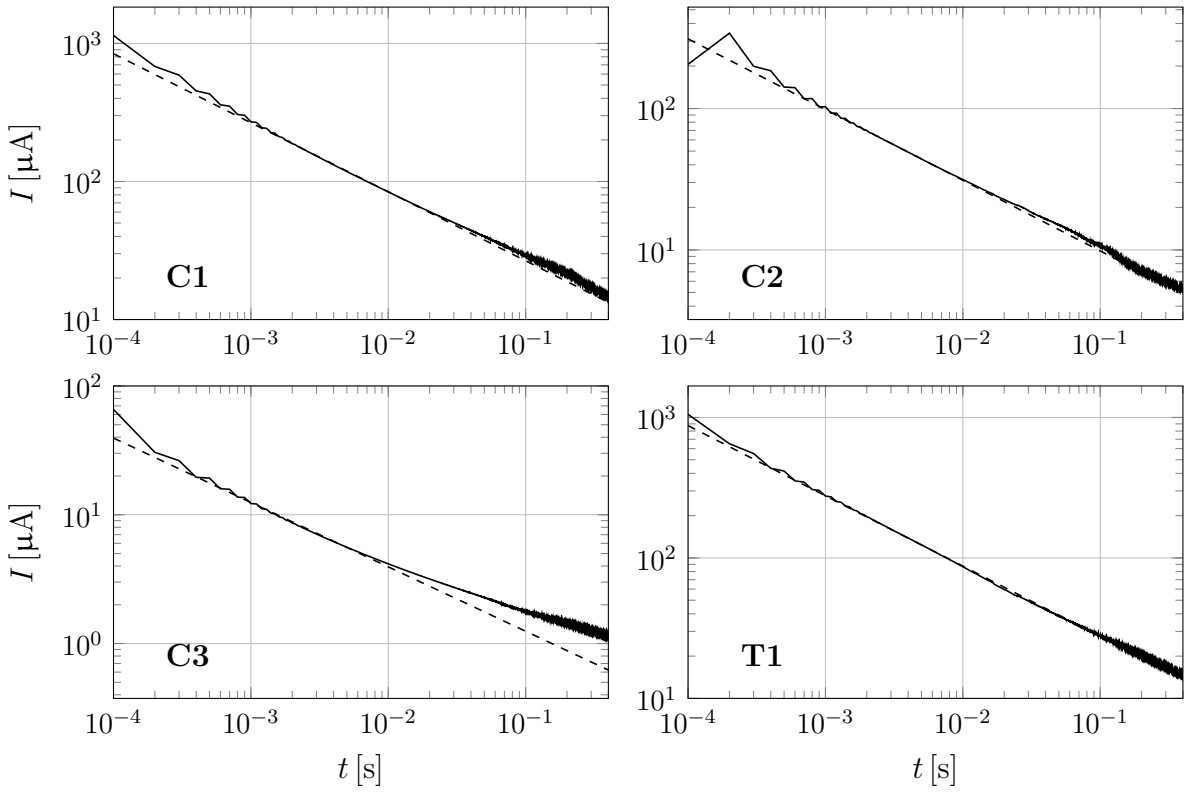


Figure 6.13 Essais de chronoampérométrie pour quatre sondes ED différentes, effectués dans une solution au repos. La courbe de la sonde T1 provient de la somme du courant des trois segments

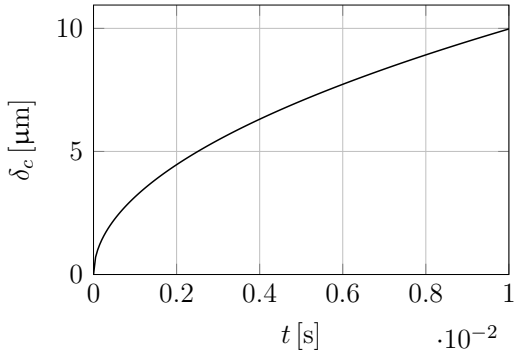


Figure 6.14 Épaississement de la couche de diffusion suite à un saut de tension selon la 2$^{\text{e}}$ loi de Fick, soit $\delta_c \simeq 3.64(Dt)^{1/2}$, considérant δ_c à une hauteur y telle que $c(y,t) = 0.99C_0$ (cf. section 2.5.2) ; $D = 7.5 \times 10^{-10}$

à positionner avec une telle courbe. Considérant ces effets rapides d'absorption (cf. annexe H), la chronoampérométrie n'a pas été utilisée durant les campagnes de mesure ; lorsque nécessaire, l'évaluation de s_{sob} était effectuée en utilisant directement les valeurs de A et D

calculées. Bien qu'il a été constaté qu'un nettoyage neutralise les effets d'empoisonnement, cette procédure occasionne nécessairement un retrait puis un repositionnement de la sonde, ce qui est fortement déconseillé et demanderait d'étalonner les sondes de nouveau. La chronoampérométrie a tout de même été utilisée pour mesurer la valeur du coefficient de diffusion D, qui s'est avérée être très près des valeurs tabulées (cf. section 2.6.7), soit

$$D \simeq (7.63 \pm 0.37) \times 10^{-10}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}, \tag{6.18}$$

valeur moyenne obtenue avec les sondes C1 et C4 et où l'incertitude tient compte d'une erreur de 4 % sur les valeurs obtenues pour k_{cot} et de 2 % sur la valeur de l'aire A. Avec $\mu = 1.01 \times 10^{-3}\,\mathrm{Pa\,s}$ à $T = 21.8\,^{\circ}\mathrm{C}$, on obtient un rapport

$$\lambda = D\mu/T = (2.60 \pm 0.15) \times 10^{-15}\,\mathrm{N\,K^{-1}}. \tag{6.19}$$

La procédure utilisée pour les mesures de chronoampérométrie consiste à

1. effectuer les étapes 1 à 4 de pré-traitement, décrites en section 6.4.3 ;
2. installer la sonde dans la cellule ;
3. attendre quelques minutes avant la mise sous tension afin que la température de la sonde se stabilise à celle de la cellule.

Chacune de ces étapes est importante et essentielle afin d'obtenir des résultats qui soient reproductibles pour k_{cot}. En particulier, considérant qu'un empoisonnement de sonde apparait rapidement, ces étapes devraient être effectuées avant *chaque* mesure.

Propriétés directionnelles des sondes tri-segmentées

Le dispositif supportant les sondes ED a été conçu de façon à permettre leur rotation tout en assurant l'étanchéité du canal ED. L'étalonnage a été effectué à température et débit constants. Il consiste à varier l'orientation d'une sonde tri-segmentée par rapport à la direction de l'écoulement, par exemple en tournant la sonde par incrément (ici, 15°) et en mesurant à chaque position le courant I_m traversant chacun des segments m. De telles évolutions du courant en fonction de l'angle α sont illustrées en Figure 6.15 pour les sondes T1 et T2, où les mesures sont normalisées avec le courant total à chacune des positions ($i_m = I_m / \sum I_m$). Dans les deux cas, un certain écart est observé avec les courbes théoriques (i_{theo}, pour une sonde parfaitement cylindrique sans interstice) proposées par Wein et Sobolík (1987), écart considérablement plus important pour la sonde T2. Les propriétés directionnelles des sondes peuvent ensuite être obtenues en représentant chacune des évolutions avec une série de Fourier. Dans une telle situation, les propriétés directionnelles sont alors définies par les coefficients de

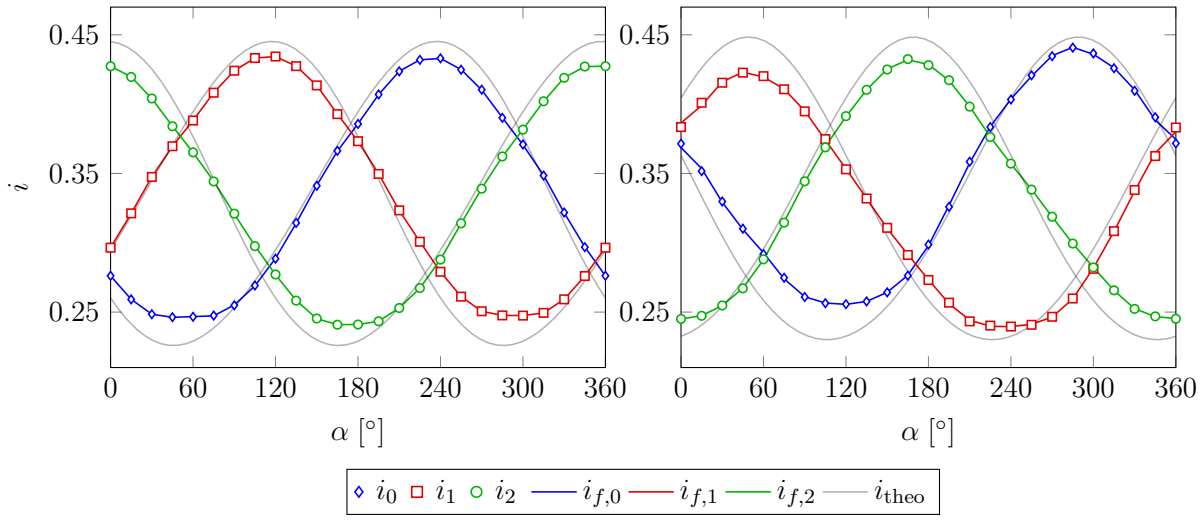


Figure 6.15 Étalonnage directionnel des sondes tri-segmentées T1 (gauche) et T2 (droite). Les symboles réfèrent aux mesures de courants normalisés des différents segments ; les courbes d'étalonnage de chaque segment sont représentées par les traits pleins de couleur

Fourier ainsi calculés. Les courbes d'étalonnages $i_{f,m}$ caractérisées par ces coefficients sont également illustrées en Figure 6.15.

6.5 Validation expérimentale du problème inverse

La version unidimensionnelle du problème inverse sera étudiée dans cette section et concerne les sondes simples circulaires. On cherchera d'abord à valider le problème lors du post-traitement de données expérimentales. Les procédures proposées en chapitre 4 seront également testées, notamment celles permettant de traiter les changements de sens du cisaillement. Pour ce faire, un écoulement exposant des variations périodiques du gradient pariétal de vitesse a été généré dans le canal ED, caractérisé par des fluctuations d'amplitude et de fréquence variables. Avec des mesures conjointes du transfert de masse et de vitesse LDA, les résultats du problème inverse ont ainsi pu être comparés à des mesures de référence du gradient pariétal de vitesse instantané. La Figure 6.16 présente les résultats obtenus pour diverses conditions d'écoulement dont les principales caractéristiques sont résumées en Tableau 6.6. Toutes les mesures ont été moyennées en phase pour réduire le bruit aléatoire dans les signaux. L'adimensionnement des mesures (Sh^*_{exp}) a été effectué à l'aide d'une approche similaire à l'*étalonnage numérique*, laquelle sera présentée en chapitre suivant. Pour le moment, le lecteur peut considérer qu'une relation de la forme $Sh^*_{\text{exp}} = aI + b$, comparable à (2.47) avec l'ajout d'un paramètre b pour les faibles Pe, a été utilisée pour l'adimensionnement ; les constantes a et b sont calculées au moyen d'un étalonnage. On référera le lecteur à la Figure

Tableau 6.6 Paramètres associés aux cas expérimentaux présentés en Figure 6.16

			C1		C2		C3	
Cas	f (Hz)	$S<0$?	Pe $\cdot 10^{-5}$	Sr	Pe $\cdot 10^{-4}$	Sr	Pe $\cdot 10^{-3}$	Sr
(a)	0.5	non	1.42	0.04	3.98	0.03	6.61	0.02
(b)	8.0	non	1.01	0.85	2.82	0.56	4.67	0.31
(c)	13.6	non	1.16	1.31	3.31	0.88	5.76	0.49
(d)	1.4	oui	1.46	0.12	4.10	0.08	6.80	0.04
(e)	3.0	oui	1.10	0.30	3.10	0.20	5.14	0.11
(f)	4.0	oui	1.21	0.38	3.40	0.25	5.64	0.13

2.10 pour un rappel des étapes du problème inverse.

Les trois premiers cas exposent des situations sans inversion du cisaillement, mais où l'amplitude des fluctuations demeure élevée en (a) et (b). Les mesures de transfert de masse ont été effectuées avec les trois sondes circulaires de diamètre différent C1, C2 et C3, lesquelles sont positionnées sur un même support (cf. Figure 6.8). On remarque d'abord que, en général, les résultats obtenus avec l'une ou l'autre de ces sondes sont très similaires lorsque traitées avec la méthode inverse comparativement à, par exemple, ce que prédit la méthode quasi-stationnaire, où la taille des sondes a davantage d'influence. En Figure 6.16(a) pour le cas basse fréquence, le gradient pariétal de vitesse instationnaire S_{inv} concorde parfaitement avec l'évolution analytique $S_{\text{ana}} = s_{\text{ana}}/\overline{s}_{\text{ana}}$. Sous une fluctuation 16 fois plus rapide et d'amplitude similaire (cas b), la méthode inverse retrouve très bien la contrainte imposée ; une faible sous-évaluation de l'amplitude est toutefois notée. Certaines causes pour ce léger décalage seront analysées dans le second article, qui suit en chapitre 7. Les conclusions sont similaires en (c), où la fréquence est encore plus élevée et l'amplitude plus faible [2].

Les sous-figures (d) à (f) présentent des situations où $s < 0$ dans certaines phases de la période. Il avait été noté en section 4.3.3 que de telles circonstances peuvent être complexes considérant le fait qu'une sonde ED simple ne devrait relever que l'amplitude du cisaillement. L'avantage de simuler numériquement la réaction à la sonde permet cependant d'avoir accès à une information supplémentaire, celle du sillage de la sonde, laquelle peut être utilisée pour détecter un changement de sens. Cet effet est toutefois à double tranchant : il s'accompagne d'une perte de sensibilité de la sonde considérant la concentration plus faible de l'espèce dans le sillage. Cela peut ainsi mener à des instabilités ou même à un échec dans la détection de l'inversion. Ces difficultés sont accrues lors du traitement de données expérimentales en raison des erreurs de mesure et autres phénomènes qui ne sont pas modélisés dans le problème. C'est

2. Dû à une limitation du système de pulsation.

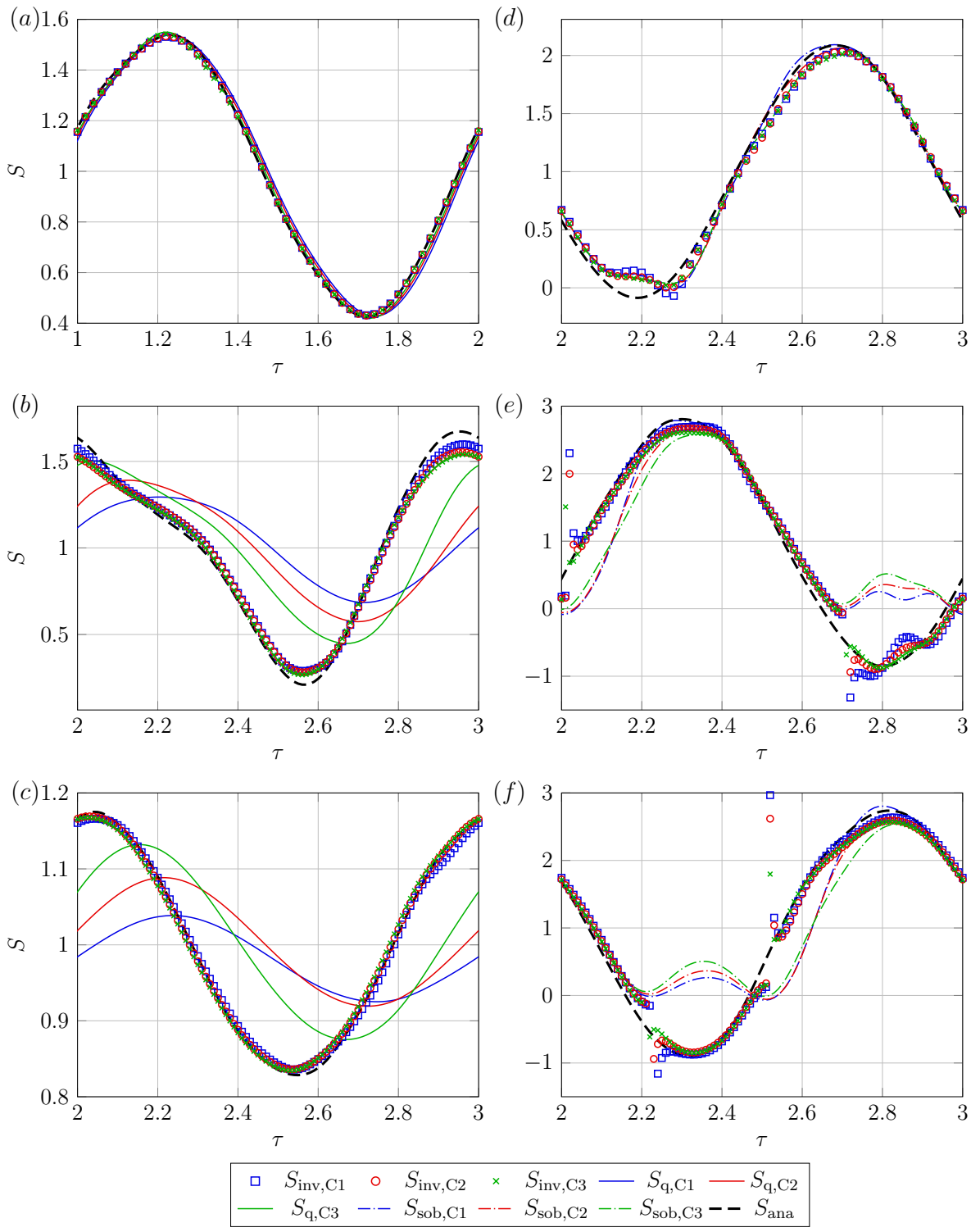


Figure 6.16 S_{inv}, S_{q} et S_{sob} dans diverses conditions d'écoulement (Tableau 6.6), pour trois sondes de diamètre différent. Les courbes S_{q} ne sont illustrées qu'en (a–c) et S_{sob} qu'en (d–f). Sauf pour (a), les résultats sont montrés après deux périodes du processus

ce qui est d'abord observé en Figure 6.16(d), où la méthode ne peut détecter un changement de sens si bref. Les très faibles effets convectifs pendant cette phase diminuent la sensibilité de la sonde, ce qui pourrait également expliquer l'effet de stagnation observé sur S_{inv} vers $\tau \simeq 2.2$. Les deux derniers cas ont été réalisés à amplitude bien plus élevée, impliquant par conséquent une phase d'inversion plus longue. Les variations intenses de S_{inv} observées près des changements de sens résultent de la première instabilité exposée en section 4.3.3, où le problème inverse a tendance à tomber sur la « mauvaise » solution ; on force donc ici le processus vers la bonne racine. Les évolutions ainsi obtenues concordent bien avec S_{ana}, mis à part ces instants d'instabilité. Il est intéressant de noter que ces instants ne sont pas exactement les mêmes pour chacune des sondes : ils surviennent généralement plus tôt pour le capteur de plus petite taille C3. De même, on remarque en (e) et (f) que le processus inverse converge plus rapidement sur S_{ana} après ces instants plus la sonde est petite, tout en montrant moins d'oscillations. Ces effets découlent de l'inertie moins importante pour ces capteurs, caractéristique qui peut également être notée par leur nombre de Strouhal inférieur (cf. Tableau 6.6). S_{sob}, le gradient pariétal de vitesse obtenu avec le post-traitement de Sobolík, est aussi montré dans les deux dernières sous-figures. Bien que ce post-traitement soit le plus juste et efficace des méthodes directes en présence de fluctuations de forte amplitude, on remarque en Figure 6.16 qu'il n'est toutefois pas valide lors d'un changement de sens du cisaillement. On notera que, dans les autres cas, les résultats avec la méthode de Sobolík sont très similaires à ceux obtenus avec le problème inverse et n'ont donc pas été présentés.

Une seconde procédure avait été proposée en section 4.3.3 pour faire face aux instabilités en présence d'une inversion du cisaillement et consistait à augmenter la taille du pas de temps. La Figure 6.17 illustre les résultats en utilisant cette approche pour les sondes C3 et C1, où

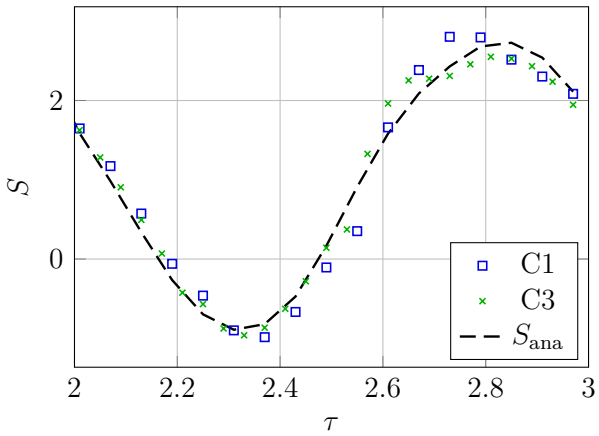


Figure 6.17 S_{inv} pour le cas (f) et les sondes C3 et C1 en utilisant un pas de temps quatre et six fois plus élevé dans le problème inverse, respectivement

la pas de temps est multiplié par un facteur quatre et six, respectivement. Ici, le problème inverse traverse les instants d'instabilité *sans* avoir à forcer le processus et la forme générale de S_{ana} est bien retrouvée. Des surévaluations sont toutefois notées, résultant du pas de temps trop grossier. Puisque Sr associé à C3 est beaucoup plus faible, un facteur quatre est suffisant pour cette sonde.

Les deux chapitres suivant seront consacrés à la validation expérimentale du problème inverse *bidimensionnel*, conçu de façon à déterminer l'orientation du cisaillement α en plus de son amplitude en utilisant une sonde tri-segmentée. Certains pré-traitements de données et adaptations de l'algorithme inverse y sont également présentés pour faire face à certaines difficultés expérimentales. On y expose également plus de détails sur le fonctionnement du canal ED et sur l'écoulement dans la section d'essai.

CHAPITRE 7 ARTICLE 2 – TWO-COMPONENT INSTANTANEOUS WALL SHEAR RATE MEASUREMENTS IN REVERSING FLOWS

Marc-Étienne Lamarche-Gagnon, Vaclav Sobolík, Jérôme Vétel

Cet article a été soumis au journal *Experiments in Fluids* le 15 septembre 2017.

Abstract

Validation experiments of the two-dimensional inverse algorithm proposed by Lamarche-Gagnon et Vétel (2017) are performed in a pulsed Poiseuille flow exposing shear reversal phases. The method is applied to the three-segment electrodiffusion (ED) probe for which a specific nondimensionalization process is suggested, allowing to better link measurements from a real ED probe to the modeled one in the inverse problem. This approach provided a two-component wall shear rate in good agreement with the one obtained from laser Doppler anemometry (LDA) measurements, thus validating the ability of ED probes to deal with high-amplitude unsteady flows. The classic linear velocity approximation ($u = sy$) in the probe vicinity is also investigated in such a flow.

7.1 Introduction

Measurement of wall shear stress in unsteady flows remains a challenge despite the many techniques developed in the last century (Naughton et Sheplak, 2002). When both its magnitude and direction are sought, when space and time resolutions are an issue, the number of reliable methods falls dramatically. Hot-film and electrodiffusion (ED) probes both allowed many authors to perform near-such measurements in turbulent flows (Mitchell et Hanratty, 1966; Alfredsson *et al.*, 1988; Sirkar et Hanratty, 1970; He *et al.*, 2011; Deslouis *et al.*, 2004), but none truly handled all the above concerns simultaneously. On the one hand, heat conduction to the wall considerably affects the hot-film unsteady response while, on the other hand, both hot-film and ED probes are not known to accurately assess the wall shear stress direction in unsteady flows, especially when dealing with large amplitude fluctuations.

Some methods introduced in recent years have the potential to overcome these difficulties in determining the magnitude and direction of instantaneous wall friction, in particular the ones developed by Große *et al.* (2006) and by Liu *et al.* (2014). The former captures the deflection of elastomeric micro-cylinders embedded in a wall using high-speed cameras, while

the latter evaluates the mass transfer caused by the sublimation of a paint overlaid on a surface. Although both of these methods are promising, their implementation may be rather complex and their scope is currently limited.

Lamarche-Gagnon et Vétel (2017) recently proposed a post-treatment method to deal with the so-called capacitive effects on each individual segment's signal of a three-segment ED probe, allowing one to obtain the proper instantaneous two-component wall shear rate in unsteady flows. The approach is based on an adaptation of the inverse method (Mao et Hanratty, 1991a; Rehimi *et al.*, 2006) to the two-dimensional wall shear rate. While the method was numerically validated by Lamarche-Gagnon et Vétel (2017), the main purpose of the present article is to demonstrate its ability to deal with a real three-segment probe signal and procure accurate measurements under periodic high-amplitude fluctuations of the wall shear rate, even in the case of shear reversal. In the following sections, the basis of the ED method and inverse algorithm will first be recalled. Then, the experimental apparatus and instrumentation will be introduced in section 7.2, followed with an investigation of the flow inside the test section and a description of the proposed nondimensionalization procedure. Section 7.3 presents the inverse method results for different experimental cases along with complementary wall shear rate measurements performed with laser Doppler anemometry (LDA). The linear velocity approximation, which is a fundamental principle in the ED technique, is also examined in cases involving flow reversal.

7.1.1 Principles of the ED method and main post-treatments

The ED method relies on the mass-transfer between a redox couple (O–R) contained in the solution and electrodes flush-mounted to a wall (Figure 7.1). When a sufficiently large voltage is imposed between the anode and the cathode, the reacting species at the probe surface is completely depleted ($c_{y=0} = 0$), resulting in local strong concentration gradients. Under such conditions, the electrochemical reaction rate is at its maximum and the so-called *limiting current* I flows through the electrodes and solution (Selman et Tobias, 1978). As the Schmidt number $Sc = \nu/D$ is very large in most ED cells ($Sc \sim 1000$), where ν is the kinematic viscosity and D the diffusion coefficient, one can expect the hydrodynamic boundary layer to be very thin when compared to the diffusion layer so as to assume a linear velocity profile $u = sy$ in the probe vicinity, with s the wall shear rate magnitude. When convection effects are dominant in a steady flow, the Lévêque or *quasi-steady* solution states that s is proportional to the cube of the current (Reiss et Hanratty, 1963), namely

$$s_q = (I/k_{\mathrm{q}})^3, \tag{7.1}$$

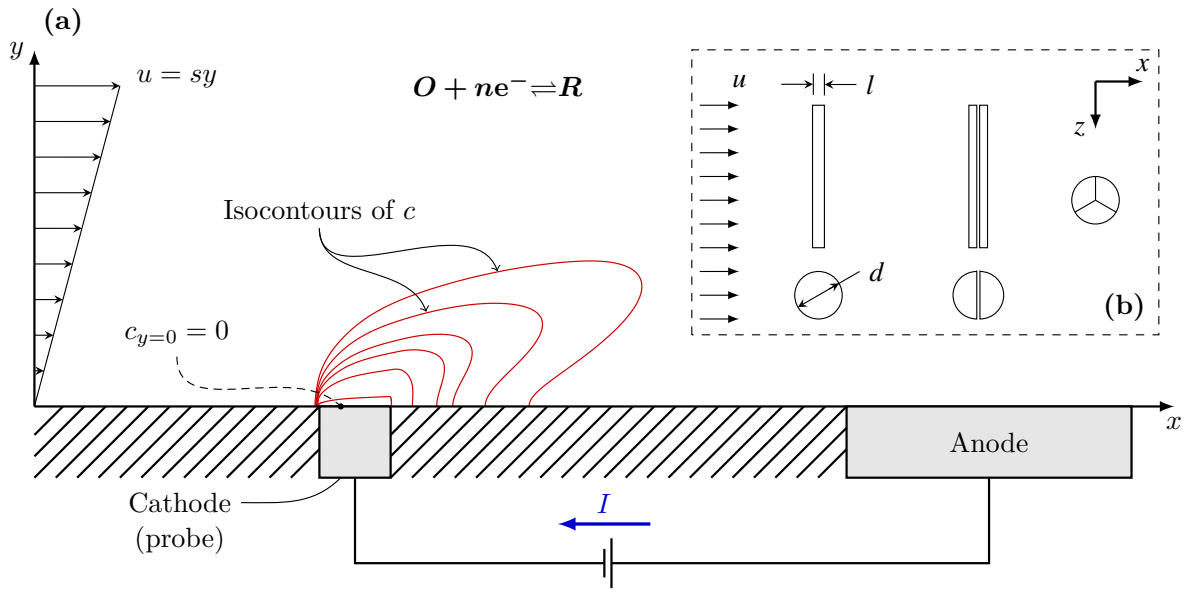


Figure 7.1 **a** Schematic of the ED method basis. **b** Types of probes, viewed from above. From left to right: single (rectangular and circular), double (or 'sandwich') and three-segment probes

with $k_\mathrm{q} = 0.80755nFAC_0l^{-1/3}D^{2/3}$ and where n, F, A, C_0, l respectively refer to the number of electrons involved in the reaction, the Faraday constant, the sensor area, the concentration in the bulk solution and the probe size, although constant k_q is also accessible through an appropriate calibration. When the flow is unsteady, the most common and accessible post-treatment, commonly known as the Sobolík method (Sobolík *et al.*, 1987), takes advantage of the signal time derivative to deal with the capacitive effects in the diffusion layer. The instantaneous wall shear rate then follows

$$s_\mathrm{sob} = s_\mathrm{q} + \frac{2}{3}\chi s_\mathrm{q}^{-2/3}\frac{\mathrm{d}s_\mathrm{q}}{\mathrm{d}t}, \tag{7.2}$$

with $\chi = 0.80755^{-2}\pi^{-1}l^{2/3}D^{-1/3}$ or, using the information from the Cottrell asymptote calibration (Sobolík *et al.*, 1998), can be written as $\chi = (k_\mathrm{cot}/k_\mathrm{q})^2$.

7.1.2 Statement of the problem

Sobolík method offers a straightforward correction and is fairly accurate even when unsteadiness is dominant, but fails in the presence of shear reversal. Moreover, when one also seeks the 360° shear direction using, for instance, three-segment probes (cf. Figure 7.1b), only the quasi-steady approach proposed by Wein et Sobolík (1987) is available, valid for low-frequency processes. The two-component inverse algorithm (Lamarche-Gagnon et Vétel,

2017) was developed especially to deal with high-amplitude unsteady flows where, from a single three-segment probe signal, both instantaneous wall shear rate magnitude s and direction α can be assessed. The aim of the present paper is to experimentally validate the inverse algorithm and further explore its limitations when treating real signals. Tests are performed in a high-shear rectangular channel, where the flow is controlled so as to generate periodic fluctuations on both s and α over a broad frequency range. The small channel size (height $\sim 3\,\mathrm{mm}$) allows one to produce a flow featuring a large time-averaged wall shear stress while preserving a laminar flow, which was essential to procure accurate reference values (cf. section 7.2.2) for calibration and validation purposes.

7.1.3 Inverse algorithm

Under normal ED conditions [1], mass transfer measured by an ED probe is essentially controlled by diffusion effects, which are manifested by concentration gradients in the probe vicinity (cf. Figure 7.1). The overall process is then governed by the convection–diffusion (CD) equation:

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla c = D\nabla^2 c \tag{7.3}$$

where $\boldsymbol{u} = sy\,(\sin\alpha\boldsymbol{i} + \cos\alpha\boldsymbol{k})$ and α is the wall shear rate direction; in its dimensionless form, one obtains

$$Sr\frac{\partial C}{\partial \tau} + SY\left(\sin\alpha\frac{\partial C}{\partial X} + \cos\alpha\frac{\partial C}{\partial Z}\right) = Pe^{-2/3}\left(\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2}\right) + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2}, \tag{7.4}$$

using the following dimensionless variables

$$\begin{gathered} X = \frac{x}{d}, \qquad Y = \frac{y}{d}Pe^{1/3}, \qquad Z = \frac{z}{d}, \qquad \tau = tf, \\ Pe = \frac{\overline{s}d^2}{D}, \qquad Sr = \frac{fd^{2/3}}{\overline{s}^{2/3}D^{1/3}}, \qquad S = \frac{s}{\overline{s}}, \qquad C = \frac{c}{C_0}, \end{gathered} \tag{7.5}$$

where d is the (equivalent) diameter of a circular (three-segment) probe, f is a characteristic frequency and Sr, Pe are the Strouhal and Péclet numbers, respectively. $\overline{(\sim)}$ indicates a time-averaged quantity over one period.

The *inverse problem* consists in iteratively solving the *direct problem*, i.e. the CD equation (7.4) at given Pe and Sr, by adjusting the input parameters S and α until the numerical results converge to the measurements, here represented by the Sherwood number of segment

1. i.e. when a background electrolyte is added in excess in the solution so as to counter migration of the O–R ions.

$m \in \{0, 1, 2\}$

$$Sh_{\text{exp},\,m} = \frac{I_m d}{nFADC_0} \tag{7.6}$$

or by the *modified* mass transfer coefficient

$$Sh^*_{\text{exp},\,m} = Sh_{\text{exp},\,m} Pe^{-1/3}, \tag{7.7}$$

while its numerical counterpart is evaluated using

$$Sh^*_{\text{num},\,m} = \frac{1}{A} \iint_{A_m} \left.\frac{\partial C}{\partial Y}\right|_{Y=0} dA, \tag{7.8}$$

with A_m the area of the discretized segment m while A stands for the total area. Sensitivity equations associated to (7.4), namely equations for $\partial C/\partial S$ and $\partial C/\partial \alpha$, are simultaneously solved in the algorithm to evaluate the appropriate corrections $[dS, d\alpha]$ at each time step. Figure 7.2 summarizes the proposed procedure. Note that for the remainder of the paper, the notation $M = Sh^*_{\text{exp}}$ and $Sh^* = Sh^*_{\text{num}}$ will be used for convenience unless otherwise specified. The reader is referred to the work of Lamarche-Gagnon et Vétel (2017) and Rehimi *et al.* (2006) for more details.

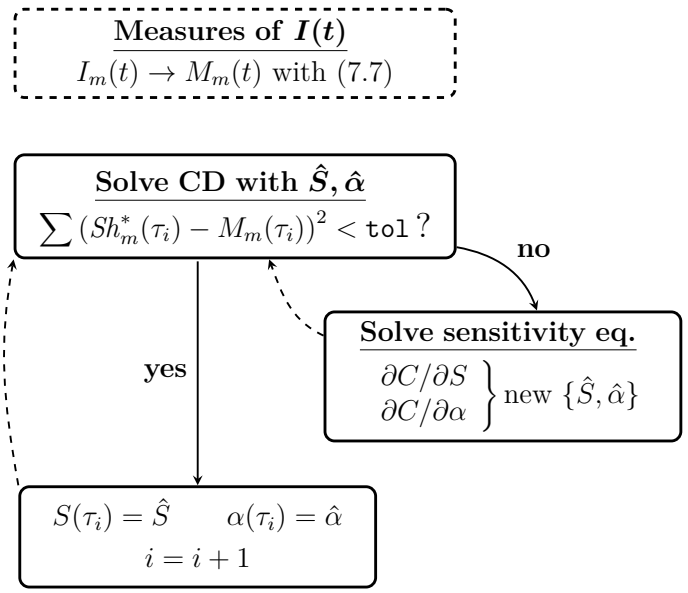


Figure 7.2 Main steps of the inverse algorithm. $M_m = Sh^*_{\text{exp},m}$ is the measured modified Sherwood number from segment $m \in \{0, 1, 2\}$. Superscript $(\hat{\sim})$ stands for a guessed value. Procedure is repeated for all time steps i until a tolerance `tol` is reached

7.2 Methodology

7.2.1 Setup and instrumentation

The small-scale water tunnel (Figure 7.3) of the fluid dynamic laboratory of Polytechnique Montréal (LADYF) was used for the mass transfer measurements. Fluid is first pumped to an elevated tank subdivided into sections so as to ensure a constant fluid head and isolate the main flow from the pump perturbations. The test section is part of a 2 m long rectangular channel of cross section 127×3.1 mm with an aspect ratio ~ 40. Velocity fluctuations in the test section are reduced thanks to a large settling chamber including a set of four screens with decreasing mesh size and one honeycomb. This is followed by a smooth two-dimensional contraction (fifth order polynomial curved walls with an area contraction ratio ~ 32). Overflow tubes in both the elevated and exit tanks ensure a constant fluid head, while the flow rate can be carefully adjusted using a low pressure drop electronic globe valve. A circulating bath coupled to a heat exchanger provides temperature control in the whole setup. Fully developed near two-dimensional Poiseuille flow is achieved at the electrodiffusion probes' location, positioned near the exit of the channel. Flow is maintained laminar for Reynolds numbers $Re = 4hu_{\text{axe}}/3\nu$ up to ~ 3500, with h, u_{axe} the channel height and the centerline axial velocity ($y = 0$), respectively. A piston pump driven by a stepper motor controls the unsteady motion of the flow; in particular, periodic high-amplitude fluctuations can be generated up to a frequency of ~ 20 Hz. Shear reversal in the test section was achievable for $f \lesssim 8$ Hz.

The provided three-segment probe was assembled according to the method of Sobolík *et al.* (1991). The working segments made of platinum are glued into an epoxy resin and mounted on a stainless steel rod, which also serves as the anode. The diameter of an equivalent circular probe having the same effective area as the three segments is close to 0.52 mm and was established using an optical microscope (see top of Figure 7.3a); this value is ~ 10 times smaller than the diameter of the stainless steel rod. Probes were first polished with fine emery paper, then using alumina slurries of decreasing particle size down to 0.05 µm. Routine polishing was executed using the finest slurry and, more frequently, by simply rubbing the probe surface with a soft cloth. Circular electrodes of three different diameters were also used for some experiments; all cathodes are mounted on the same type of rods (Figure 7.3a) and so the probes' location could be easily varied between each other. Sensors are positioned in the second half of the channel, referred to as the test section. This segment is characterized by a removable lid allowing control on the probes mounting, in particular to ensure that they are well flush-mounted. Considering the small channel size ($h \sim 3$ mm), great care is crucial when positioning the probes as a vertical displacement of ~ 0.1 mm could lead to

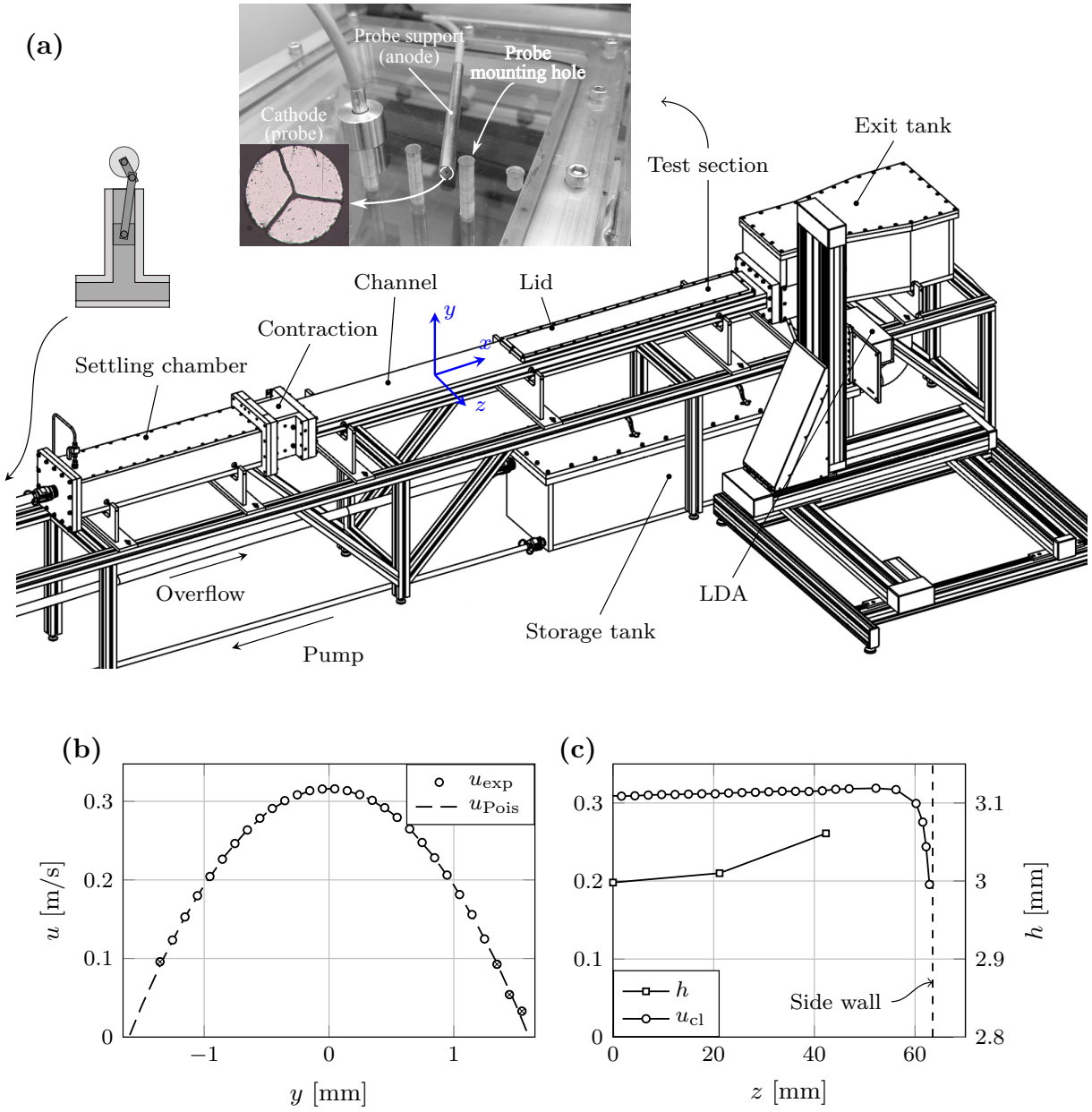


Figure 7.3 **a** Experimental apparatus. The photograph exposes the top of the test section with two ED probes. **b** Velocity profile $u_{\text{exp}}(y)$ at a position $z = W/6$, where the transverse coordinate $|z| < W/2$ and $W = 127\,\text{mm}$ is the inside width of the channel. Also shown is the Poiseuille profile resulting from a least-squares fit between (7.18) and measurements u_{exp}. $\otimes$ marks refer to the closest wall positions and were not used in the regression due to the greater measurement error. **c** Transverse velocity profile $u_{\text{axe}}(z)$ (at $y = 0$) and channel height measurements at the three probe's locations (see top of **a**)

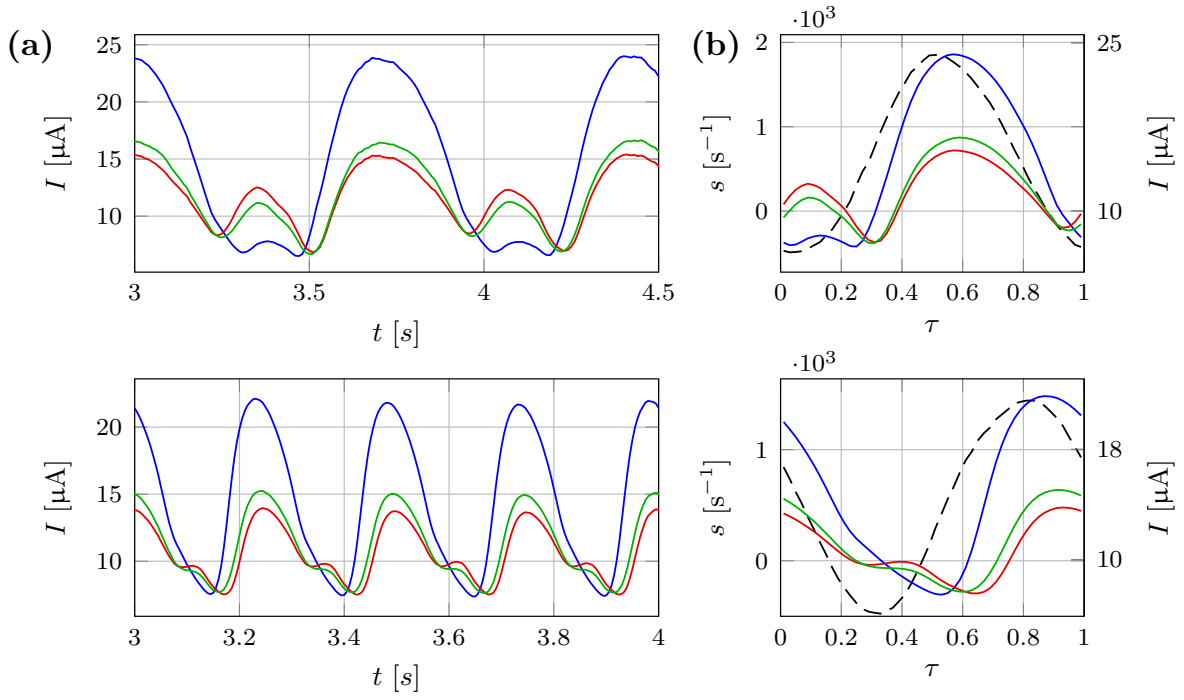


Figure 7.4 **a** Typical three-segment probe raw signals, each curve being the current of a different segment. A low sampling frequency f_s (top: case 0, $f_s = 100\,\mathrm{Hz}$; bottom: case 1, $f_s = 200\,\mathrm{Hz}$; see Table 7.1) combined with a high quality ADC ensured very clean high SNR signals. **b** Phase-averaged $I_m(t)$ and wall shear rate (dashed lines) signals

substantial errors on the probe signal. The redox couple ferricyanide–ferrocyanide was used as depolarizer using a bulk concentration $C_0 = 0.025\,\mathrm{M}$ (equimolar) in water. Reduction of ferricyanide at the working electrode (cathode) was considered, as per reaction

$$[\mathrm{Fe(CN)_6}]^{3-} + \mathrm{e}^- \longrightarrow [\mathrm{Fe(CN)_6}]^{4-}.$$

This was achieved under a potential of $-0.6\,\mathrm{V}$, corresponding to a central position in the limiting current plateau. $0.15\,\mathrm{M}$ of $\mathrm{K_2SO_4}$ was added to counter migration effects; such concentrations of the species, providing an overall fluid density $\rho = 1.03\,\mathrm{g/cm^3}$, was also chosen to match the LDA seeding particles density and hence produce a uniform particles distribution. Dynamic viscosity measured at $22.0\,^\circ\mathrm{C}$ was $\mu = 1.00 \times 10^{-3}\,\mathrm{Pa\,s}$. Diffusion coefficient obtained by chronoamperometry at this temperature was $D = 7.5 \times 10^{-10}\,\mathrm{m\,s^{-2}}$, which is very close to common tabulated values (Hanratty et Campbell, 1996; Bard et Faulkner, 2001). Mass transfer signals are amplified through a current follower and then recorded using a 24 bits low-noise ADC; sampling rate was varied from 100 Hz to 500 Hz depending on cases. Typical raw three-segment probe signals are illustrated in Figure 7.4.

The water tunnel was made especially for ED studies. Hence, all elements in contact with the fluid are made of chemical resistant plastic material such as PVC or PMMA. A laser Doppler anemometry (LDA) apparatus mounted on a 3D traverse was used for flow characterization, probe calibration and to provide a reference value for the unsteady wall shear rate (see section 7.2.2). The channel and test section are thus exclusively made of PMMA for LDA access from the side walls. As cast PMMA flatness on such long section is poor, upper and lower walls were first flatten and polished to a transparent finish, ensuring a surface roughness close to cast PMMA ($R_\mathrm{a} = 0.011\,\mathrm{mm}$). Note that the same properties hold for the test section as the whole process was conducted with the lid fastened to ensure a smooth transition. Although a finite gap is unavoidable at the test section inception because of the lid, LDA measurements in this region showed no significant flow perturbations.

All signals were synchronized by triggering the mass transfer probes recording using the LDA apparatus.

7.2.2 Wall shear rate reference value

Wall shear rate in steady two-dimensional laminar Poiseuille flow is expressed by

$$s = \frac{4u_\mathrm{axe}}{h}. \tag{7.9}$$

In regions where the flow is fully developed, s is thus available with a single LDA measure instead of, for instance, evaluating the velocity gradient very close to the wall. This latter method is here very imprecise considering the thickness of the LDA measurement volume ($\sim 0.1\,\mathrm{mm}$) compare to h, where strong velocity gradients are expected inside the volume itself; LDA errors in close wall regions are thus amplified (as observed in Figure 7.3b). The accessible distance from the wall is also limited by laser reflections. Since the velocity profiles $u(y)$ measured in the test section perfectly matches the theoretical Poiseuille equation (Figure 7.3b), the former method for evaluating s was assumed to be accurate. Quadratic regression on such a velocity profile was used to precisely position the laser on the channel centerline. Considering that errors associated with LDA velocity measurements at the centerline are small (low RMS and velocity gradients), the accuracy on s is thus limited by the precision on h, evaluated to $\sim 5\%$ or less. As per (7.9), this error proportionally affects s. Despite the carefulness in the fabrication process, upper and lower walls of the channel appear to be slightly curved in the transverse z direction, likely to be caused by the polishing procedure. This results in a slight variation of the channel height h between the side walls (located at $z = \pm W/2$) and the center ($z = 0$), with h being larger near the side walls; this variation is estimated to be lower than $0.1\,\mathrm{mm}$ (see Figure 7.3c). While counter-intuitive at

first, the augmentation of h goes with an acceleration of the centerline velocity $u_{\text{axe}}(z)$ as shown in Fig 7.3c, which effect has been confirmed by numerical simulations using a similar curved wall channel. Moreover, simulations confirm that the mean flow can be considered to be locally two-dimensional, namely that (7.9) holds using the local height $h(z)$.

Fluctuating wall shear rate: the analytical solution of the oscillating Poiseuille flow with null mean flow (over one period, $\overline{u} = 0$) is derivable (Schlichting et Gersten, 2000); in particular, for the developed flow between two parallel plates, the x momentum equation is reduced to

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial x} + \nu\frac{\partial^2 u}{\partial y^2}, \tag{7.10}$$

where a pressure gradient of the form

$$-\frac{1}{\rho}\frac{\partial p}{\partial x} = \sum_{n=1}^{N} K_n \sin(\omega_n t) \tag{7.11}$$

is imposed, with K_n a constant associated to a periodic solicitation of frequency f_n and $\omega_n = 2\pi f_n$. The pressure gradient is then defined as a combination of N harmonic oscillations of amplitude K_n. Using complex notation and supposing that the velocity profile $u_n(y,t)$, associated with frequency f_n, is of the form

$$u_n(y,t) = g(y)\mathrm{e}^{i\omega_n t},$$

(7.10) for velocity u_n becomes

$$g'' - g\frac{i\omega_n}{\nu} = \frac{iK_n}{\nu}. \tag{7.12}$$

Solving for g, the contribution $u_n(y,t)$ is obtained:

$$u_n(y,t) = -\frac{K_n}{\omega_n}\mathrm{e}^{i\omega_n t}\left[1 - \frac{\cosh\left(y\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}{\cosh\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}\right]. \tag{7.13}$$

By virtue of the superposition principle ((7.10) is linear), one can obtain the complete unsteady velocity profile by summing the contributions:

$$u(y,t) = \sum_{n=1}^{N} u_n(y,t). \tag{7.14}$$

From (7.13) and (7.14), the fluctuating wall shear rate is then given by

$$\begin{aligned} s(t) &= \left.\frac{\partial u}{\partial y}\right|_{y=\pm h/2} \\ &= \pm \sum_{n=1}^{N} \frac{K_n}{\omega_n} \mathrm{e}^{i\omega_n t} \sqrt{i\omega_n/\nu}\ \tanh\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right). \end{aligned} \tag{7.15}$$

Equations (7.13) and (7.15) hence suggest that $s(t)$ can be assessed from the time trace of the velocity $u(y,t)$ at a single y location over one period, considering that K_n are known constant values. In particular, a centerline velocity measurement is appealing, where (7.13) becomes

$$u(0,t) = -\sum_{n=1}^{N} \frac{K_n}{\omega_n} \mathrm{e}^{i\omega_n t} \left[1 - \frac{1}{\cosh\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}\right]. \tag{7.16}$$

The flow being periodic, measures of $u_{\mathrm{axe}}(t) = u(0,t)$ can be decomposed in Fourier series. Using (7.16) along with the Fourier coefficients so-obtained, the K_n constants can be determined and then used in (7.15) for $s(t)$ evaluation. Although this has been developed considering a two-dimensional flow, the 3D effects caused by the walls curvature described earlier only has little effect on u considering the small variation of $h(z)$ and the cosh value in (7.16). This has also been verified numerically and experimentally, where the unsteady $u_{\mathrm{axe}}(t)$ is rather constant in the transverse direction away from the side walls.

When a non-zero time-averaged pressure gradient is added to (7.11), one could expect the velocity profile to be the sum of an unsteady part $u'(y,t)$ as per (7.14) and the steady Poiseuille profile, namely

$$u(y,t) = \overline{u}(y) + u'(y,t) \tag{7.17}$$

with

$$\overline{u}(y) = \overline{u}_{\mathrm{axe}} \left[1 - \left(\frac{2y}{h}\right)^2\right]. \tag{7.18}$$

Equation (7.17) has been verified experimentally with LDA measurements of unsteady velocity profiles at different pulsation frequencies. Data were phase-averaged to reduce random noise in the signals. As LDA sampling is irregular and essentially a function of the fluid velocity, more periods were required for positions closer to the walls, where

1. fluid velocity is lower, reducing the sampling rate and

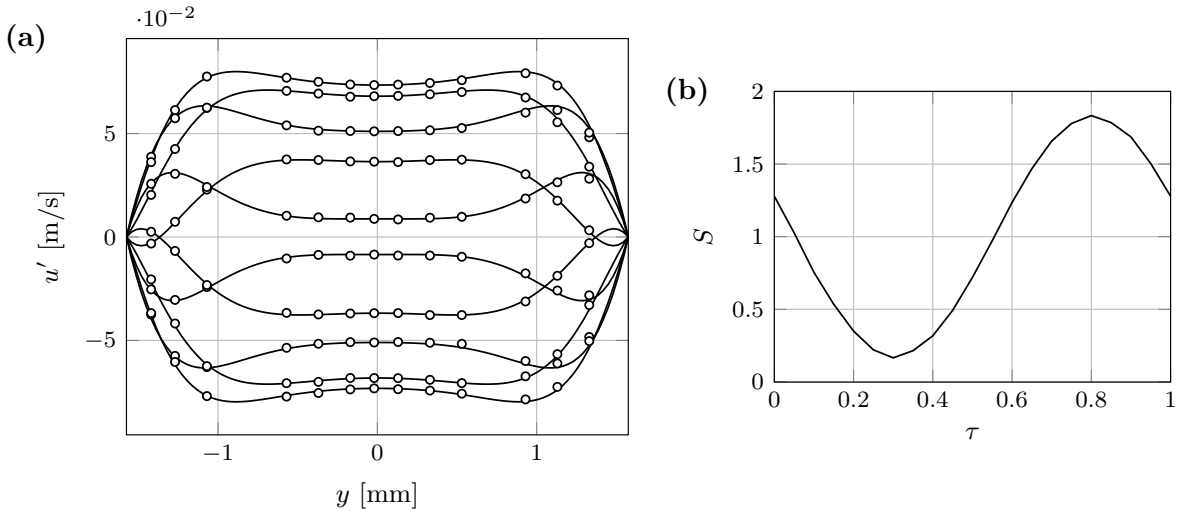


Figure 7.5 **a** Fluctuating velocity with height inside the test section of the periodically pulsated channel flow ($f = 3\,\mathrm{Hz}$, $\overline{u}_{\mathrm{axe}} = 0.32\,\mathrm{m/s}$, $Re = 1375$). Analytical solution (7.14) is represented by solid lines and is plotted at different instants in the period. Circular marks correspond to phase-averaged LDA instantaneous measurements at those same instants, subtracted with the time-averaged value $\overline{u}(y)$ at the corresponding height y. **b** Corresponding dimensionless wall shear rate S plotted over one period of oscillation, calculated with (7.15) and normalized with its time-averaged value. Note that a similar concordance between (7.14) and LDA measurements is also observed for cases exposing shear reversal

2. velocity gradients are stronger, enhancing the measurement error and intensity of random noise.

Between 100 and 1000 periods were used depending on the signal quality and frequency for a proper convergence of averages. Strong concordance is observed between measurements and the analytical model given by (7.14) [2] for positions near the channel centerline ($y = 0$), while more disparities are observed closer to the wall (see Figure 7.5a). This is to be expected since the centerline position is used as reference in the Fourier decomposition. Nevertheless, an offset as low as 0.02 mm on the y positions close to the wall in (7.13) and (7.18) would produce a perfect fit with the analytic model. While such error could be attributed to the traverse mechanism, the exact cause for theses discrepancies remains unknown. Considering the overall measurement errors, we shall consider that (7.17) adequately represents the experimental flow.

With (7.17) validated, one could further expect that the unsteady wall shear rate be the combined effect of the time-averaged $\overline{s}$ of (7.9) superposed with an unsteady s' from (7.15),

2. (7.14) instead of (7.17) is compared to better visualize the differences with the measurements. A similar concordance is also noted for the complete profile (7.17).

namely

$$s(t)|_{y=\pm h/2} = \mp\frac{4\overline{u}_{\text{axe}}}{h} \pm \sum_{n=1}^{N} \frac{\lambda_n K_n}{\omega_n} \mathrm{e}^{i\omega_n t} \tanh\left(\lambda_n h/2\right). \tag{7.19}$$

with $\lambda_n = \sqrt{i\omega_n/\nu}$. Once again, this extension is based on a two-dimensional flow and experimental validation would corroborate its usage considering the curvature and side wall effects. Yet, a precise direct measurement of the instantaneous wall shear rate is hardly achievable, especially due to the channel size. (7.19) was then not validated experimentally, but numerical simulations for the oscillating laminar channel flow were again performed. Results exposed a strong concordance with the analytical model (7.19), where $s(t)$ was compared at different transverse positions using the local height $h(z)$ in both (7.9) and (7.15). Actually, as earlier exposed for the centerline fluctuating velocity $u'_{\text{axe}}(t)$, $s'(t)$ is almost invariant in the transverse direction owing to such minor variations of $h(z)$. This cannot be concluded for $\overline{s}$ whose value slightly increases toward the side walls ($\sim 1\,\%$ between, for example, positions $z = W/3$ and $z = 0$); such variations in the transverse direction is less than that of h itself considering $\overline{u}$ also increases with h (see (7.9) and Figure 7.3c).

In spite of the preceding discussions, (7.19) will thus be considered as the *true* wall shear rate; an error of $\sim 5\,\%$ is estimated on the mean wall shear rate $\overline{s}$, arising especially from the value of h. A typical $S(\tau)$ evolution is plotted in Figure 7.5b.

7.2.3 Nondimensionalization of the current I

Recalling (7.6), a simple or direct nondimensionalization method uses experimental data alone, namely

$$Sh_{\text{exp}} = \frac{Id}{nFAC_0D}, \tag{7.20}$$

which can essentially be written as $Sh_{\text{exp}} = KI$ with K a constant. However, this procedure is likely to lead to erroneous results or, at the very least, cause offsets on S and α during the inverse process because of the unavoidable errors in (7.20) parameters. First, d and A values are often deduced by optical means to obtain the so-called *geometric area* A_{geo} and its equivalent diameter for a perfectly circular probe, which does not account for potential inactive parts of the probes caused by probe poisoning (Selman et Tobias, 1978) or adsorbed species on its surface. Such effects are hardly quantifiable and tend to modify the *effective area* so-obtained. Moreover, it is of general opinion (Arvia *et al.*, 1967; Hanratty et Campbell, 1996) that the diffusion coefficient should not vary with the concentration of the constitutive species in the solution. Yet, we noted that the measured value for the ferricyanide diffusivity

can vary up to 20 % among authors, even when adjusting the temperature and viscosity effects using the Einstein-Stokes extension $D \propto T/\mu$. Methods like the rotating disk electrode or chronoamperometry (Cottrell asymptote) are common and accessible methods for measuring D, giving access to the *effective diffusivity* considering migration effects (sometimes non-negligible) and other phenomena that could occur within the diffusion layer (Selman et Tobias, 1978). While this could partly explain those discrepancies, diffusivity measurement is actually quite fastidious, mainly because the sensor area A is met in most methods and adsorption effects are especially important in those experiments; errors on A are thus reflected on D. Furthermore, ferrocyanide and, to a lesser extent, ferricyanide are known to deteriorate when exposed to light (Selman et Tobias, 1978; Berger et Ziai, 1983). Some authors detected a degradation of the ferricyanide concentration C_0 as much as 10 % following the first 2–3 days of the solution preparation, even when the solution was kept in a darkened room (Szánto *et al.*, 2008); later on, the degradation is much slower and the concentration tends to stabilize. On the present authors' experience, however, no such significant variations were observed when comparing for example values of the calibration coefficient k_q (see (7.1)) days even weeks following the preparation. Variations were observed indeed, but without an actual trend, suggesting that those were more likely caused by surface alteration of the probe from routine polishing processes or probe displacement during manipulations. This reinforces the hypothesis that deterioration of C_0 would mainly happen short after the solution preparation.

On top of the uncertainties discussed above, one should also consider the numerical modeling in (7.20). In fact, considering the existence of

1. electrical noises (DC and/or AC, potentially altering the measured current with offsets, gains and random noise);
2. parasite currents or side reactions caused by impurities in the solution;
3. phenomena restricting the reaction (i.e. limiting current condition not achieved ($C_\mathrm{probe} \neq 0$), probe poisoning, lost of active area),

one could suspect that the CD equation alone cannot take into account such complex effects. Even in a steady process, the ratio Sh/I, evaluated using the current from real probes and the Sherwood number obtained in the corresponding steady direct problem (same Pe, $S = 1$), can sometimes vary by $\sim 1 - 2\,\%$ per Pe decade as observed in Figure 7.6, leading to errors on $\overline{s}$ up to 6 % as per (7.1). Such an error on $\overline{s}$ will alter the conversion $I \to M$ using (7.6) and, accordingly, the resulting S and α after the inverse process. The form $Sh_\mathrm{exp} = KI$ suggested by (7.20) is thus questionable, especially if unsteady evolutions characterized by a more sophisticated dynamic are also considered. An additional calibration is then proposed to cover the gap between measurements and the numerical model, based on the form of

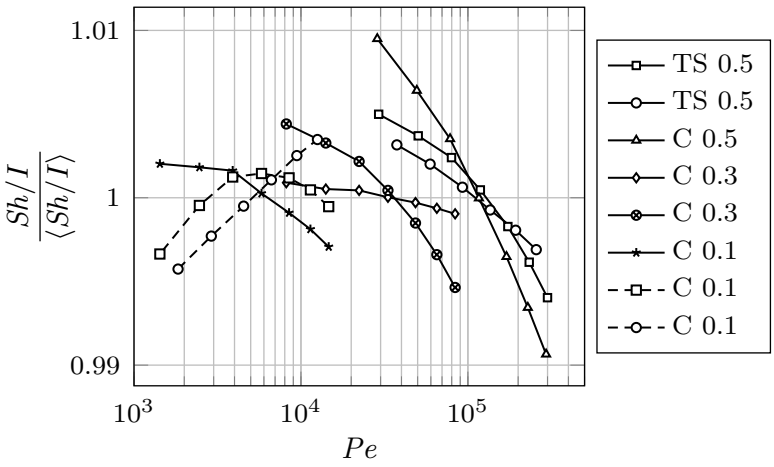


Figure 7.6 Ratio between numerical Sherwood number Sh and experimental current I at various Pe, normalized with the average value of the curve $\langle Sh/I \rangle$. Each mark corresponds to a different flow condition ($\overline{s}$) while curves and symbols refer to distinct probes. I measurements were made using six circular (C) and two three-segment (TS) ED probes; Pe is calculated with LDA measurements using $\overline{s}$ from (7.9) and with the corresponding diameter of the sensor (approximated values in the legend are in millimeters). Sh is obtained by solving the stationary direct problem at the corresponding Pe

(7.20):

$$M = G(Pe)(aI + b), \tag{7.21}$$

where the purpose of constants a and b is to adjust the measured current to match the numerical model and G is a function to correct for the Sh^* variation with Pe owing to axial diffusion effects, defined as

$$\begin{aligned} G(Pe) &= Sh_{\text{std}}(Pe_c)/Sh_{\text{std}}(Pe), \\ &\simeq (Pe_c/Pe)^{1/3}, \end{aligned}$$

with the c and 'std' subscripts referring to the calibration conditions and steady state values, respectively. The concept of this calibration is to match the measured current $I(t)$ from a quasi-steady process (for example, periodic oscillation of $s(t)$ at low-frequency and amplitude) with the equivalent $Sh^*(\tau)$ from the direct problem resolution at the corresponding conditions (same $S(\tau)$, Pe, Sr); constants a and b are then calculated by executing a least-squares regression between $Sh^*(\tau)$ and the function $F = aI + b$ to obtain the best fit between experimental data and the numerical model. The overall process is synthesized in Figure 7.7.

Such a procedure is even more interesting considering the usage of a three-segment probe,

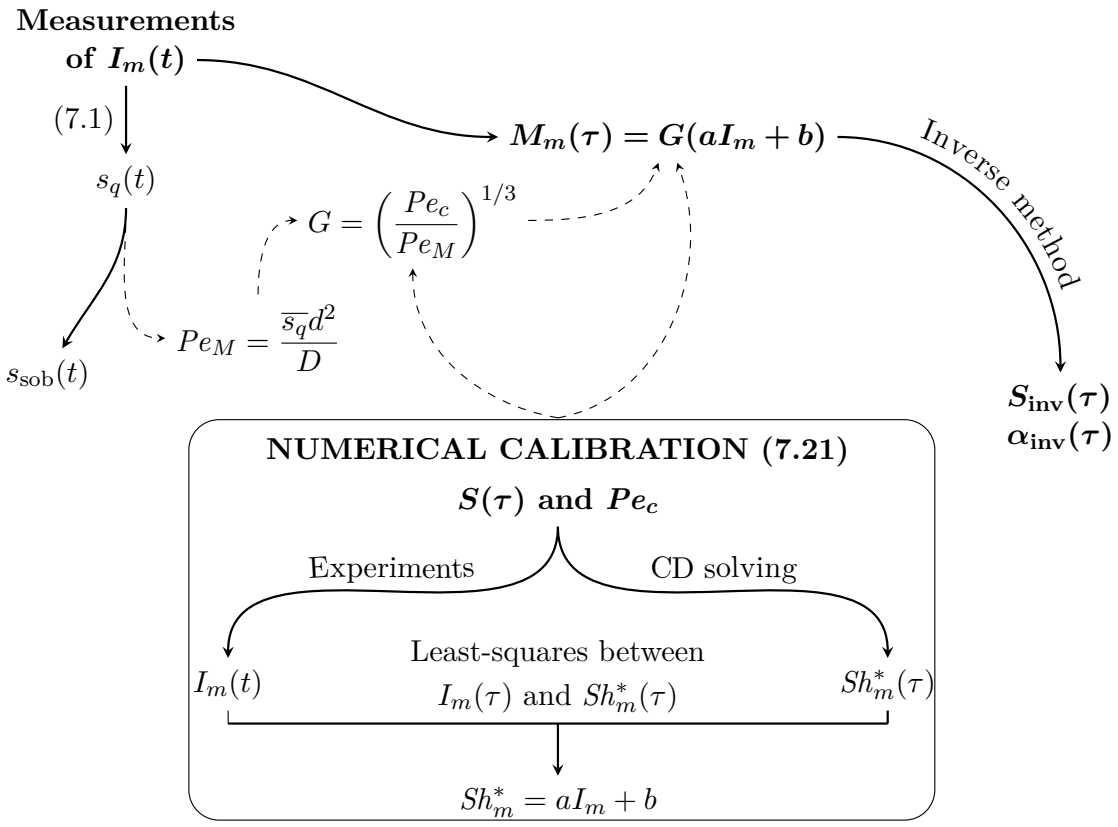


Figure 7.7 Proposed procedure for the nondimensionalization process

where different coefficients can be determined for each segment. Hence, three (a, b) couples are to be found, which will provide corrections for the geometrical discordances between each segment along with those between the real probe and the discretized one.

The two-component wall shear rate obtained with the inverse method when using the proposed numerical calibration are plotted in Figure 7.8b for a low-frequency, moderate-amplitude S variation. One can notice that results so-obtained are flawless for S, while only a minor variation ($\sim \pm 0.5°$) characterizes the $\alpha(\tau)$ evolution, oscillating around the mean quasi-steady flow direction $\overline{\alpha}_{\mathrm{q}}$ retrieved from a directional calibration (Wein et Sobolík, 1987) (which is here considered as the *true* direction considering the absence of shear reversal). Convergence of the inverse algorithm on the imposed fluctuations is fast and efficient, as a proper convergence for S_{inv} is already noted after the very first time step (Figure 7.8b). More time steps are although required at higher Sr (see section 7.3). Without the use of the numerical calibration in the inverse process (i.e. when using (7.20) instead), a proper convergence of all three Sh^*_m on the measured M_m is likely to fail. Acceptable results can be expected, though being distorted and shifted as observed in Figure 7.8a. Note that a similar *steady* numerical

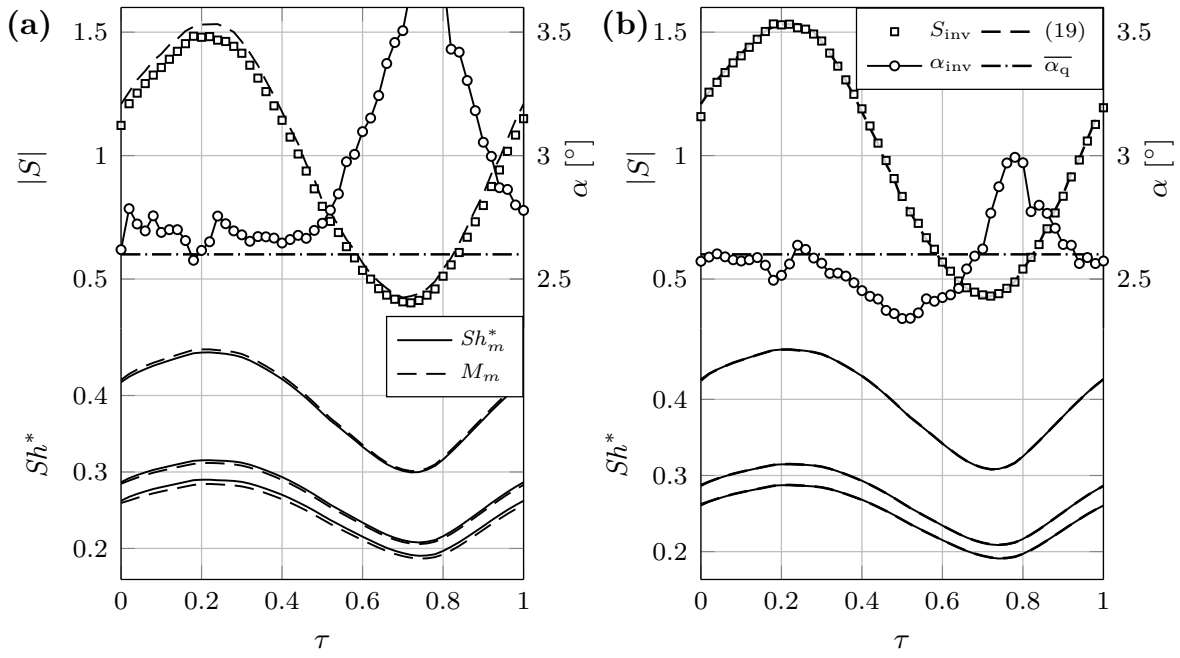


Figure 7.8 S, α and Sh^*_m obtained from the post-processing of a three-segment probe measurements with the inverse method at $Pe = 2.23 \times 10^5$, $Sr = 0.05$. Typical results when **a** direct conversion (7.20) is used and **b** the form of (7.21) is opted for. At convergence, Sh^*_m are shifted from the experimental values in **a** while the convergence is perfect in **b**, affecting the precision on both S and α. One should note that at higher Sr and larger amplitude on S (or α), discrepancies between M_m and Sh^*_m are likely to be amplified, especially when using (7.20). Are also present in top figures the analytical S from (7.19) along with the mean flow direction $\overline{\alpha}_\mathrm{q}$; no reference value was available for $\alpha(\tau)$

calibration is also possible, using for instance data from Figure 7.6. Least-squares could then be performed between $Sh(Pe)$ and $I(Pe)$. This would, however, not take into account potential dissimilarities in unsteady flows.

Besides, recalling (7.1), a proper probe calibration gives access to the time-averaged wall shear rate without the need for electrochemical parameters such as D, C_0, A and their associated errors, all regrouped in the constant k_q. While the same objective is intended for the numerical calibration (7.21), d and D are at least needed for the indispensable calculation of Pe and Sr. For large Pe and low Sr however, errors when evaluating those parameters only slightly affect the Sh^* values resulting from the direct or inverse problems considering their unimportant weight in the convection–diffusion and sensitivity equations; such flow conditions are thus recommended when performing the numerical calibration.

7.3 Results and discussion

While Figure 7.8 already demonstrated the effectiveness of the proposed procedure, advantages of using the inverse method are especially profitable when dealing with unsteady shear reversal or two-dimensional shear stress, as the combined Sobolík and quasi-steady solutions fail to procure valid results (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017). However, only the former case will here be considered, as the latter is not achievable in the current experimental setup.

Flow parameters for two cases involving shear reversal, which could be classified as low- and mid-frequency, are summarized in Table 7.1. One should first note that while the actual frequencies f associated with the present flows are rather low, this is not the case for the Sr number considering the size of the probe used (equivalent diameter $d \sim 0.5\,\text{mm}$). Recalling (7.4), $Sr \sim 1$ suggests that inertial effects are comparable to the diffusive ones in the y direction. Using a probe five times smaller, the associated frequency for the same Sr as case 1 would be $\sim 100\,\text{Hz}$. Inverse method's results for both cases are shown in Figure 7.9 along with the analytical wall shear rate deduced from LDA measurements using the procedure of section 7.2.2. While no reference values are available for α, reversal phases in those one-dimensional wall shear rate flows are characterized by $S_{\text{ana}} < 0$.

Table 7.1 Flow parameters used in the experiments

Case	f [Hz]	$\overline{s}\,[\text{s}^{-1}]$	$\lvert s'_{\text{max}}\rvert\,[\text{s}^{-1}]$	Pe	Sr
0	1.4	636	1220	2.29×10^5	0.135
1	4.0	528	915	1.90×10^5	0.436

Results plotted in Figure 7.9 for both cases show interesting resemblances with the analytical values. In particular, behaviors of both S and α are very well predicted in the lower frequency case of Figure 7.9a. Steep variations of α_{inv} accurately confine the shear reversal period compared to one predicted by the quasi-steady solution α_{q}, which is considerably out of phase even in the low-frequency case 0; such an effect was also noted in the numerical results of Lamarche-Gagnon et Vétel (2017). S obtained with the Sobolík method, not valid in reversing flows, also exhibits larger deviations from S_{ana}. Although not shown in Figure 7.9d, error associated with α_{q} and S_{sob} are more important at higher Sr. Main discrepancies regarding the inverse method results arise when the Sh^*_m curves cross each other. This first occurs in case 0 between segments 1 and 2 at $\tau \simeq 1.92$ (Figure 7.9b), merely after the inception of shear reversal, and a little later involving segments 0–1, then 0–2. During this transition, the Sh^*_m are of the same order of magnitude which, combined with the lower segment sensitivities at those low convection phases ($S \sim 0$), blurs the inverse process for a short period;

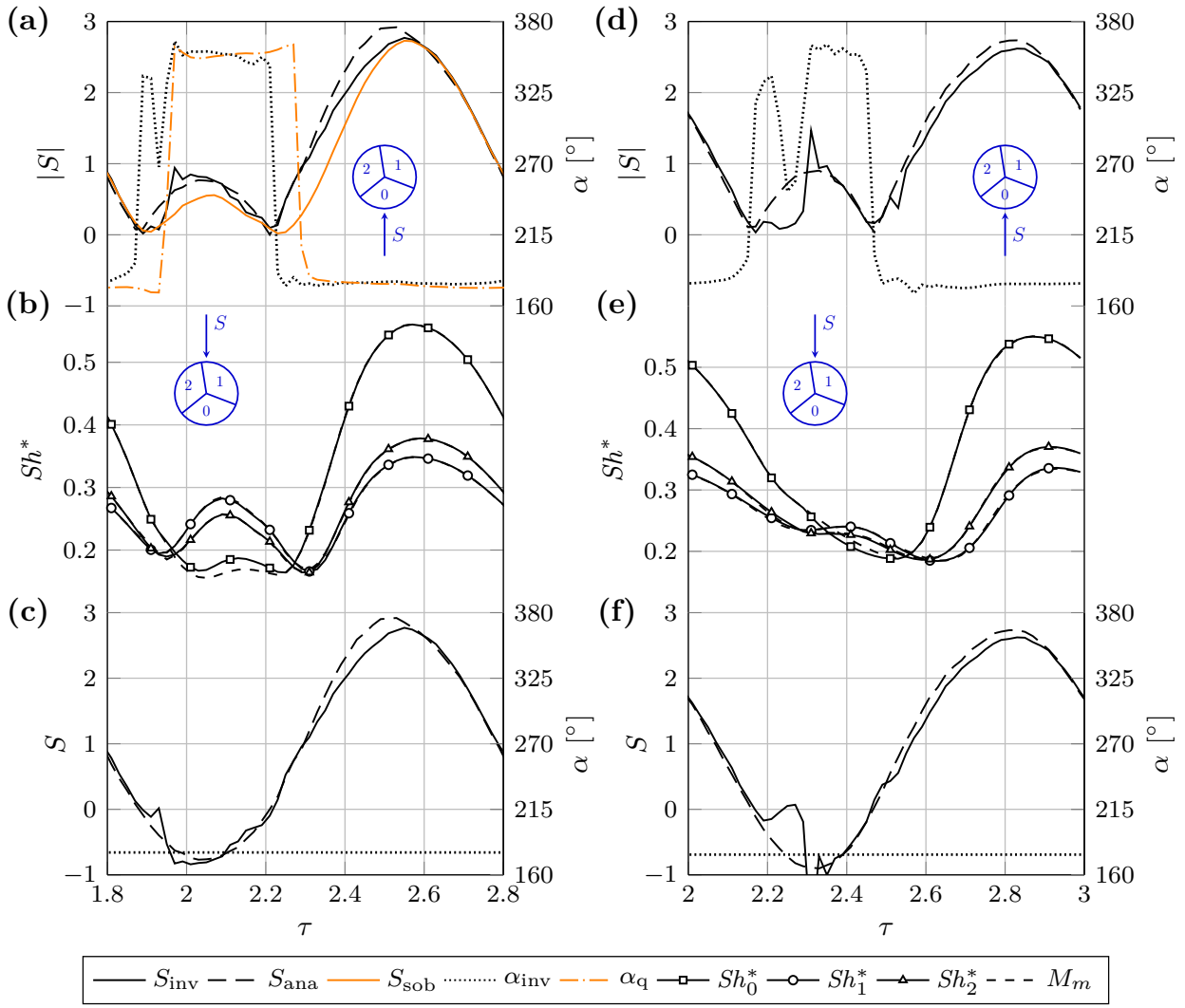


Figure 7.9 Results of the two-dimensional inverse method for **a, b** case 0 and **d, e** case 1. While S can take negative value in the process itself, only its magnitude is plotted; 180° is here added to α when $S < 0$. A one-dimensional inverse algorithm was used to procure results shown in **c, f** for cases 0 and 1 respectively, where only the signed wall shear rate S is solved for while α is set to the average direction in the forward flow phase

this is then followed by an unstable recovery marked with sharp spikes on both S and α, result of the lack of convergence as observed with the Sh_m^* evolutions. After such discontinuities, a few time steps are often needed to stabilize and converge back on proper values for S–α, here well exposed with the Sh_0^* curve. The following Sh_m^* intersections, occurring after the shear reversal period, still alter the progression. Results shown in Figure 7.9 were obtained after 2–3 periods of calculation after which no further convergence improvements

are observed. As these episodes happen at the same phases periodically, the inverse process can never completely converge on the exact Sh_m^* evolutions and hence on the 'true' S–α. In the higher frequency case (Figs. 7.9d–e), errors are more apparent in the shear reversal period, which could be explained by the lower sensitivities at higher Sr (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017). Furthermore, one can observe that the Sh_1^* and Sh_2^* curves are flattened and merely superposed during the reversal phase, adding to the blurring effect. Despite those convergence issues, overall evolutions are well predicted and it is interesting to note that, from such complex and phase shifted signals as the $I_m(t)$ curves shown in Figure 7.4, one is able to retrieve a proper two-component instantaneous wall shear rate.

Figures 7.9c, f show results of the inverse process when α is not solved for and a constant direction is imposed, which here corresponds to the average direction in the forward flow phase. This undoubtedly simplifies the inverse problem, the only unknown being the signed wall shear rate S. Results are very similar to those of Figs. 7.9a, d for S, without any significant improvement nor deterioration besides the enhanced convergence speed as less iterations are required in the inverse problem. However, one should notice that such a procedure is different than the one-dimensional inverse problem as performed by Mao et Hanratty (1991a) for the circular probe, since the flow direction is not imposed. All three signals are still used in the inverse process, hence improving the shear reversal detection. Obviously, this is only consistent for one-dimensional wall shear rate flows. One should further note that although the S and α evolutions of cases 0 and 1 can be considered one-dimensional, results with the present two-dimensional inverse problem demonstrate that the proposed algorithm can deal with very steep variations of the variables like those observed for $\alpha(\tau)$ in Figs. 7.9a, d. The fact that these sharp fluctuations occur when $S \sim 0$, i.e. when the probe sensitivity is the lowest, might also explain the poorer convergence in the shear reversal period. Investigations in flows exhibiting a more complex $\alpha(\tau)$ variation while featuring stronger convection effects should be performed to improve the method and complete the validation process.

7.3.1 Notes on discrepancies and measurement errors

Two main issues are essentially exposed in the results of Figure 7.9. Besides the lack of a proper convergence in the shear reversal period, one can also note that the maximal S value in both cases 0 and 1 is lower than the analytical one. While uncertainties associated with both ED and LDA methods along with those related to the analytical solution (7.19) might be enough to explain those discrepancies (cf. Fig 7.10), a few potential sources of error will be inspected in the following.

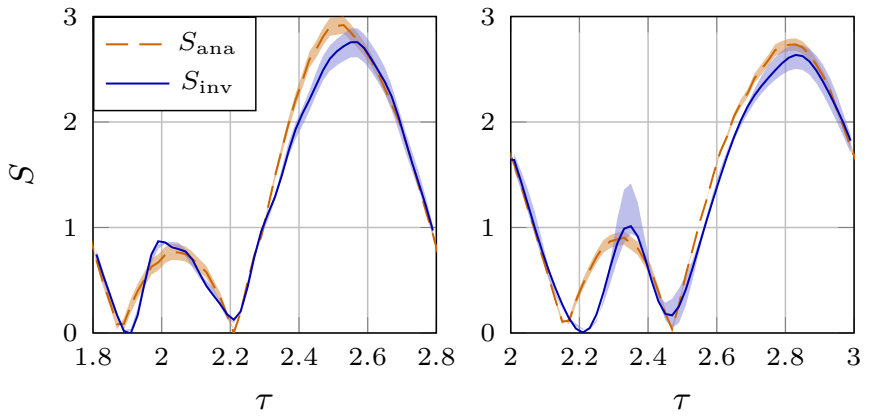


Figure 7.10 Errors associated with S_{ana} and S_{inv}, illustrated with filled areas for case 0 (left) and case 1 (right). Errors on S_{ana} is calculated using $h \pm 0.1\,\text{mm}$ in (7.19) while that on S_{inv} suppose a combined error of $\pm 5\,\%$ on the parameter d^2/D, which is found in both Pe and Sr definitions. Note that results were filtered for visualization purposes

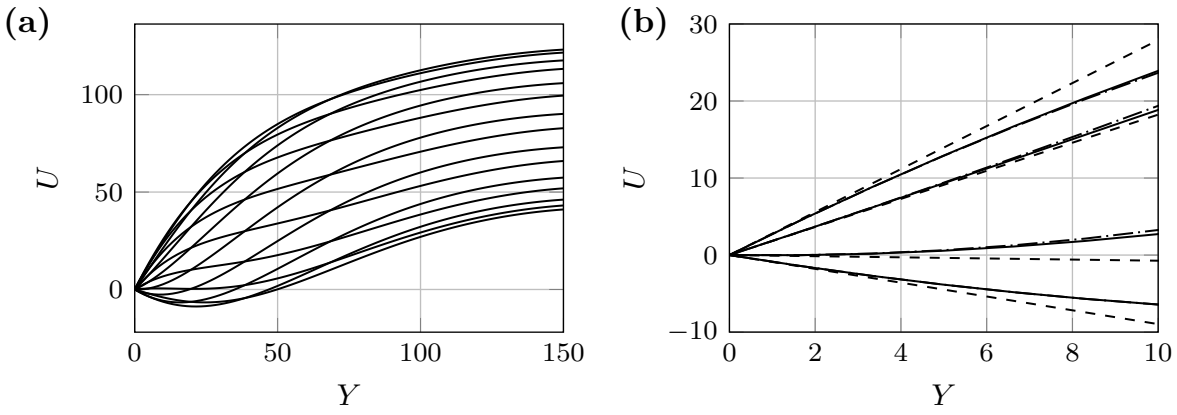


Figure 7.11 Analytical solution (7.17) for case 1. Velocity is nondimensionalized using (7.5) and so $U = uPe^{1/3}d^{-1}\overline{s}^{-1}$. **a** Velocity profiles in the channel's lower half at different phases. **b** Close up in the region $Y < 10$ for certain phases. Dashed lines represent the classical linear velocity profile $U = SY$; dashed–dotted ones are for the quadratic approximation (7.23)

One important hypothesis of the inverse method is the imposition of a linear velocity profile in the convection–diffusion equation. As observed in Figure 7.11b, considerable differences are noticed between the analytical velocity profile and a linear one at certain time steps. Although these are observed far from the major concentration gradients, located at $Y \lesssim 1$ in the steady-state diffusion layer, its thickness δ can grow much higher in reversal periods depending on the solicitation amplitude and frequency. Regarding case 1, the $C = 0.99$ contour line extracted from the numerical simulation can go up to $Y = 4$ above the probe (Figure 7.12). In this highly convective region, Figure 7.11 exposes larger discrepancies with

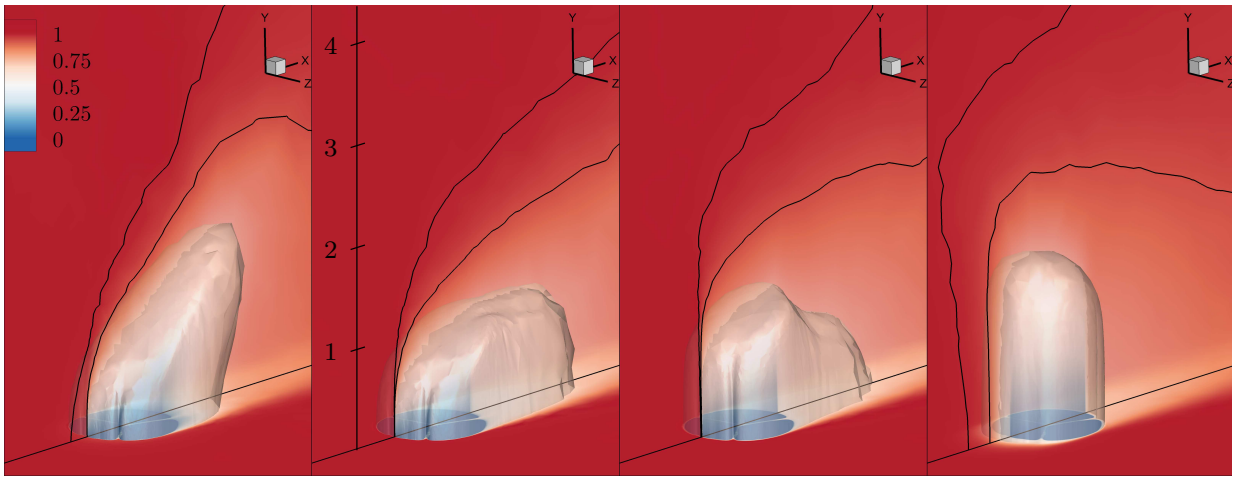


Figure 7.12 Concentration field associated with flow conditions of case 1 at four successive time steps. From left to right: $\tau = \{0.22, 0.44, 0.62, 0.98\}$. Black contour lines indicate $C = \{0.9, 0.99\}$. Also shown are the concentration iso-surfaces for $C = 0.7$

the analytical solution; one could then expect the linear velocity profile to alter the 'true' diffusion layer and hence the probe's response. A quadratic velocity profile constructed with the normal derivative of the analytical wall shear rate equation (7.15),

$$\begin{aligned} \frac{\partial s}{\partial y} &= \left.\frac{\partial^2 u}{\partial y^2}\right|_{y=\pm h/2} \\ &= \sum_{n=1}^{N} \frac{iK_n}{\nu} \mathrm{e}^{i\omega_n t}, \end{aligned} \tag{7.22}$$

is also shown in Figure 7.11b, offering a fairly more accurate approximation of the analytical solution in the region $Y < 10$. Such a velocity profile has then been employed in the direct problem equation (7.4), where the velocity U is replaced by its second order Taylor development at the wall, namely

$$U = SY + \frac{Y^2}{2}\frac{\partial S}{\partial Y}, \tag{7.23}$$

where, from (7.5), (7.18) and (7.22),

$$\frac{\partial S}{\partial Y} = \left(-\frac{2\overline{s}}{h} + \sum_{n=1}^{N} \frac{iK_n}{\nu} \mathrm{e}^{i\omega_n t}\right) \frac{d}{\overline{s} Pe^{1/3}}. \tag{7.24}$$

While $\partial S/\partial Y$ cannot be directly assessed from ED signals, it is interesting to note from (7.24)

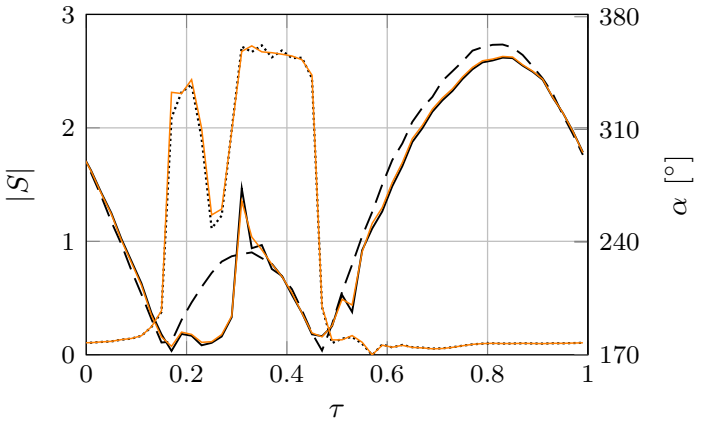


Figure 7.13 Effect of using a quadratic velocity profile (colored curves) in (7.4) compared to the linear one (black curves, same data and line patterns as in Figure 7.9a, case 1)

that it can be deduced from LDA measurements using the same K_n as the one calculated in (7.15). Alternatively, if one had access to instantaneous wall pressure measurements, no-slip condition allows to rewrite (7.10) so as to obtain the same information, that is

$$\frac{\partial s}{\partial y} = \frac{1}{\mu}\frac{\partial p}{\partial x}, \tag{7.25}$$

although this has not been tested experimentally. Hence, using (7.24) as additional information on the velocity profile curvature, one could then investigate its benefits on the inverse method results, if any. Note that the only change is the added term in the direct problem, while the inverse problem and algorithm stay unaltered. A quadratic velocity profile, where the curvature is known and imposed at each time step, was thus used in the post-processing of both cases 0 and 1. It was found (Figure 7.13) that although results so-obtained are closer to the analytical values, the amplitude of S only slightly increases and still does not match the analytical values, nor is the Sh_m^* convergence improved in the shear reversal period except from a somewhat smoother α evolution. Such interesting results, while unable to justify the aforementioned discrepancies, reinforce the validity of the ED fundaments and the method's application range; the linear velocity profile approximation in (7.4) thus remains adequate even when strong curvature characterizes the close-wall velocity profile.

As further verification, raw three-segment probe signals (see Figure 7.4a) were used in the inverse process instead of the phase-averaged one. Apart from additional noise in the results, similar evolutions as those observed in Figure 7.9 were obtained. Latest potential cause arises from the actual $I \rightarrow M$ conversion as per (7.21). Considering that the ratio Sh/I can vary with Pe as observed in Figure 7.6, the linear form of (7.21) may actually be too

elementary when both shear rate amplitude and frequency are large. Indeed, during phases when $S(\tau) > 1$, the local convection gets two to three times stronger than the average $\overline{S} = 1$ state (cf. Figure 7.9). One might then seek a form based on an unsteady Pe number which would consider the local flow acceleration at any time τ. The form of (7.21) or the overall calibration process may thus need to be revisited for further improvements. Moreover, considering that migration effects are not completely suppressed and that the Nernst diffusion layer [3] approximation in unsteady flows is questionable, equations (7.6) and (7.8) used to evaluate Sh^* might be to reconsider. Hence, the $I \rightarrow M$ conversion may be the main cause regarding the light attenuation of $S(\tau)$. Nonetheless, recalling the discussion of section 7.2.3 and the excellent results when $S > 0$ (cf. Figure 7.8), the proposed procedure definitely helps to reduce impacts of measurement errors.

On the other hand, convergence issues in the shear reversal period could also be explained by a lack of probe sensitivity due to the size of the interstices. Poorer convergence properties were indeed confirmed by numerical analysis when modeling the sensor with larger gaps (see also Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017). Furthermore, in the numerical tests conducted by Lamarche-Gagnon et Vétel (2017), the shear reversal was accurately predicted throughout the cycle in a similar reversing flow. Additional efforts should thus be committed to reduce the gap size of real three-segment probes and improve the experimental technique. The inverse algorithm itself should also be further investigated.

One should lastly note that in flows exhibiting shear reversal like cases 0 and 1, the use of the quasi-steady solution (7.1) for $\overline{s}$ evaluation leads to erroneous values for Pe and Sr. As a result, condition $\overline{S} = 1$ is not fulfilled after the inverse process, shifting $S(\tau)$ toward the value $\overline{S} = \overline{s}/\overline{s}_{\mathrm{q}}$, where $\overline{s}$ is the *true* time-averaged wall shear rate (see Table 7.2). A complementary method is then preferred for the measure of $\overline{s}$; otherwise, one could iteratively correct the average value after each period of the inverse process until $\overline{S} = 1$ is obtained, considering a proper numerical calibration was performed. Then only, one can expect that the corrected $\overline{s}$ value is appropriate following a converged inverse process. As such a procedure was irrelevant in the present study, $\overline{s}$ values were directly taken from LDA measurements.

7.4 Concluding remarks

The two-component wall shear rate under a high-amplitude pulsed channel flow was assessed with mass transfer probes. When post-processing the signals using the two-dimensional inverse method (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017), the resulting wall shear magnitude and

3. At the electrode surface, a stagnant diffusion layer δ is assumed (Bard et Faulkner, 2001), hypothesis at the basis of (7.6) and (7.8).

Table 7.2 Effect of the $\overline{s}$ value used in the nondimensionalization relation (7.5). When using the overestimated $\overline{s}_{\mathrm{q}}$ in the shear reversing cases 0–1, S obtained in the inverse process is down-shifted ($\overline{S} < 1$). $\overline{s}_{\mathrm{ana}}$, deduced from LDA measurements, can here be considered as the true value despite the 0.95 value obtained in case 0, which is attributed to inverse convergence issues and measurement errors discussed in section 7.3.1. Actual values are $\overline{s}_{\mathrm{ana}}/\overline{s}_{\mathrm{q}} \simeq 0.92$ for both cases 0 and 1 as per probe calibration

Value used for $\overline{s}$	$\overline{S}$ after inverse process		Actual $\overline{s}$ values [s^{-1}]		
	Case 0	Case 1		Case 0	Case 1
$\overline{s}_{\mathrm{q}}$	0.87	0.91	$\overline{s}_{\mathrm{q}}$	696	575
$\overline{s}_{\mathrm{ana}}$	0.95	0.99	$\overline{s}_{\mathrm{ana}}$	636	528

direction showed strong concordance with the known instantaneous values, available from LDA measurements. As the solicitation frequency was increased, the inverse problem presented some convergence issues in part of the shear reversal phase, leading to small discrepancies with the analytical solution. Some potential causes were examined. It was shown that the use of a quadratic velocity profile in such flows exposing shear reversal did not bring substantial improvements in the results, reinforcing the idea that the linear $U = SY$ profile should be sufficient in most applications. Fabrication of a sensor with smaller gaps should improve its sensitivity to shear reversal and facilitate the inverse process. A nondimensionalization procedure was also proposed when treating experimental data with the inverse method. This approach allows one to bond the numerical model to the experimental one, both in terms of the sensor discretization and approximations in the model itself, which for instance cannot take into account potential side reactions that could occur during the experiments. Besides, when dealing with a high-amplitude wall shear rate fluctuation in a non-reversing flow, the inverse method using the proposed calibration procedure offered a precise wall shear rate magnitude evolution and accurate direction. The present work thus exposes the potential of ED probes to deal with complex three-dimensional unsteady flows when coupled with the proposed method. Experiments involving a time varying direction should be performed for further verifications and improvements of the two-dimensional inverse problem, even though the method was numerically validated for such a case (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017).

Acknowledgements

The authors would like to acknowledge the financial support of the Canadian Foundation for Innovation (CFI), the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Fonds de recherche du Québec - Nature et technologies (FRQNT). We

also acknowledge the technical support of T. Lafrance from MËKANIC and J.-M. Béland in the design and manufacturing of the experimental setup.

CHAPITRE 8 ARTICLE 3 – DIAGNOSTIC OF THE FLUCTUATING WALL SHEAR RATE COMPONENTS USING AN UNCALIBRATED THREE-SEGMENT ELECTRODIFFUSION SENSOR

Marc-Étienne Lamarche-Gagnon, Vaclav Sobolík, Jérôme Vétel

Cet article a été soumis au journal *Experiments in Fluids* le 15 octobre 2017.

Abstract

An inverse problem is used to significantly improve the frequency response of a three-segment electrodiffusion (ED) sensor subjected to strong inertial effects in high-amplitude unsteady flows. It is shown that the fluctuating component of the wall shear rate's magnitude and direction can be accurately determined when both variables exhibit simultaneous large-amplitude variations, even when using an uncalibrated probe. Measurements are performed in the vicinity of a rotating cylinder in motion in a highly viscous fluid with poor electrochemical diffusivity, thus establishing a harsh environment for an ED sensor. Still, results using the inverse problem showed strong concordance with PIV complementary measurements in most cases and further expose the potential of this non-intrusive technique for thorough wall shear stress diagnostics.

8.1 Introduction

Electrodiffusion (ED) sensors have been extensively used in the mid–late 19's for wall shear stress analysis, especially in turbulent flows. The use of such probes was interesting considering their small size and non-intrusive character; they were often preferred to the hot-film probe considering the absence of heat conduction through the wall, which greatly amputates hot-films capacities in unsteady flows (Naughton et Sheplak, 2002; He *et al.*, 2011). One major drawback, which most likely lessen the interest of scientists for the ED probe, was its incapacity to perform in high-amplitude unsteady flows considering that models to deal with the *capacitive effect* or probe inertia were either based on a linear approach, valid for small perturbations, or were invalid in presence of shear reversal. The use of an inverse problem (Mao et Hanratty, 1991a; Maquinghen, 1999; Rehimi *et al.*, 2006) to model the probe's reaction then offered a much better tool to deal with unsteady effects, allowing one to accurately assess the wall shear rate magnitude even in presence of unsteady flow inversions. Despite

its effectiveness, only few studies made use of the inverse method in experimental works. Development of the tools and algorithms involved in the inverse problem indeed required much more work than other *direct* post-treatments like the Sobolík method (Sobolík *et al.*, 1987), but usage of the inverse problem actually is the only valid approach able to handle unsteady wall shear rate reversal. A further possible cause is the absence of experimental validation for the method. In fact, while a few authors did couple ED measurements with an inverse problem (among others: Mao et Hanratty, 1991b, 1992; Maquinghen, 1999; Labraga *et al.*, 2002; Fourrié *et al.*, 2013), none really confronted their results to reference values of the fluctuating wall shear rate and thus validated its usage when using real ED probes in large-amplitude unsteady flows. Furthermore, the early inverse approach only gave access to the one-dimensional wall shear rate.

More recently, Lamarche-Gagnon et Vétel (2017) proposed a method for the determination of both instantaneous components of the wall shear rate, namely its magnitude and direction, in high-amplitude flows. The approach combines the advantages of the three-segment probe to provide the shear direction while correcting inertia effects in each segment signal using an inverse problem. The procedure was later validated experimentally (Lamarche-Gagnon *et al.*, 2017b) in a pulsed channel flow exposing periodical shear reversal; results also showed good concordance with reference wall shear rate values obtained from LDA measurements. While the two-dimensional inverse method was also numerically validated (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017) in a turbulent flow characterized by strong high-frequency fluctuations of the shear stress magnitude and direction, experimental validation was limited to flows of constant direction.

Recent developments in the ED method are thus promising, thanks to the numerical coupling with the inverse problem. The aims of the present article are to further demonstrate the effectiveness of the method when dealing with complex flows in harsh electrochemical conditions, even without the need of a probe calibration. More specifically, the objectives are to:

1. complete the validation process of the two-dimensional inverse problem as proposed by Lamarche-Gagnon et Vétel (2017), using three-segment ED probe measurements performed under high-amplitude fluctuations of both wall shear rate magnitude and direction;
2. propose a simple, no-calibration approach adapted to the three-segment ED sensor and able to provide the fluctuating two-component wall shear rate.

In the following section, the ED method and inverse problem basis will first be recalled. Section 8.2 then describes the experimental apparatus and methods. Results are presented

and analyzed in section 8.3.

8.1.1 ED basis and post-treatment methods

An ED sensor measures the oxidation–reduction reaction rate between its surface, which is flush-mounted to a solid wall, and reacting species contained in a fluid. Based on the concept that the strength of the probe signal is a function of the solution supply and because the reaction occurs very close to the wall, one can relate the wall shear rate s to the measured current I. Considering that the reaction is governed by the convection–diffusion (CD) equation, a *quasi-steady* model (with subscript 'q') can be derived (Reiss et Hanratty, 1963), stating that

$$s_q = (I/k_\mathrm{q})^3 \tag{8.1}$$

and is valid for two-dimensional highly convective steady flows. The constant $k_\mathrm{q} = 0.80755nFAC_0l_\mathrm{eq}^{-1/3}D^{2/3}$ is normally evaluated through an appropriate calibration and n, F, A, C_0, respectively refer to the number of electrons involved in the reaction, the Faraday constant, the sensor area and the concentration of the reacting species in the bulk solution, while $l_\mathrm{eq} = 0.814d$ is the equivalent length for a circular probe of diameter d. In unsteady flows, the Sobolík method (Sobolík *et al.*, 1987) is one of the most accessible post-treatments and is particularly accurate. The instantaneous wall shear rate is typically obtained by adjusting the quasi-steady solution, namely

$$s_\mathrm{sob} = s_\mathrm{q} + \frac{2}{3}\chi s_\mathrm{q}^{-2/3}\frac{\mathrm{d}s_\mathrm{q}}{\mathrm{d}t}, \tag{8.2}$$

where $\chi = 0.80755^{-2}\pi^{-1}l_\mathrm{eq}^{2/3}D^{-1/3}$, although (8.2) is not valid in presence of shear reversal. When one also seeks the complete 360° wall shear stress direction α, a circular probe segmented in three near-identical parts (i.e. a three-segment probe) can be used. However, only a quasi-steady approach is available (Wein et Sobolík, 1987) to evaluate α. As inertial effects considerably alter ED probes signals even at low frequencies ($\sim 2-3\,\mathrm{Hz}$ in water), no direct method can provide the instantaneous shear direction from ED measurements, especially in high-amplitude flows. However, when simulating the process through an inverse problem, one can effectively deal with capacitive effects affecting the three-segment sensor (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017) in order to obtain accurate values for both wall shear rate magnitude and direction in highly unsteady flows.

Inverse problem algorithm: The idea is to iteratively solve the *direct problem* (i.e. the CD equation) until the numerical mass transfer, commonly represented by the Sherwood number,

converges to the experimental one, given by

$$Sh_{\mathrm{exp},\,m} = \frac{I_m d}{nFADC_0}, \tag{8.3}$$

where m refers to the segment index $m \in \{0, 1, 2\}$ of a three-segment probe. Often, one is more interested by the *modified* version $Sh^*_{\mathrm{exp},\,m} = Sh_{\mathrm{exp},\,m} Pe^{-1/3}$ with $Pe = \overline{s} d^2 D^{-1}$ the Péclet number and $\overline{s}$ the time-averaged wall shear rate, which can actually be reformulated using (8.1) as

$$Sh^*_{\mathrm{exp},\,m} = k^* k_{\mathrm{q}}^{-1} \overline{s}^{-1/3} I_m, \tag{8.4}$$

where $k^* = 0.86505$ for a perfectly circular geometry, but depends on the numerical mesh and discretization of the probe [1]. Numerically, the mass transfer can be evaluated when solving the CD equation for the concentration C at the corresponding wall shear rate magnitude S and direction α using, for instance, the finite volume or finite element method. In a dimensionless form, such an equation is typically written as

$$Sr\frac{\partial C}{\partial \tau} + SY\left(\sin\alpha\frac{\partial C}{\partial X} + \cos\alpha\frac{\partial C}{\partial Z}\right) = Pe^{-2/3}\left(\frac{\partial^2 C}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2}\right) + \frac{\partial^2 C}{\partial Y^2}, \tag{8.5}$$

using

$$\begin{gathered} X = \frac{x}{d}, \quad Y = \frac{y}{d}Pe^{1/3}, \quad Z = \frac{z}{d}, \\ \tau = tf, \quad Sr = \frac{fd^{2/3}}{\overline{s}^{2/3}D^{1/3}}, \quad S = \frac{s}{\overline{s}}, \quad C = \frac{c}{C_0}, \end{gathered} \tag{8.6}$$

with f a characteristic frequency. The mass transfer associated to segment m of a three-segment probe is then computed through

$$Sh^*_{\mathrm{num},\,m} = \frac{1}{A}\iint_{A_m} \left.\frac{\partial C}{\partial Y}\right|_{Y=0} dA, \tag{8.7}$$

which is evaluated over the segment area A_m.

During the inverse process, sensitivity equations associated to S and α are conjointly solved to provide their respective corrections. More information on the numerical tools and methods adopted in the present work can be found in Lamarche-Gagnon et Vétel (2017). Note that in the following, the notation $M_m = Sh^*_{\mathrm{exp},\,m}$ and $Sh^*_m = Sh^*_{\mathrm{num},m}$ will be used for convenience.

1. One can show that $k^* = \sum Sh^*_{\mathrm{num},\,m}$ when $Pe \to \infty$, but this value can be altered when dealing with experimental signals (cf. section 8.2.2).

8.2 Methodology

8.2.1 Setup and instrumentation

The flow in the vicinity of a rotating cylinder ($D = 2.54\,\mathrm{cm}$) in motion inside a PMMA tank (Figure 8.1) was used to generate periodic fluctuations on both S and α. Two types of motions were considered: 1) a fixed cylinder ($U_\mathrm{c} = 0$) with periodic angular velocity

$$\frac{\Omega}{2\pi} = A_\Omega + B_\Omega \sin(2\pi f t) \tag{8.8}$$

and 2) an oscillating cylinder motion with steady Ω ($B_\Omega = 0$ in (8.8)), characterized by an axial velocity

$$U_\mathrm{c} = B \sin(2\pi f t). \tag{8.9}$$

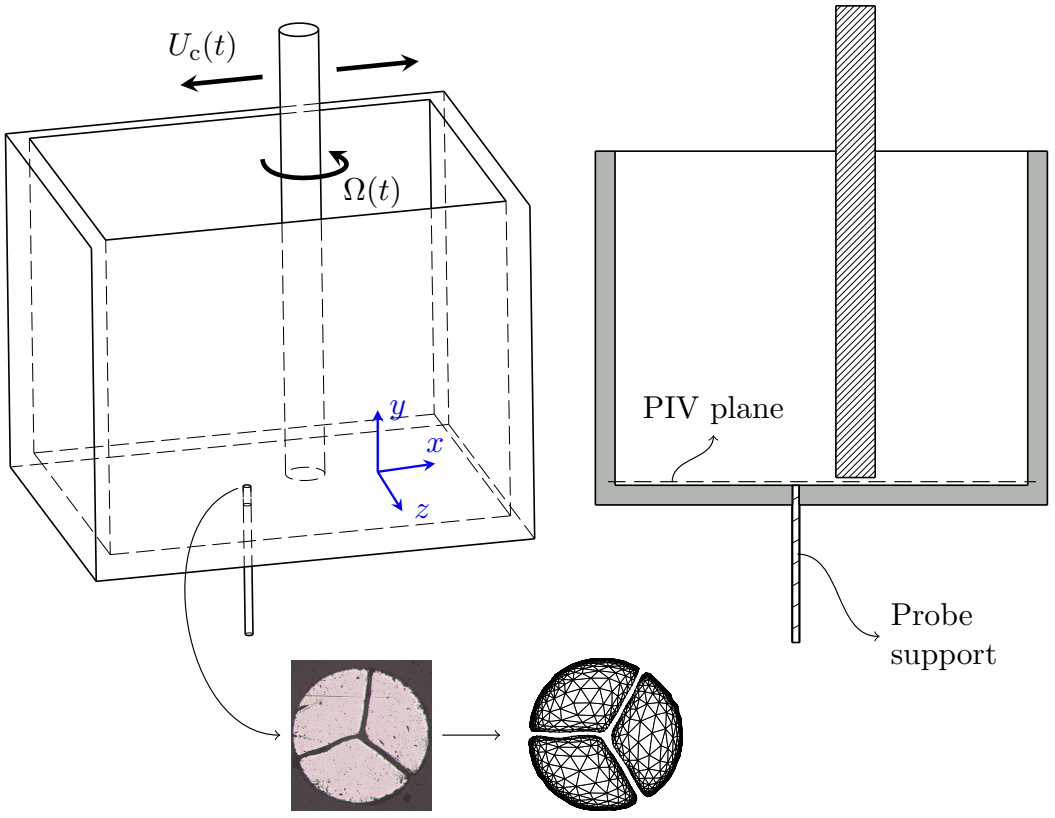


Figure 8.1 Experimental apparatus, exposing the two types of motions for the cylinder (left) and the approximate position of the PIV plane (right). The discretized probe (bottom right) is the geometry used in the inverse problem and was obtained using a contour detection algorithm on an optical microscope photograph (bottom left) of the probe surface

Both motions were assured by stepper motors. The cylinder's bottom face was positioned close to the tank's lower wall ($\sim 5\,\mathrm{mm}$) to minimize vertical velocity contributions developing under the rotating surface. The x–z initial position of the cylinder was slightly changed between cases; its exact position is, however, not relevant.

A three-segment ED probe was glued flush to the tank bottom wall and away from the side walls (Figure 8.1). The measured geometric area of all three segments (i.e. the cathode) was evaluated to $0.212\,\mathrm{mm}^2$, which area is equivalent to that of a circular geometry with $d = 0.52\,\mathrm{mm}$. The platinum cathode is mounted on a 5 mm diameter stainless steel tube which also serves as the anode. The PMMA tank ($25 \times 20 \times 20\,\mathrm{cm}$) was filled with a 91 % glycerol, 7 % water by weight mixture; the remaining 2 % was occupied by the redox-couple ferricyanide–ferrocyanide (bulk concentration $C_0 = 0.025\,M$, equimolar) and background electrolyte K_2SO_4 (0.05 M). The low concentration in K_2SO_4 is explained by its very poor solubility in glycerol and further dissolution was not possible as the solution was fully saturated. This certainly affects the reaction's dynamic and will be further discussed in the following. Nevertheless, complete dissolution of both ferri–ferrocyanide was first ensured during the solution preparation. Reduction of the ferricyanide at the working electrode (cathode) was thus considered, as per reaction

$$[\mathrm{Fe(CN)_6}]^{3-} + \mathrm{e}^- \longrightarrow [\mathrm{Fe(CN)_6}]^{4-}$$

under a potential of -0.6 V, which provided limiting current conditions. Diffusivity of ferricyanide in such a highly viscous fluid is very poor, as a coefficient $D = 3.0 \times 10^{-12}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$ was obtained at $T = 22.0\,^\circ\mathrm{C}$ with chronoamperometry. This value was corrected depending on the temperature variation during the experiments ($\sim \pm 0.5\,^\circ\mathrm{C}$) using the Einstein–Stokes relation,

$$D \propto T/\mu, \tag{8.10}$$

at the corresponding temperature and viscosity. Measured currents from ED probes were amplified through a current follower and then recorded using a 24 bits low-noise ADC.

Two-component PIV was further used to investigate the flow characteristics in the vicinity of the cylinder and to procure complementary measurements. The PIV measuring plane was located as close to the bottom wall as possible (cf. Figure 8.1) to characterize the wall quantities. While such a PIV plane disposition does not allow a direct evaluation of the wall shear rate, the normalized velocity $U(t) = \|\boldsymbol{u}(t)\|/\overline{\|\boldsymbol{u}(t)\|}$ was used as a reference value. In fact, one can expect $U \sim S$ assuming a linear velocity profile in z at such a distance from the wall (or, at the very least, U slightly smaller than S, see section 8.3.3). No information

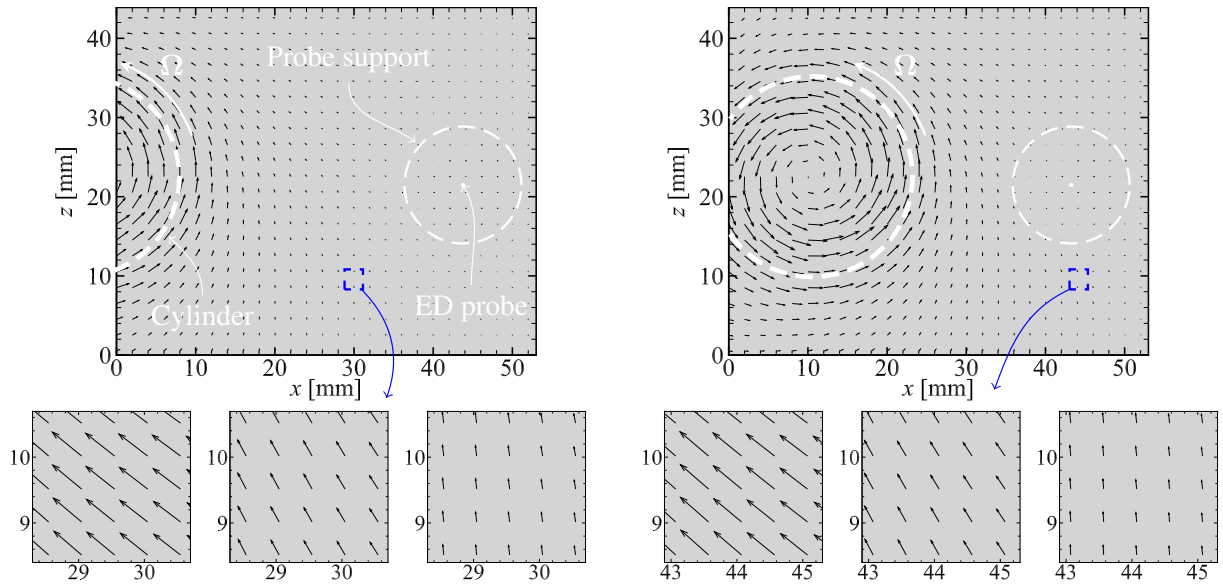


Figure 8.2 Velocity fields from PIV measurements, where the cylinder and overall probe support are highlighted with white dashed lines. The cylinder is positioned for PIV (left figures) and ED (right figures) measurements. Bottom figures highlight the velocity field at three consecutive instants in the region of interest (blue dashed rectangle). The tiny white dot ($[x, z] \simeq [43, 21]$) exposes the actual size of the cathode ($d \simeq 0.52\,\text{mm}$, see also Figure 8.1)

on the time-averaged wall shear rate is thus available from PIV, which here is not significant considering the uncalibrated ED probes (cf. section 8.2.2); only wall shear rate fluctuations (i.e. normalized values, $s/\overline{s}$) will thus be compared. A similar approach was adopted for the wall shear rate direction α, where the fluctuation $\Delta\alpha = \alpha - \alpha_0$ is rather considered, with $\alpha_0 = \overline{\alpha(t)}$ the time-averaged direction. One should note that in order to get similar results for α_0 with both PIV and inverse method, the orientation of the discretized sensor in the numerical model must be the same as that of the real probe in the PIV frame of reference. Such a practice was not sought as only fluctuating values are considered in the present study.

Rhodamine B (10 µm mean particle size) was used as PIV seeding material. Fluid illumination was created with a Nd:YAG 1200 mJ per pulse laser at a wavelength of 532 nm and a 4 ns pulse duration. One LaVision Imager sCMOS camera (5.5 megapixels equipped with a 60 mm focal length Micro-Nikkor lens) was positioned underneath the PMMA tank; a 550 nm orange filter was fixed on the optics to emphasize the light reflected by the dye particles and to filter laser reflections. The commercial software Davis 8.3 was used to process raw images. Figure 8.2 exposes an example of the velocity field in such a configuration. Both fluid kinematic

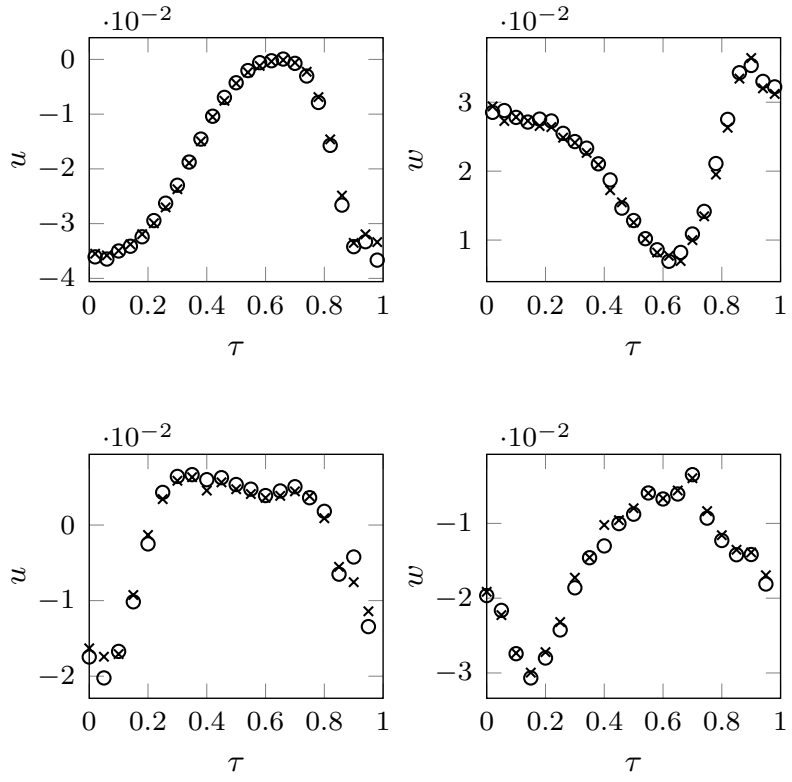


Figure 8.3 Axial (u) and transverse (w) velocity components over one period when translating the cylinder's origin, evaluated at the central x–z coordinate of the regions of interest (Figure 8.2, bottom). Top: $U_c = 0$ (no translation movement); bottom: U_c as per (8.9). ∘ cylinder positioned for PIV; × cylinder positioned for ED

viscosity and density were measured with a Cannon-Fenske routine viscometer and the DMA 35 Anton Paar density meter, yielding respectively $\nu = 264\,\mathrm{mm^2\,s^{-1}}$ and $\rho = 1250\,\mathrm{kg\,m^{-3}}$ at $T = 22.3\,^\circ\mathrm{C}$. All signals were synchronized using LabVIEW by triggering the recordings of both mass transfer and PIV measurements. However, due to the lack of optical access at the exact probe location, PIV and ED measurements were not made at the same time and location. Instead, it was assumed that, by shifting the cylinder's origin $\sim 15\,\mathrm{mm}$ in the x direction, the flow was locally translated. This was confirmed by comparing the velocity field at two such positions with PIV, as shown in Figures 8.2 and 8.3. Hence, PIV velocity measurements were first made when the region of interest was 15 mm left of the probe. ED signals were then recorded under the same flow conditions with the cylinder's origin translated to the right (Figure 8.2). To limit the effect of vertical fluid motion, the cylinder was not positioned too close to the probe and angular velocity Ω was restrained.

Fluid selection: the use of a highly viscous fluid first allowed to generate lower velo-

city gradients near the probe's location, thus providing well resolved PIV measurements. Furthermore, a general consequence of a higher viscosity is the attenuation of electrochemical diffusion effects (see below), hence affecting the efficiency of ED sensors. This, on the other hand, allows one to investigate the probe's response at lower frequencies considering inertial effects are mainly characterized by the reaction Strouhal number, $Sr = fd^{2/3}\overline{s}^{-2/3}D^{-1/3}$.

Diffusivity within viscous media: while it is the general opinion in the literature that D varies only slightly with concentration of the species (Hanratty et Campbell, 1996; Arvia *et al.*, 1967), temperature and viscosity deeply affect diffusivity as per (8.10). However, in the authors' experience, relation (8.10) is uncertain at high viscosity ($\mu \gtrsim 0.01\,\mathrm{Pa\,s}$) as in the present case ($\mu = 0.330\,\mathrm{Pa\,s}$). The fact that the background electrolyte's concentration is rather low also affects the proportion of current I related to diffusive processes. Hence, it was felt necessary to directly measure the diffusion coefficient D of the solution instead of using, for instance, a tabulated value corrected with (8.10) at the measured viscosity. A direct diffusivity measurement also gives access to the *effective diffusivity* of a mixture, which considers effects such as migration of ions (sometimes not negligible, as it may be the case) as well as variations of the mixture's properties that could occur within the diffusion layer, effects normally neglected in the theory (Selman et Tobias, 1978).

8.2.2 Signals pre- and post-treatments

All PIV and ED measurements were phase-averaged to reduce random noise. Without any regularization method, the inverse algorithm is indeed very sensitive to noise in the input data (Ozisik, 2000). As raw signals were fairly clean, only $\sim$ 20 periods were needed to procure suitable data.

In order to get results as accurate as possible when using the inverse method, Lamarche-Gagnon *et al.* (2017b) proposed to use a so-called numerical calibration to bond measurements with the inverse model, which would take into account some reactions side effects as well as the unavoidable discrepancies in the numerical discretization of the probe (cf. Figure 8.1) and geometrical discordances between each segment. The form $M_m \propto I_m$ as suggested by (8.4) thus cannot be considered exact, especially considering the existence of finite gaps in the three-segment probe geometry. However, such a calibration was not employed in the present work in order to demonstrate that the proposed inverse algorithm is efficient even without any calibration, as a reference value for the instantaneous wall shear rate (which is required to perform the numerical calibration) is not often accessible in experimental setups.

Hence, a no-calibration approach was here adopted. Nondimensionalization of the signals

was rather performed using (8.4) directly so that the entire process solely depends on ED signals. Main downsides of such a procedure are:

1. higher probabilities of overshoot or attenuation on the resulting inverse problem variables $S_{\text{inv}}(\tau)$ and $\alpha_{\text{inv}}(\tau)$, arising from the uncertainties on the calculated parameters Pe and Sr;
2. probable offsets, especially on S_{inv}, featuring $\overline{S}_{\text{inv}} \neq 1$;
3. increased instabilities in the inverse process and poorer convergence properties, considering the geometrical dissimilarities between each segment and the ones between the real and discretized probes which, together with potential inactive areas on the real sensor, can hardly be taken into account.

It appears that all of the above concerns can be considered alternatively in order to obtain accurate results with the two-dimensional inverse method. First concern can be dealt with by roughly considering an overall error ϵ on the electrochemical parameters in (8.1) or simply on the constant k_{q}, which dictates the value for $\overline{s}$ as per (8.1); this will ultimately modify the simulation parameters Pe and Sr. Second concern was actually noticed by Mao et Hanratty (1991b), stating that such an error is a result of the quasi-steady approximation. The authors suggested to iteratively adjust a constant (which would here correspond to k^* in (8.4)) until the time average of S_{inv} equals unity. A good guess for the corrected constant is to use $k^*_{\text{corr}} = k^*(\overline{S}_{\text{inv}})^{-1/3}$ when $\overline{S}_{\text{inv}} \neq 1$. However, care should be taken when dealing with very high-amplitude fluctuations, e.g. in presence of shear reversal.

Last concern can further be tackled using an *in-line* correction of the M_m, where each individual segment signal is adjusted during the inverse process to better match the numerical results. Effects of the in-line correction are illustrated in Figure 8.4 for experimental case 5 (cf. Table 8.1), where the correction is applied starting from the second period ($\tau \geq 2$). As shown by Lamarche-Gagnon *et al.* (2017b), the use of (8.4) instead of a numerical calibration will most likely lead to numerical Sh^*_m offset from their respective M_m during the inverse process considering errors in parameters of (8.4) and dissimilarities between individual segments; this is also observed in Figure 8.4a for $\tau < 2$. The idea is thus to adjust the time-averaged values of the M_m data using a factor

$$\lambda_m = \frac{\overline{Sh^*_m}}{\overline{M_m}}, \tag{8.11}$$

where $\overline{(\sim)}$ here refers to a time-averaged value over a prescribed number of time steps. A straightforward choice in periodic flows is to perform the averages over one period of the solicitation. Hence, new values for λ_m can be computed after each completed period of the

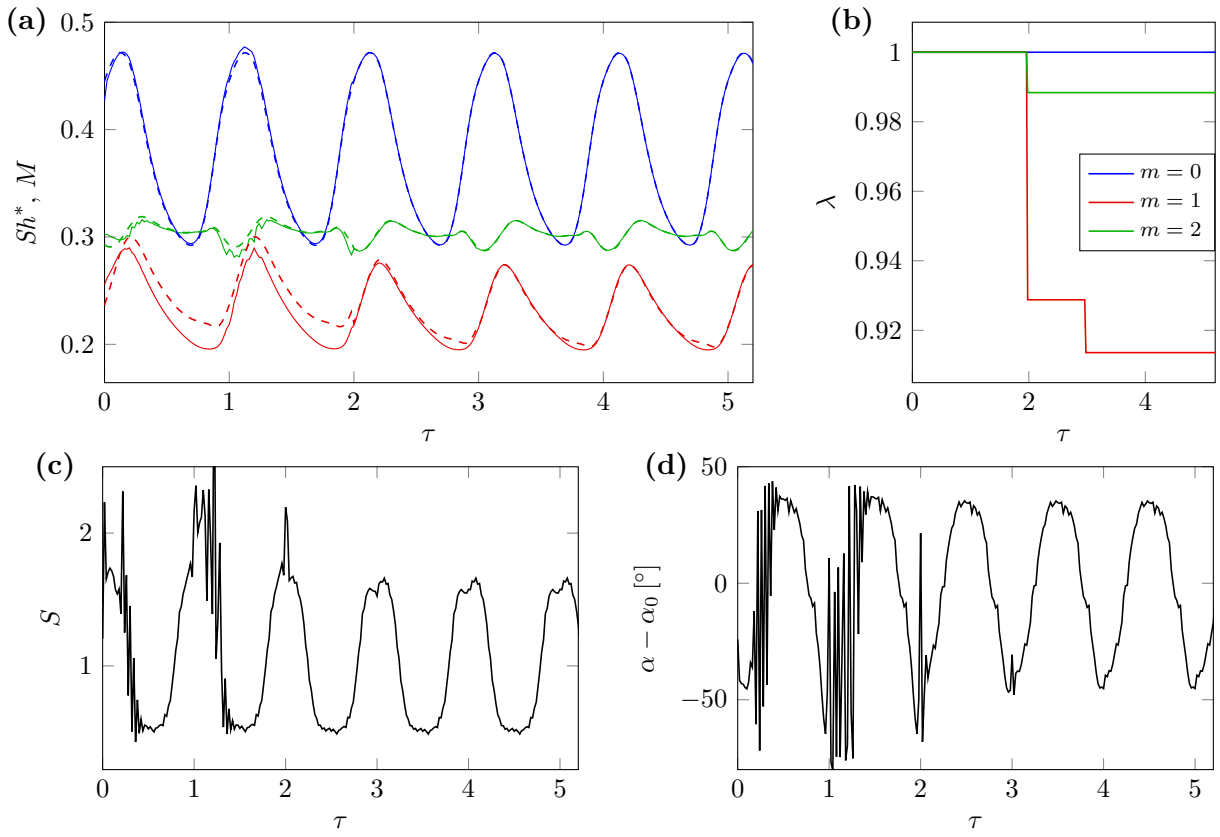


Figure 8.4 **a** Sh_m^* (solid lines) resulting from the inverse method compared to the experimental data M_m (dashed lines) for case 5 (see Table 8.1). Colors refer to different segments. Variations of λ_m ratios, S_{inv} and α_{inv} with periods are shown in **b**, **c** and **d**, respectively. In **d**, α_{inv} is subtracted by the time-averaged direction α_0

inverse process. The new input data, i.e. the modified equation (8.4), then become

$$M_m = \lambda_m \frac{I_m d}{nFAC_0 D}. \tag{8.12}$$

As observed in Figure 8.4, the M_m data can thus be shifted after each period so that the numerical model can better match the experimental data. Such corrections allow a much better convergence of the Sh_m^* for $\tau > 2$ (Figure 8.4a), while also stabilizing the problem as sharp fluctuations on S_{inv} and α_{inv} are greatly attenuated (Figure 8.4c–d). After two λ_m corrections ($\tau = 2$ and $\tau = 3$), time-averaged values match for all corresponding Sh_m^* and M_m in the following periods. Although Sh_1^* does not perfectly converge on M_1 in Figure 8.4a, results for S_{inv}–α_{inv} still are accurate (see Figure 8.7a) as convergence for both other segments is quite better; segment 1 also displays the weakest M_m signal and thus affects less the overall reaction. Poorer convergence for the weakest signal is more pronounced at higher Sr as inertia

effects are more important and damp the probe's response; satisfying results in those high-frequency cases can still be expected as it will be shown in section 8.3. A striking observation in Figure 8.4 is the ability of the inverse method to predict well the S–α variations from such complex M_m signals, in particular for segment $m = 2$. It is also worth noting that while λ_m values can somewhat vary from one day to another, we generally observed similar trends (e.g. $\lambda_0 > \lambda_1$).

Quasi-steady shear direction: Even though adequate post-treatments are available for S to deal with inertial effects (apart from the inverse method), only a quasi-steady approach is applicable for α. This is possible through a *directional calibration* (Wein et Sobolík, 1987), where the probe is gradually rotated under a steady flow. Such an experiment provides the directional characteristics of a three-segment probe, thus allowing one to compute the quasi-steady direction $\alpha_{\mathrm{q}}(t)$ using all three signals. Those characteristics were available from previous measurements. However, phase lag and attenuation effects on α_{q} are apparent even at low to moderate frequencies and α_{q} is thus a rather poor criterion for unsteady flows, as it will be exposed in section 8.3.

Furthermore, no PIV calibration was neither required as only dimensionless values will be analyzed.

8.3 Results and discussion

This section first briefly presents the wall shear rate obtained through the inverse problem along with PIV reference values for two types of cylinder motions. Analysis of the results and discrepancies then follows in section 8.3.3. Flow parameters of the eight cases considered are presented in Table 8.1. Only results after the last period of the inverse process are shown in the following, which are here shifted toward $0 \leq \tau < 1$. Also note that in most figures, only part of the time steps used in the simulations are shown.

8.3.1 Fixed cylinder

First type of flow considered is the fixed cylinder ($U_{\mathrm{c}} = 0$) rotating with an angular velocity Ω as per (8.8). Results for the moderate- to high-frequency cases 0–2 are presented in Figure 8.5, where the wall shear rate exposes fluctuations of moderate amplitude on both S and α. Very good agreements are observed between the inverse and PIV values for all cases. Some discrepancies are noticeable for case 2, where both fluctuations' amplitude and Sr number are the largest.

Table 8.1 Flow parameters used in the experiments, cf. (8.8) and (8.9)

Case	f [Hz]	A_Ω [Hz]	B_Ω [Hz]	B [mm s^{-1}]	Pe $\times 10^{-5}$	Sr
0	0.05	8	5	0	5.16	0.66
1	0.10	6	3	0	4.82	1.39
2	0.10	6	5	0	4.31	2.25
3	0.10	3	5	0	2.93	1.58
4	0.20	3	4	0	3.08	3.95
5	0.05	7	0	6	4.77	0.72
6	0.20	8	0	24	6.34	2.26
7	1.00	10	0	80	9.52	8.60

In order to generate stronger fluctuations with the rotating cylinder, inversion of the rotation direction in part of the period was performed, thus involving $B_\Omega > A_\Omega$ in (8.8) but also $B_\Omega \sim A_\Omega$ to ensure a brief inversion duration. The two-component wall shear rate characterizing such flows is presented in Figure 8.6 for cases 3 and 4. Both experiments were performed under very similar flow conditions, although the frequency f in the latter case was doubled. Due to the shorter duration of the reversed rotation phase and damping effects in the fluid, wall shear rate fluctuations at the probe's location do not grow as much as in case 3 (cf. Figure 8.6b), especially for $\Delta\alpha$; still, strong variations are obtained. One can notice mostly good agreements between PIV and inverse method results, but larger discrepancies are noticeable compared to previous cases.

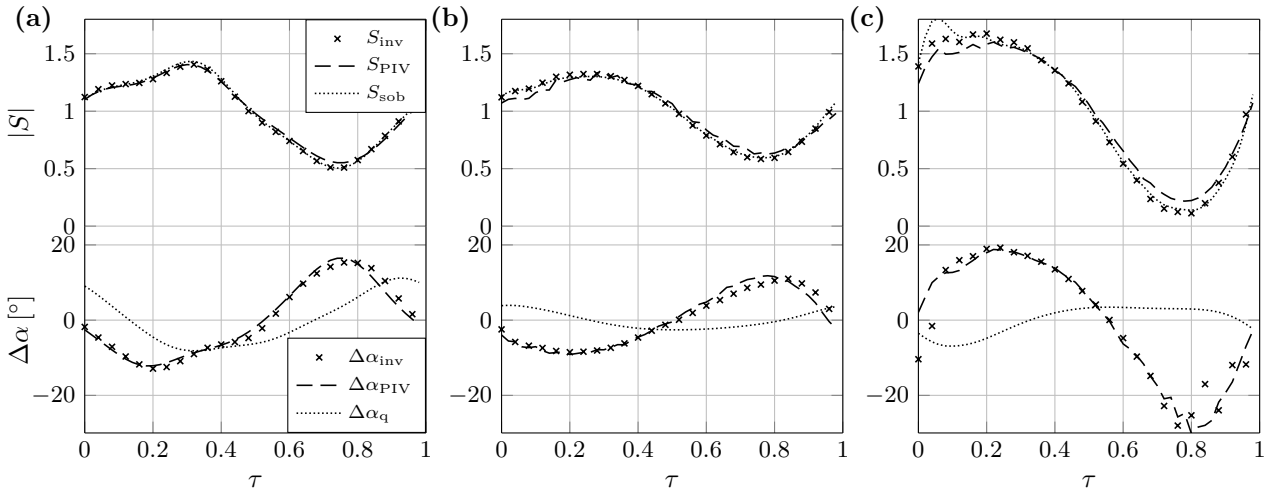


Figure 8.5 Left to right: results for cases 0, 1 and 2. Note that in all figures, $\alpha_{\text{PIV}} = \arctan(w/u)$

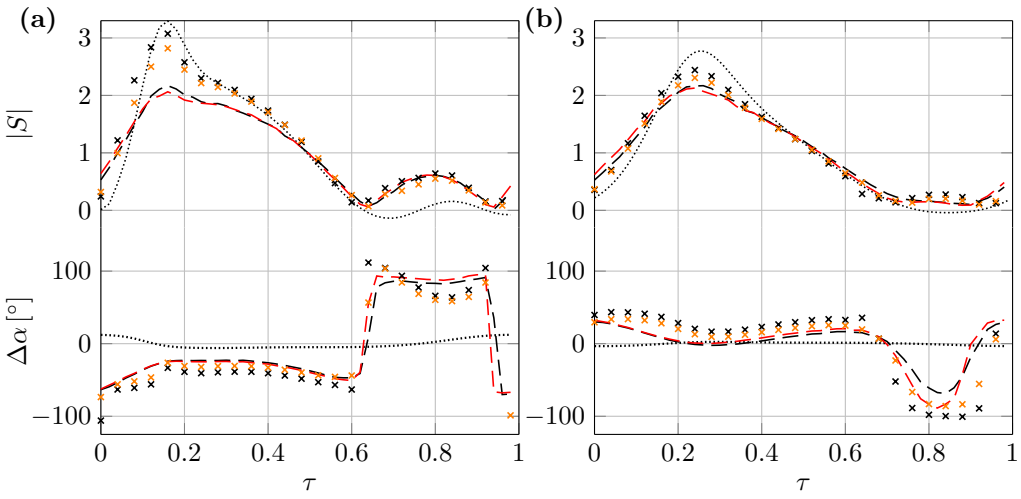


Figure 8.6 Results for cases 3 (left) and 4 (right). Orange marks highlight inverse results when using $k_{\mathrm{q}} = 0.95k_{\mathrm{q,est}}$. Dashed red lines illustrated PIV quantities at a position $\sim 3\,\mathrm{mm}$ away from the expected probe location. Refer to Figure 8.5 for further curves signification

8.3.2 Moving cylinder

Cases 5–7 were performed under the rotor-oscillator flow, namely when the cylinder's translating velocity U_{c} follows a sinusoidal motion as per (8.9) while rotation is carried at a constant angular velocity Ω. With such a motion, large wall shear rate fluctuations were achievable on both S and α while ensuring higher minimal shear amplitude ($S_{\mathrm{min}}(\tau) \gg 0$). Results for cases 5 and 6 are plotted in Figure 8.7. In the moderate frequency case 5, excellent concordances are observed, even considering the very large $\Delta\alpha$ fluctuation ($\sim 90°$). As the Sr roughly triples however, results for case 6 display some discrepancies. Case 7 was performed near the highest frequency possible for the actual setup, as a higher cylinder's velocity disrupts the free surface; $Sr = 8.6$ was thus obtained. Results are shown later in figure 8.10.

8.3.3 General discussion

Components of the wall shear rate obtained through the inverse problem for both types of flows expose overall great concordance with PIV values as one can notice from Figures 8.5–8.7, especially when Strouhal numbers are low to moderate. However, when inertial effects dominate the ED reaction, some discrepancies emerge. Most probable sources of error will thus be discussed in light of the obtained results.

A first type of obstacle with inverse problems, especially in multidimensional ones, is the instability caused by measurement errors and, in the present case, errors arising from the

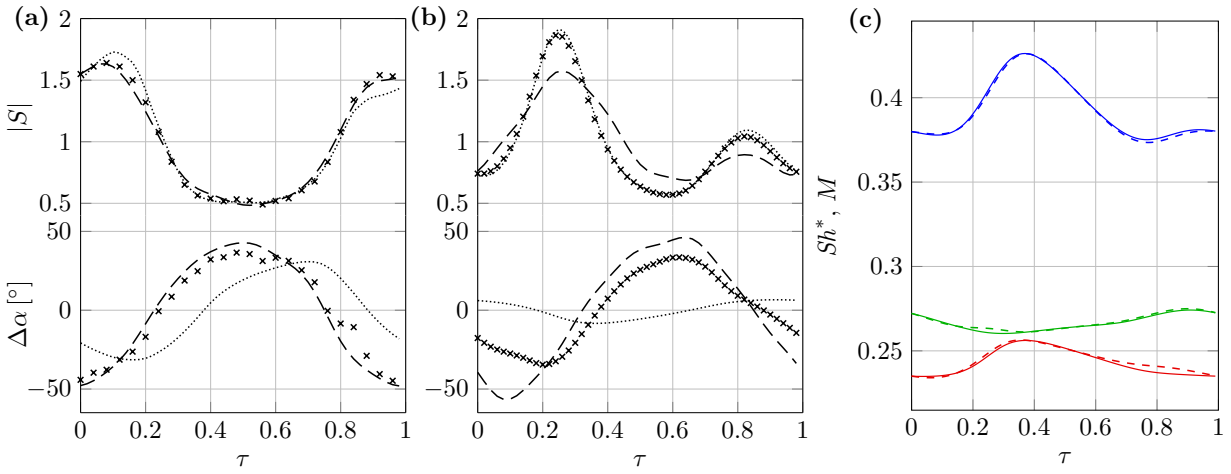


Figure 8.7 Results for **a** case 5 and **b** case 6. Curves' legend is found in Figure 8.5. **c** Sh^*_m (solid lines) and M_m (dashed lines) for case 6, where colors refer to distinct segments

probe discretization, often resulting in convergence issues. In fact, a *perfect* convergence of all three Sh^*_m on the M_m data is in practice rather inconceivable (see e.g. Figures 8.4a and 8.7c) considering the numerical approximation of the three-segment probe geometry and noise in the data. This often results in oscillations or apparent noise as observed in case 2 for $\Delta\alpha$ when $\tau \gtrsim 0.7$, which here most definitely also affects the $S(\tau)$ evolution as both variables are coupled in the inverse process (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017); this might explain the small overshoot on S_{inv}. As the stability of inverse problems greatly depends on noise level, a larger time step will provoke smoothing of stabilizing effects unlike in direct problems. Hence, success of the inverse method is limited to larger time steps at high Sr; otherwise, the problem is likely to diverge. In case 3 (Figure 8.6a) for instance, a large overshoot is noted for S_{inv} in the first phases of the period, which can be partly explained by the time step's size. Complementary numerical studies showed that smaller steps tend to diminish similar overshoots on the variables. Furthermore, discrepancies on $\Delta\alpha$ for cases 3 and 4 are particularly observable for $0.6 < \tau < 1$, namely when the cylinder's rotation reverses or so. That period is characterized by instants of very low shear rates ($S \sim 0$) which, combined with the high Sr, severely affects the sensitivity of the method; sharp variations of $\Delta\alpha$ that occur during this period ($\tau \simeq 0.6$ and $\tau \simeq 0.95$) can thus be difficult to resolve. Hence, the sensitivity issue may certainly explain the observed discrepancies. On the other hand, $\Delta\alpha$ evolution for $\tau < 0.6$ is very well predicted by the method when excluding the slight shift seemingly caused by the α_0 value.

Recalling the discussion of section 8.2.2, a no-calibration approach was opted in the present

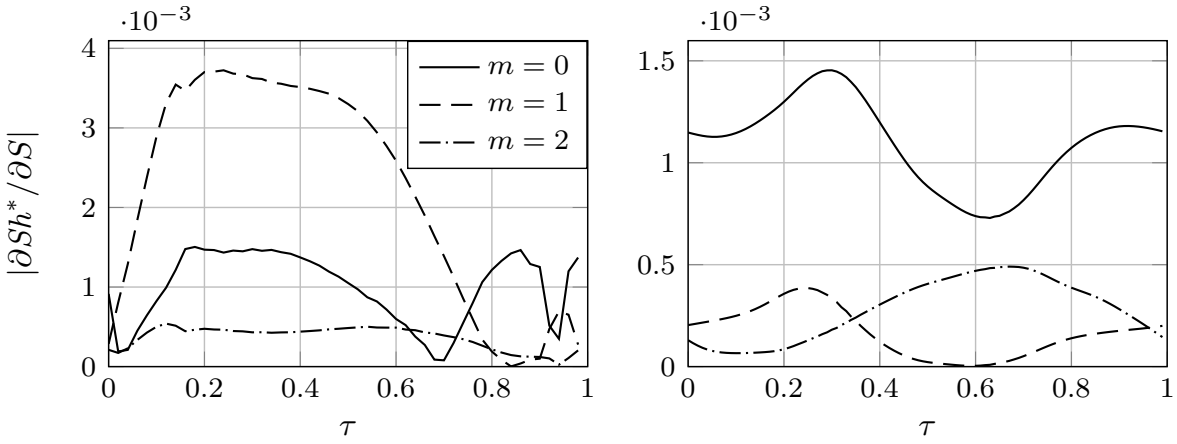


Figure 8.8 Magnitude of the S sensitivity coefficients for cases 3 (left) and 6 (right), which were performed under the fixed and oscillating cylinder motions, respectively

study. One might then expect the calculated parameters in constant k_q of (8.1), required to compute the estimated time-averaged wall shear rate $\overline{s}_\mathrm{q}$, to contain errors; Figure 8.6 thus also presents results when a 5 % total error is considered, namely when $k_\mathrm{q} = 0.95 k_\mathrm{q,est}$ with $k_\mathrm{q,est}$ the estimated value. One can notice that the fit is considerably better for both S and $\Delta\alpha$ in cases 3 and 4. PIV values at a position roughly 3 mm aside of the expected probe location are also shown in Figure 8.6. While in most cases PIV velocities at such a position are fairly similar, differences are more notable in case 4. The higher velocity gradients near the probe location might further justify the discrepancies for $\Delta\alpha$ in case 4.

In contrast to cases 3–4 for the fixed cylinder, results for case 6 with the oscillating motion only expose an overshoot on S, whereas fluctuations on $\Delta\alpha$ appear damped compared to PIV values. As S remains high ($S > 0.5$) during the whole period, sensitivity coefficients do not decrease as much as in case 3 (cf. Figure 8.8) with a similar Sr, which loss of sensitivity was previously blamed for causing discrepancies. One can further notice a fairly good convergence of the Sh^*_m in Figure 8.7c for case 6 and also that S_inv closely matches S_sob, which here should be valid as no shear reversal is noted. One might then suspect that the off-wall PIV measurements do not represent well the wall quantities in such a flow. In fact, while the time-averaged velocity magnitude $\overline{\|\boldsymbol{u}(t)\|}$ and the associated velocity fluctuations $\|\boldsymbol{u'}(t)\|$ are attenuated with wall closeness through viscous effects, this is not the case for the *normalized* velocity fluctuations $U'(t)$, whose amplitude rather increases. Furthermore, in pulsed flows (e.g. the oscillating channel flow), higher pulsation frequencies tend to concentrate velocity gradients closer to the wall (Schlichting et Gersten, 2000). Hence, care should be taken when comparing wall quantities to off-wall PIV measurements at high *Sr and* under large fluctuations, as they are likely to underestimate the normalized velocities as in cases 2–4

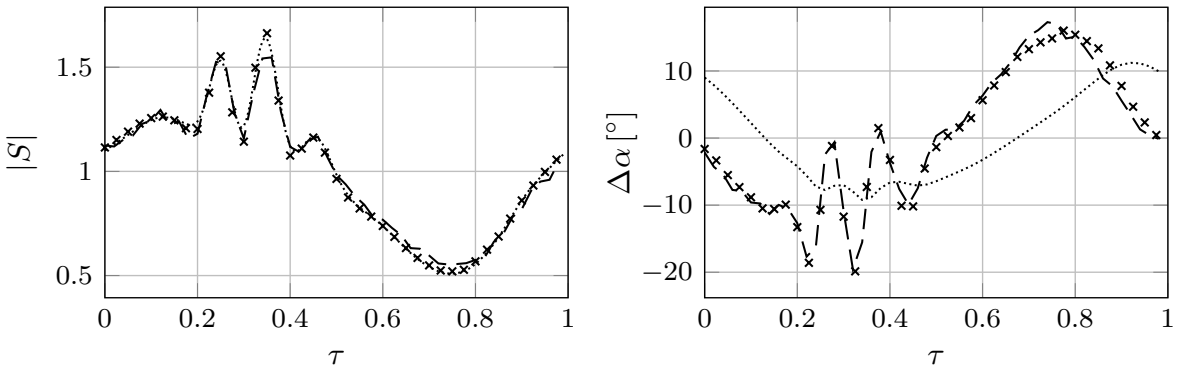


Figure 8.9 Results for the modified case 0. See Figure 8.5 for legend

and 6. However, one should note that $\Delta\alpha$ is here not normalized but is rather offset by α_0, justifying overestimated values of $\Delta\alpha$ with PIV in case 6.

Besides, it is interesting to note that no phase lag is apparent in all figures when comparing inverse method results to PIV reference values. This exposes once more the strength of the inverse problem, reinforcing the idea that discrepancies regarding the fluctuations' amplitude most likely arise from measurement errors and do not result from damping or modeling effects as those observe in other ED (or hot-films) post-treatments involving e.g. linear theories.

Rapid fluctuations: Two cases performed at even higher frequencies are analyzed. First one actually corresponds to case 0, but when a sudden acceleration in the cylinder's rotation was triggered at $\tau \simeq 0.2$, resulting in apparent noise in both PIV and ED signals (Figure 8.9). One can note that the inverse method can follow very well such a rapid fluctuation, characterized by a frequency roughly ten times higher than the predominant one.

When such a fast fluctuation (in the probe's perspective) dominates the flow as in case 7, characterized by $Sr = 8.6$, discrepancies are much more apparent (Figure 8.10). In particular, the $\Delta\alpha$ evolution for $0.2 \lesssim \tau \lesssim 0.7$ is questionable, which could justify the observed phase lag between PIV and ED results for S. Temporal resolution of the inverse problem, however, also appears as a significant issue in case 7 as a simulation with smaller time steps could not be performed without stabilization problems. One can notice in Figure 8.10 that phase lag is indeed increased when using a time step four times larger and a less accurate numerical scheme for the time derivative. PIV measurements in the vicinity of the probe also revealed larger velocity gradients (not shown here), thus making it difficult to conclude on the accuracy of the results for case 7.

To summarize the above discussion, good agreements between PIV and ED methods were

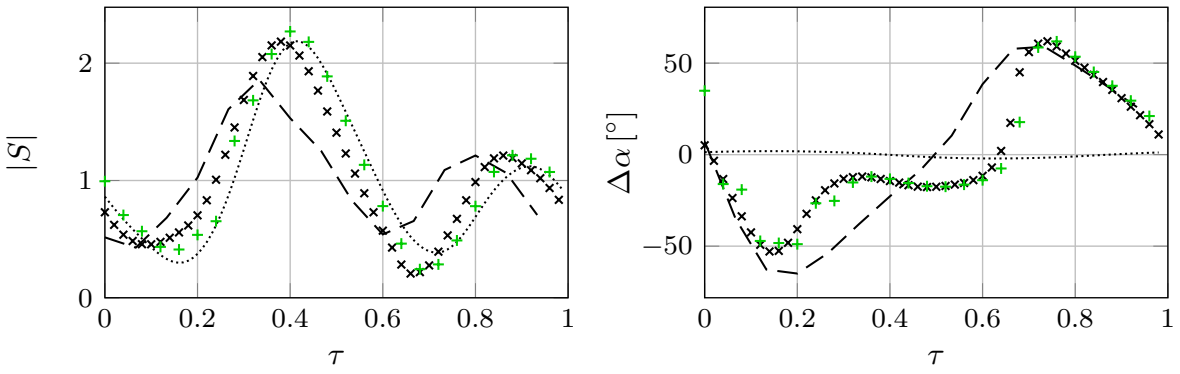


Figure 8.10 Results for case 7 ($Sr = 8.6$). '+' values (in green) were obtained with the inverse problem using a time step four times larger than with '×' marks and using a linear scheme for the time derivative discretization

observed

- for low to moderate frequency processes ($Sr \lesssim 1$), regardless of the fluctuations' amplitude (cases 0, 1 and 5) and
- at higher frequencies under high amplitude fluctuations (cases 2, 4), but not in the most severe conditions (cases 3, 6 and 7) as a result of:
  a) instabilities in the inverse problem with small time steps;
  b) the uncertainties on k_q and $\overline{s}$;
  c) a lack of sensitivity when S is especially low;
  d) unreliable PIV measurements in those severe cases.

Improvements in the numerical and experimental procedures are likely to lessen the effects of issues a)–c). Still, availability of trustworthy reference values for the wall shear rate components should remain a challenge in complex flow conditions.

Parallel with turbulent flows: while frequencies associated with the flows considered were rather low, high Sr were obtained in consequence of the very low diffusivity of the glycerol mixture; this allows one to make an interesting analogy with high-frequency processes. Take the turbulent water pipe flow for instance. Assuming a 10 cm pipe diameter at $Re_d = 10^4$, the Strouhal number related to the Kolmogorov time scale roughly corresponds to five times that of case 7. Although accuracy of the method at higher Sr could not be verified with PIV, the smooth evolution of the variables in Figure 8.10 exposes that the method was able to converge rather well on the measurements; one can thus expect the results to be trustworthy and, with further improvements of numerical methods and experimental procedures, to become quite accurate. In fact, it was numerically shown in the work of Lamarche-Gagnon et

Vétel (2017) that the inverse method can deal with solicitations at much higher frequencies, where turbulent fluctuations characterized by $Sr \sim 500$ were considered. The use of ED probes coupled with an efficient inverse problem would thus allow one to perform accurate non-intrusive measurements of the two-component wall shear stress in real turbulent flows. Furthermore, the development of fabrication techniques such as photolithography (Deslouis *et al.*, 2004; Tihon, 2014) reveals the growing potential to fabric sensors of small size and flexible shapes, hence making the ED method a unique measurement technique. It is also worth noting that success of the inverse process ultimately greatly depends on the initial guesses, which values are used to initialize the concentration field. As inertial effects increase with Sr, the method's sensitivity is affected and the process can rapidly become unstable when those guesses are inaccurate which, once again, exposes the need for sophisticated methods in turbulent flows and when a substantial noise level is involved.

Comparison with other methods: one can note that S_{sob} and α_{q} are also presented in all figures. While evolutions of the former follow interestingly well S_{inv} and are satisfying in most cases where the amplitude on the fluctuations is not too important, inertial effects particularly affect α_{q}, the only available direct post-treatment for α, leading to a largely damped and completely out of phase signal in all cases. One should further note that although time-averaged values were not considered in the present work, good approximations are available from the quasi-steady solutions $\overline{s}_{\mathrm{q}}$ and $\overline{\alpha}_{\mathrm{q}}$ through (8.1) and a directional calibration, respectively. Still, one can expect that the relation $\alpha_0 = \overline{\alpha}_{\mathrm{inv}}$ is accurate when the orientation of the real probe segments is known.

8.4 Conclusion

The two-component fluctuating wall shear rate in the vicinity of a periodically rotating and moving cylinder was assessed through an inverse problem using three-segment ED probe measurements. While the highly viscous water–glycerol mixture used offered poor diffusion properties ($D \simeq 3 \times 10^{-12}\,\mathrm{m^2\,s^{-1}}$), high Strouhal numbers were achievable (up to $Sr = 8.6$) at low frequencies, thus allowing a thorough ED probe frequency analysis under strong fluctuations on both wall shear rate magnitude and direction. Inertial effects in the probe's response were effectively handled using the two-dimensional inverse problem, as results showed overall good concordances with PIV complementary measurements. A no-calibration procedure was further proposed, where mass transfer measurements are conjointly corrected during the inverse process to better match the numerical model. Although this only provided the fluctuating components of the wall shear rate, it was shown that accurate values

could be assessed with an uncalibrated sensor. Errors on the time-averaged quantities, however, remain unknown with such an approach. Considering the results obtained in past (Lamarche-Gagnon et Vétel, 2017; Lamarche-Gagnon *et al.*, 2017b) and present works, the authors hope to encourage the scientific community to regain interest in the ED method for further developments and usage; the authors indeed believe that the technique has the potential to properly perform in unsteady flows of complex nature with further refinements.

Acknowledgements

The authors would like to acknowledge the financial support of the Canadian Foundation for Innovation (CFI), the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Fonds de recherche du Québec - Nature et technologies (FRQNT). We also acknowledge the technical support of T. Lafrance from MËKANIC and J.-M. Béland for their cooperation in the design and fabrication of the experimental setup.

CHAPITRE 9 DISCUSSION GÉNÉRALE

L'objectif principal de cette thèse est de développer un problème inverse adapté à la méthode électrodiffusionnelle et permettant la mesure des deux composantes du gradient pariétal de vitesse instantané. L'approche proposée a d'abord été présentée dans l'article 1, puis validée à l'aide d'exemples numériques variés. Les articles 2 et 3 ont ensuite permis de valider la méthode de façon expérimentale, tout en évaluant ses limites et en proposant des pratiques alternatives. L'objectif mentionné apparait donc comme étant atteint, bien que certains points n'ont pu être vérifiés expérimentalement, faute de mesures alternatives fiables du cisaillement pariétal dans les bancs d'essai. Il a été vu que certains aspects comme le bruit de mesure peuvent limiter l'applicabilité de la méthode sous sa forme actuelle ; bien entendu, des améliorations sont toujours possibles afin d'augmenter l'efficacité et la polyvalence de l'approche proposée. Plus de détails à ce sujet suivront en conclusion.

Des aspects plus généraux seront analysés dans les paragraphes qui suivent. Notamment, deux variantes du problème inverse ont été présentées pour traiter des données de sondes ED, soit les versions unidimensionnelle et bidimensionnelle. Si l'on ne s'intéresse qu'au module du gradient pariétal de vitesse, il est possible d'observer certaines différences dans les résultats des deux méthodes, comme il sera montré en section suivante. Aux chapitres 7 et 8, deux approches différentes ont été proposées pour traiter les mesures de sondes. Des précisions seront ici apportées à ce sujet. Enfin, certains types d'erreur de mesure seront explorés, de même que leurs effets sur les résultats du problème inverse.

9.1 Variantes du problème inverse

Lorsque seul le module S est recherché et que la direction du cisaillement α ne varie peu ou pas, les mêmes données expérimentales provenant, par exemple, d'une sonde tri-segmentée, peuvent aussi bien être traitées en utilisant une géométrie 2D que 3D dans l'équation de CD, donc dans la résolution du problème *direct*. Dans le deuxième article en section 7.3, le problème inverse bidimensionnel avait notamment été converti en problème unidimensionnel en fixant la direction α, bien qu'en permettant les changements de sens. On notera pour la suite cette approche par « $1D^+$ », tandis que le problème inverse unidimensionnel traditionnel (celui utilisé en chapitre 6 avec les sondes simples) sera dénoté « 1D ». La principale différence entre les approches 1D et $1D^+$ est que, dans la première, le transfert de masse *total* est utilisé dans l'algorithme inverse tandis que, dans la seconde, les signaux de chaque segment sont traités séparément, procurant ainsi une utilisation plus efficace de ces informations. Cela

est possible puisque la résolution est effectuée dans un domaine tridimensionnel et que la géométrie (réelle) d'une sonde tri-segmentée est utilisée, contrairement à approximer cette géométrie par une sonde rectangulaire dans le problème direct en 2D.

Les résultats pour l'amplitude du gradient pariétal de vitesse S_{inv} devraient être plutôt similaires peu importe la méthode utilisée, bien que certaines différences sont attendues considérant les aspects suivants qui s'ajoutent dû aux effets tridimensionnels en convection–diffusion :

1. ajout de diffusion transversale (en z) ;
2. changement dans la définition du nombre de Pe, où

$$Pe_{3\text{D}} = \frac{\overline{s}d^2}{D}$$

comparativement à

$$Pe_{2\text{D}} = \frac{\overline{s}l_{\text{éq}}^2}{D} = 0.814^2 \frac{\overline{s}d^2}{D} = 0.663\, Pe_{3\text{D}};$$

3. dans le même ordre d'idées, on a $Sr_{3\text{D}} = 0.871\, Sr_{2\text{D}}$.

Les deux premiers aspects ne devraient être influents que lorsque Pe est faible. Le point 3 sera quant à lui effectif lorsque $Sr \gg 0$. La Figure 9.1 compare les résultats des problèmes inverses 1D et 1D$^+$ suite aux traitements de mesures d'une sonde tri-segmentée dans deux cas où la direction α demeure constante. Une inversion de sens survient également en (b).

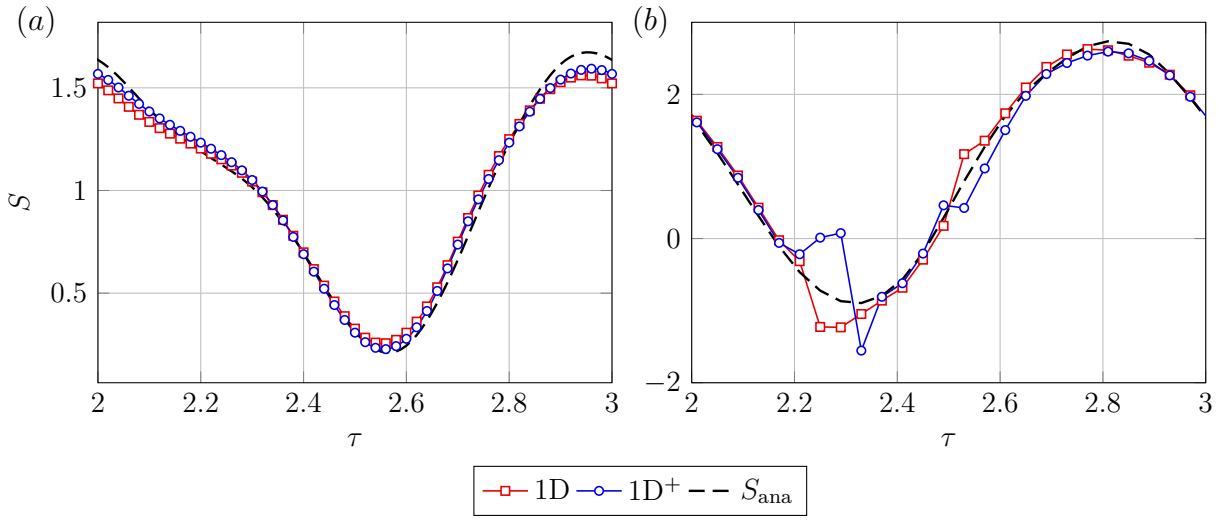


Figure 9.1 Comparaison de résultats des problèmes inverses 1D et 1D$^+$. (a) : $f = 8\,\text{Hz}$, $Sr_{2\text{D}} = 0.86$, $Sr_{3\text{D}} = 0.99$, (mêmes conditions que cas (b) au Tableau 6.6). (b) : $f = 4\,\text{Hz}$, $Sr_{2\text{D}} = 0.38$, $Sr_{3\text{D}} = 0.44$ (conditions du cas (f) au Tableau 6.6)

En sous-figure (a), on observe que l'accord sur l'amplitude de la fluctuation est meilleur en utilisant le problème 1D$^+$. Cela s'explique par le fait que $Sr_{3D} > Sr_{2D}$: une correction plus importante doit être apportée sur S_{inv} dans le problème 1D$^+$ pour répondre aux effets inertiels plus intenses. Bien que les différences observées demeurent ici plutôt minces, cet écart s'amplifiera avec une augmentation de Sr. Or, lorsque la direction du cisaillement ne change peu ou pas et que $Sr \lesssim 1$, peu d'erreurs sont attendues en utilisant l'approximation 1D. La Figure 9.1(b) présente un cas avec changement de sens. Un pas de temps plus grossier ($\Delta\tau = 0.04$) a été utilisé pour limiter les instabilités en 1D et ainsi éviter de forcer le sens de l'écoulement dans le problème inverse 1D (cf. sections 4.3.3 et 6.5). On remarque que très peu de différences sont notables entre les résultats des variantes 1D et 1D$^+$; les deux évolutions montrent également des déviations suite aux instants de changement de sens. Toutefois, un avantage particulier du problème 1D$^+$ réside dans la robustesse du processus : les signaux de chaque segment y sont utilisés séparément, contrairement à l'utilisation singulière du courant total dans la version 1D. Les changements de sens seront ainsi généralement mieux perçus et le problème n'a *jamais* besoin d'être forcé, comme c'est au contraire le cas en 1D lorsque la taille du pas de temps est diminuée (cf. section 6.5).

9.2 Notes sur l'influence d'erreurs de mesure dans le problème inverse

Essentiellement trois variables retrouvées dans le problème inverse sont influencées par des grandeurs physiques :

$$Pe = \overline{s}\xi; \qquad Sr = f\overline{s}^{-2/3}\xi^{1/3}; \qquad Sh^*_{exp} = \frac{Id}{nFAC_0D}Pe^{-1/3}, \tag{9.1}$$

avec $\xi = d^2/D$. En utilisant la constante d'étalonnage $k_q = k^* nFAC_0 d^{-1/3} D^{2/3}$ de la solution de Lévêque

$$\overline{s} = \overline{I^3}/k_q^3, \tag{9.2}$$

on peut réécrire le transfert de masse tel que

$$Sh^*_{exp} = \frac{k^*}{k_q \overline{s}^{1/3}}\, I, \tag{9.3}$$

où $k^* = 0.86505$ pour une sonde circulaire. Si on suppose que l'évolution est quasi-stationnaire, (9.3) devient, grâce à (9.2),

$$Sh^*_{exp} = k^* \overline{I^3}^{-1/3} I, \tag{9.4}$$

pour ainsi obtenir une relation indépendante des paramètres ED [1]. Supposant également que la fréquence f est exacte, l'erreur réside essentiellement dans $\overline{s}$ et ξ.

Lorsque Sr est faible et Pe élevé, l'erreur dans l'évaluation de ces paramètres n'a que peu d'influence sur S_{inv} considérant que, dans une telle situation, les effets diffusifs en y dominent l'équation de CD. Autrement, une diminution (augmentation) de ξ engendrera une amplification (atténuation) des composantes fluctuantes de S_{inv} et α_{inv} ; ces effets ont notamment été observés dans le second article en Figure 7.10 pour S_{inv}. Plus Sr sera important, plus ces effets seront intenses. En regard des erreurs d'environ $\pm 5\,\%$ et $\pm 1\,\%$ respectivement pour D et d (sonde tri-segmentée) exposées en chapitre 6, une erreur maximale de $\pm 7\,\%$ pourrait ici être considérée sur ξ.

L'erreur sur $\overline{s}$ dépendra typiquement de la qualité de l'étalonnage en régime stationnaire, lorsque ce dernier est réalisable. Dans le cas du canal ED, une erreur d'environ $5\,\%$ est attendue sur $\overline{s}_{\text{ana}}$, principalement due à l'évaluation de h en section d'essai (cf. section 6.2). Si aucun étalonnage n'est effectué (comme c'est le cas du banc de mesure PIV, en chapitre 8), l'erreur sur $\overline{s}$ sera de toute évidence amplifiée considérant l'influence des paramètres D et d dans (9.2). En particulier, si seules ces deux variables sont considérées et en remplaçant la forme de (9.2) dans les définitions de Pe et Sr, on peut estimer que

$$\begin{aligned} \delta Pe &\sim \sqrt{(3\,\delta d)^2 + (3\,\delta D)^2}; \\ \delta Sr &\sim \sqrt{(4\,\delta d)^2 + \delta D^2}, \end{aligned} \tag{9.5}$$

où δ réfère à l'incertitude sur le paramètre.

9.3 Commentaires sur le pré-traitement de données

Deux procédures différentes ont été utilisées pour l'adimensionnement des courants en chapitres 7 et 8. La première permet de lier plus proprement les mesures de sondes réelles au modèle numérique grâce à un étalonnage additionnel, effectué à partir de mesures en régime quasi-stationnaire. Les défauts géométriques d'une sonde peuvent ainsi être considérés. L'étalonnage numérique est spécialement utile pour tenir compte des dissemblances entre les segments d'un capteur tri-segmenté. Une procédure plus simple a aussi été présentée en chapitre 8, laquelle ne nécessite qu'une approximation des paramètres ED tels que d et D ; l'erreur associée aux quantités moyennes devient toutefois plus importante.

Bien qu'il soit toujours préférable d'utiliser la première approche, il est de l'avis de l'auteur

1. (9.4) n'est pas tout à fait exacte à plus haut Sr, mais suffit ici pour l'analyse d'erreur. Autrement, on notera que l'erreur sur Sh^*_{exp} est largement diminuée en utilisant un étalonnage numérique.

que des résultats relativement précis peuvent être obtenus avec la seconde considérant que, toutes méthodes de mesure confondues, une valeur précise du cisaillement pariétal est difficilement réalisable. Il a été vu que cette seconde approche permet d'évaluer adéquatement les composantes fluctuantes de S et α ; le niveau d'erreur sur les résultats dépendra donc fortement de la qualité de l'étalonnage en régime stationnaire ou, autrement, de la précision sur les valeurs des paramètres D, A et C_0. Cela suggère que, combinée à un étalonnage adéquat (ou à une mesure complémentaire précise du cisaillement moyen), cette approche devrait offrir une précision satisfaisante sur les composantes moyenne et fluctuante du gradient pariétal de vitesse. L'utilisation d'un étalonnage numérique demeure néanmoins une approche efficace lors des étapes de validation.

CHAPITRE 10 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

Une méthode de mesure du gradient pariétal de vitesse instantané a été développée dans cette thèse, basée sur l'utilisation d'une sonde électrodiffusionnelle (ED) tri-segmentée. L'approche permet de ressortir les deux composantes du cisaillement pariétal, même en présence de fortes fluctuations dans l'écoulement.

10.1 Synthèse des travaux

Un capteur ED mesure le courant électrique généré lors d'une réaction d'électrolyse impliquant des ions contenus dans un fluide. Lorsque le capteur est inséré en paroi, le courant ou transfert de masse ainsi mesuré peut être relié au cisaillement du fluide sur la paroi. Les travaux effectués dans cette thèse ont porté sur le développement d'un post-traitement particulier menant à une telle conversion, lequel permet en fait d'obtenir le vecteur frottement, soit son module et sa direction. Ce post-traitement nécessite dans un premier temps de modéliser numériquement le transfert de masse à la sonde, lequel peut essentiellement être représenté par l'équation de convection–diffusion (CD) de l'espèce réduite. Cette étape a ici été effectuée grâce à la méthode des éléments finis et le solveur `FreeFem++` (Hecht, 2012). Dans un deuxième temps, les mesures temporelles de sondes ED sont intégrées dans un *problème inverse*, permettant de corriger le module S et la direction α du gradient pariétal de vitesse en résolvant itérativement le *problème direct*, soit l'équation de CD avec un couple S–α donné. L'accès à ces deux composantes devient possible en utilisant une sonde ED tri-segmentée, consistant en une géométrie circulaire segmentée en trois secteurs d'aires égales. Une importante partie des travaux a ainsi été consacrée à développer un problème inverse bidimensionnel stable et efficace, prenant en entrée le signal temporel du capteur et ressortant les composantes $S(t)$ et $\alpha(t)$.

L'algorithme a été validé d'abord numériquement au moyen d'écoulements de complexité croissante. Cette phase a également permis d'adapter son fonctionnement pour un plus large éventail d'écoulements tout en améliorant ses performances. On notera des essais où S et α varient tous deux de manière périodique et exposent des variations de forte amplitude et à fréquence élevée. Des données de simulation numérique directe (DNS) ont aussi permis de tester l'approche dans un écoulement turbulent. Une validation expérimentale a ensuite suivie, effectuée dans deux bancs de mesure dédiés à la méthode ED, conçus et fabriqués dans le cadre de cette thèse. Le premier consiste en un tunnel rectangulaire générant un écoulement de Poiseuille 2D plan en section d'essai. Le banc est doté d'un dispositif de pulsation, permet-

tant de produire des sollicitations de forte amplitude et de fréquence modérée sur le gradient pariétal de vitesse, incluant des situation avec changement de sens. Le post-traitement des mesures avec le problème inverse développé a mené à des résultats en bon accord avec des mesures complémentaires du gradient pariétal de vitesse, obtenues par LDA. Dans le second montage, la base d'un cylindre en rotation oscille parallèlement à une sonde tri-segmentée ED. Un fluide hautement visqueux permet ici d'effectuer des mesures de vitesse par PIV résolues en espace et en temps, amplifiant de façon considérable l'inertie du capteur ED puisque la diffusivité du fluide est largement réduite. Cet effet a notamment permis de tester l'algorithme inverse dans des conditions plus extrêmes et à Sr élevé, nombre adimensionnel caractérisant le poids des effets inertiels. Ainsi, des mouvements exposant de fortes fluctuations sur S et α ont été obtenus à haut Sr, offrant des cas de test intéressants à traiter avec le problème inverse. Dans la majorité des cas, les résultats concordent bien avec les mesures PIV, bien qu'ils n'ont pu être validés dans des conditions d'écoulement plus sévères, où des instabilités complexifient la résolution du problème inverse et où la fiabilité des mesures par PIV n'est plus assurée.

Néanmoins, en regard des nombreux essais de validations numérique et expérimentale réalisés et réussis, il apparait juste de considérer l'objectif principal du projet atteint, qui visait à développer un problème inverse pour la mesure des deux composantes du gradient pariétal de vitesse instantané à l'aide de sondes ED. Certes, la méthode développée n'est pas universelle sous sa forme actuelle et certaines améliorations pourraient être apportées, comme il sera discuté ci-après. Mis à part les travaux entourant le développement et la validation du problème inverse, notons également les contributions suivante en méthode ED :

- l'étalonnage numérique (chapitre 7), permettant de mieux lier des mesures de sondes au modèle numérique et de prendre en compte certains défauts géométriques ;
- la correction « en ligne » des paramètres ED dans le processus inverse (chapitre 8) ;
- l'étalonnage quasi-stationnaire (section 6.4.5), réalisé en générant des sollicitations à faibles fréquence et amplitude et pouvant remplacer l'étalonnage en régime stationnaire ;
- l'utilisation des équations de sensibilités pour le calcul de la matrice jacobienne dans le problème inverse (sections 4.3.1 et 5.2.2),

ainsi que les études sur

- l'influence de la taille de l'interstice d'une sonde tri-segmentée (section 5.3.2) ;
- la validité de l'hypothèse d'un profil de vitesse linéaire ($u = sy$) pour le cas d'un écoulement présentant un changement de sens périodique du cisaillement (section 7.3.1) ;
- la validité de la méthode de Sobolík à très haute fréquence (section 4.3.2) ;
- les procédures et considérations expérimentales telles que le vieillissement des sondes

et les effets d'empoissonnement (sections 6.4.3, 6.4.4, 6.4.5 et annexe H) ;
- l'influence de la concentration de l'espèce réduite (ferricyanure, section 6.4.1 et annexe F) ;
- l'influence du diamètre d'une sonde circulaire simple dans diverses expérimentations (chapitre 6).

10.2 Limitations de la solution proposée

Au même titre que toute méthode de mesure du frottement pariétal, la solution proposée n'est pas sans faiblesse. D'une part, l'aspect le plus contraignant provient, selon le candidat, de la nature même de la méthode ED, laquelle limite essentiellement son utilisation à des essais en laboratoire puisqu'un liquide contenant des ions spécifiques doit être utilisé. Divers mélanges ont toutefois été testés avec succès, dont certains fluides non newtoniens et à viscosité élevée. La taille du capteur peut aussi limiter son utilisation considérant le besoin d'une contre-électrode (ou anode) de plus grande taille.

D'autre part, en ce qui concerne les méthodes numérique et le problème inverse, on note les limitations dues :

- aux instabilités lorsque Sr est élevé et que le pas de temps est faible, ou en présence de bruits dans les mesures ;
- à la supposition d'un profil de vitesse linéaire (bien que cet aspect découle des fondements de la méthode ED et qu'il peut en fait être modifié dans l'équation de CD, comme fait en chapitre 7) ;
- à une mise en œuvre plus couteuse comparativement aux post-traitements plus traditionnels. La méthode ne peut donc être utilisée pour un affichage direct de la contrainte mesurée, par exemple ;
- à la nécessité d'utiliser une sonde tri-segmentée, plus difficile à fabriquer.

10.3 Améliorations futures

Bien des facteurs entourant l'utilisation de sondes ED et le post-traitement de signaux ont été testés dans le cadre de cette thèse. Toutefois, il en demeure que plusieurs sujets n'ont pu être (exhaustivement) explorés et analysés par le candidat, lesquels auraient le potentiel d'améliorer la robustesse et la polyvalence de la méthode proposée. En particulier, notons

- l'influence d'un gradient de vitesse axial dans les environs de la sonde ;
- l'influence d'une composante de vitesse perpendiculaire à la paroi non nulle sur le transfert de masse ;

- les méthodes de stabilisation plus poussées pour un problème inverse multidimensionnel ;
- la nature de la relation utilisée pour l'étalonnage numérique ;
- la validation de l'approche dans des conditions encore plus complexes, par exemple en écoulement turbulent, et où une mesure de référence fiable du gradient pariétal est disponible ;
- les méthodes de fabrication des capteurs ED. Par exemple, en profitant des avancées technologiques en photolithographie, des sondes de géométrie variée pourraient être fabriquées. Dans le même ordre d'idées, la taille d'un capteur ED a le potentiel d'être largement diminuée considérant l'utilisation en électrochimie *d'ultramicroélectrodes*, sondes d'une taille typiquement inférieure à 25 µm, allant même jusqu'à 0.1 µm (Bard et Faulkner, 2001) ;
- l'utilisation d'une sonde *double* à géométrie particulière dans le problème inverse bidimensionnel. En effet, l'usage d'une sonde tri-segmentée implique trois mesures de courant, donc trois équations à minimiser dans le problème pour seulement deux variables recherchées (S et α). La théorie pourrait ainsi être appliquée à une sonde comportant deux segments ;
- la recherche d'autres types d'espèces chimiques et de mélanges pouvant être utilisés avec la méthode ED, permettant ainsi d'élargir son domaine d'application ;
- l'application du problème inverse à d'autres types de capteurs dont la mesure est basée sur un transfert de masse ou de chaleur, par exemple pour le cas d'un film chaud.

En regard des travaux présentés dans cette thèse, certains pourraient constater que la mise en œuvre de la méthode ED peut s'avérer plutôt complexe considérant l'ensemble des facteurs affectant le signal d'une sonde et, au final, la mesure du gradient pariétal de vitesse. Toutefois, il a été vu que la plupart d'entre eux peuvent être inclus dans les constantes d'étalonnage en ayant recours à des précautions expérimentales adéquates, lesquelles sont en fait inévitables lorsqu'une précision est recherchée dans la mesure du frottement, peu importe la méthode utilisée. Il apparait aussi important de noter que l'utilisation des méthodes numériques développées n'est pas limitée qu'à la méthode ED, d'où la dernière amélioration mentionnée ci-haut. Le candidat aimerait enfin remercier et féliciter tout lecteur lisant ces derniers caractères pour leur persévérance, attention et goût de l'aventure. Certains divertissements additionnels suivent en annexes.

RÉFÉRENCES

Alfredsson, P. H., Johansson, A. V., Haritonidis, J. H. et Eckelmann, H. (1988). The fluctuating wall-shear stress and the velocity field in the viscous sublayer. *Phys. Fluids*, *31*(5), 1026–1033.

Ambari, A., Deslouis, C. et Tribollet, B. (1986). Frequency response of the mass transfer rate in a modulated flow at electrochemical probes. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *29*(1), 35–45.

Angell, D. H. et Dickinson, T. (1972). The kinetics of the ferrous/ferric and ferro/ferricyanide reactions at platinum and gold electrodes : Part i. kinetics at bare-metal surfaces. *J. Electroanal. Chem.*, *35*(1), 55–72.

Aoki, K., Guo, Y. et Chen, J. (2009). Diffusion-controlled currents in viscous solutions of polyethylene glycols. *J. Electroanal. Chem.*, *629*(1), 73–77.

Arvia, A. J., Marchiano, S. L. et Podesta, J. J. (1967). The diffusion of ferrocyanide and ferricyanide ions in aqueous solutions of potassium hydroxide. *Electrochim. Acta*, *12*(3), 259–266.

Baleras, F., Bonet, V., Deslouis, C., Maurin, G., Sobolík, V. et Tribollet, B. (1996). Flow measurement in an impinging jet cell with three-segment microelectrocles. *Exp. Fluids*, *22*(1), 87–93.

Bard, A. J. et Faulkner, L. R. (2001). *Electrochemical methods : fundamentals and applications*. Wiley, seconde édition.

Baur, J. E. et Wightman, R. M. (1991). Diffusion coefficients determined with microelectrodes. *J. Electroanal. Chem.*, *305*(1), 73–81.

Beck, J. V. et Woodbury, K. A. (2016). Inverse heat conduction problem : Sensitivity coefficient insights, filter coefficients, and intrinsic verification. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *97*, 578–588.

Berca, E.-L. (2007). *Instrumentation development for wall shear-stress applications in 3D complex flows*. Thèse de doctorat, EPFL.

Berger, F. P. et Ziai, A. (1983). Optimisation of experimental conditions for electrochemical mass transfer measurements. *Chem. Eng. Res. Des.*, *61*(6), 377–382.

Blel, W., Le Gentil-Lelièvre, C., Bénézech, T., Legrand, J. et Legentilhomme, P. (2009). Application of turbulent pulsating flows to the bacterial removal during a cleaning in place procedure. Part 1 : experimental analysis of wall shear stress in a cylindrical pipe. *J. Food Eng.*, *90*(4), 422–432.

Bruun, H. H. (1995). *Hot-wire anemometry-principles and signal analysis*. Oxford science publications.

Cognet, G. (1971). Utilisation de la polarographie pour l'étude de l'écoulement de couette. *Journal de Mécanique*, *10*(1), 65–90.

Dantec (2006). Bsa flow software – Installation & user's guide. *4.10*.

Deslouis, C., Gil, O. et Tribollet, B. (1990). Frequency response of electrochemical sensors to hydrodynamic fluctuations. *J. Fluid Mech.*, *215*, 85–100.

Deslouis, C., Huet, F., Gil, O. et Tribollet, B. (1993). Spectral analysis of wall turbulence with a bicircular electrochemical probe. *Exp. Fluids*, *16*(2), 97–104.

Deslouis, C., Tribollet, B. et Tihon, J. (2004). Near-wall turbulence in drag reducing flows investigated by the photolithography-electrochemical probes. *J. Non-Newtonian Fluid. Mech.*, *123*(2), 141–150.

Dib, A., Martemianov, S., Makhloufi, L. et Saidani, B. (2008). Thermo-compensation of electrodiffusional wall velocity gradient measurements. *Int. J. Heat Fluid Flow*, *29*(1), 219–228.

Dib, A., Martemianov, S., Makhloufi, L. et Saidani, B. (2014). Calibration of electrodiffusion probes for turbulent flow measurements. *Flow Meas. Instrum.*, *35*, 76–83.

Dimopoulos, H. G. et Hanratty, T. J. (1968). Velocity gradients at the wall for flow around a cylinder for reynolds numbers between 60 and 360. *J. Fluid Mech.*, *33*(2), 303–319.

Dumas, T., Lesage, F., Sobolík, V. et Latifi, M. A. (2009). Local flow direction measurements using tri-segmented microelectrode in packed beds. *Chem. Eng. Res. Des.*, *87*(7), 962–966.

Eisenberg, M., Tobias, C. W. et Wilke, C. R. (1954). Ionic mass transfer and concentration polarization at rotating electrodes. *J. Electrochem.Soc.*, *101*(6), 306–320.

Eroğlu, E., Yapici, S. et Nuri Şara, O. (2011). Some transport properties of potassium ferri/ferro-cyanide solutions in a wide range of schmidt numbers. *J. Chem. Eng. Data*, *56*(8), 3312–3317.

Evanoff, J. E. et Harris, W. E. (1978). Diffusion coefficients and viscosities in glycol and glycerol solutions. *Can. J. Chem.*, *56*(4), 574–577.

Fernholz, H. H., Janke, G., Schober, M., Wagner, P. M. et Warnack, D. (1996). New developments and applications of skin-friction measuring techniques. *Meas. Sci. Technol.*, *7*(10), 1396.

Fortin, A. et Garon, A. (2017). Les éléments finis : de la théorie à la pratique. *Université Laval*.

Fortuna, G. et Hanratty, T. J. (1971). Frequency response of the boundary layer on wall transfer probes. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *14*(9), 1499–1507.

Fourrié, G., Keirsbulck, L. et Labraga, L. (2013). Wall shear stress characterization of a 3D bluff-body separated flow. *J. Fluids Struct.*, *42*, 55–69.

Gaucher, C., Legentilhomme, P., Jaouen, P., Comiti, J. et Pruvost, J. (2002). Hydrodynamics study in a plane ultrafiltration module using an electrochemical method and particle image velocimetry visualization. *Exp. Fluids*, *32*(3), 283–293.

Griffiths, M., Ponce de León, C. et Walsh, F. C. (2005). Mass transport in the rectangular channel of a filter-press electrolyzer (the FM01-LC reactor). *AIChE Journal*, *51*(2), 682–687.

Große, S. et Schröder, W. (2008). Dynamic wall-shear stress measurements in turbulent pipe flow using the micro-pillar sensor MPS^3. *Int. J. Heat Fluid Flow*, *29*(3), 830–840.

Große, S., Schröder, W. et Brücker, C. (2006). Nano-newton drag sensor based on flexible micro-pillars. *Meas. Sci. Technol.*, *17*(10), 2689.

Hanratty, T. J. (1991). Use of the polarographic method to measure wall shear stress. *J. Appl. Electrochem.*, *21*(12), 1038–1046.

Hanratty, T. J. et Campbell, J. A. (1996). Measurement of wall shear stress. R. Goldstein, éditeur, *Fluid mechanics measurements (2nd edition)*, Taylor & Francis. 575–648.

Hanratty, T. J., Chorn, L. G. et Hatziavramidis, D. T. (1977). Turbulent fluctuations in the viscous wall region for newtonian and drag reducing fluids. *Phys. Fluids*, *20*(10), S112–S119.

Haritonidis, J. H. (1989). The measurement of wall shear stress. *Advances in fluid mechanics measurements*, Springer. 229–261.

He, S., Ariyaratne, C. et Vardy, A. E. (2011). Wall shear stress in accelerating turbulent pipe flow. *J. Fluid Mech.*, *685*, 440–460.

Hecht, F. (2012). New development in freefem++. *J. Numer. Math.*, *20*(3-4), 251–265.

Huchet, F., Havlica, J., Legentilhomme, P., Montillet, A., Comiti, J. et Tihon, J. (2008). Use of electrochemical microsensors for hydrodynamics study in crossing microchannels. *Microfluid Nanofluidics*, *5*(1), 55–64.

Kaiping, P. (1983). Unsteady forced convective heat transfer from a hot film in non-reversing and reversing shear flow. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *26*(4), 545–557.

Kristiawan, M., Jirout, T. et Sobolík, V. (2011). Components of wall shear rate in wavy Taylor–Couette flow. *Exp. Therm. Fluid Sci.*, *35*(7), 1304–1312.

Labraga, L., Bourabaa, N. et Berkah, T. (2002). Wall shear stress from a rotating cylinder in cross flow using the electrochemical technique. *Exp. Fluids*, *33*(3), 488–496.

Labraga, L., Tournier, C. et Florent, P. (1991). Experimental study of the frequency response of electrochemical split probes to transversal velocity fluctuations. *Exp. Fluids*, *11*(5), 325–332.

Laizet, S. et Lamballais, E. (2009). High-order compact schemes for incompressible flows : a simple and efficient method with the quasi-spectral accuracy. *J. Comput. Phys.*, *228*(16), 5989–6015.

Lamarche-Gagnon, M.-E., Sobolík, V. et Vétel, J. (2017a). Diagnostic of the fluctuating wall shear rate components using an uncalibrated three-segment electrodiffusion sensor. *Soumis*.

Lamarche-Gagnon, M.-E., Sobolík, V. et Vétel, J. (2017b). Two-component instantaneous wall shear rate measurements in reversing flows. *Soumis*.

Lamarche-Gagnon, M.-E. et Vétel, J. (2017). An inverse problem to assess the two-component unsteady wall shear rate. *Soumis*.

Legrand, J., Dumont, E., Comiti, J. et Fayolle, F. (2000). Diffusion coefficients of ferricyanide ions in polymeric solutions – comparison of different experimental methods. *Electrochim. Acta*, *45*(11), 1791–1803.

Ling, S. C. (1963). Heat transfer from a small isothermal spanwise strip on an insulated boundary. *J. Heat Transfer*, *85*(3), 230–235.

Liu, T., Woodiga, S., Gregory, J. et Sullivan, J. (2014). Global skin-friction diagnostics based on surface mass-transfer visualizations. *AIAA J.*, *52*(11), 2369–2383.

Mao, Z.-X. et Hanratty, T. J. (1985). The use of scalar transport probes to measure wall shear stress in a flow with imposed oscillations. *Exp. Fluids*, *3*(3), 129–135.

Mao, Z.-X. et Hanratty, T. J. (1991a). Analysis of wall shear stress probes in large amplitude unsteady flows. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *34*(1), 281–290.

Mao, Z.-X. et Hanratty, T. J. (1991b). Application of an inverse mass transfer method to the measurement of turbulent fluctuations in the velocity gradient at the wall. *Exp. Fluids*, *11*(1), 65–73.

Mao, Z.-X. et Hanratty, T. J. (1992). Measurement of wall shear rate in large amplitude unsteady reversing flows. *Exp. Fluids*, *12*(4), 342–350.

Maquinghen, T. (1999). *Métrologie tridimensionnelle instationnaire à l'aide de la méthode polarographique*. Thèse de doctorat, Valenciennes.

Marusic, I. et Heuer, W. D. (2007). Reynolds number invariance of the structure inclination angle in wall turbulence. *Phys. Rev. Lett.*, *99*(11), 114504.

Mehta, R. D. et Bradshaw, P. (1979). Design rules for small low speed wind tunnels. *The Aeronautical Journal*, *83*(827), 443–453.

Menendez, A. N. et Ramaprian, B. R. (1985). The use of flush-mounted hot-film gauges to measure skin friction in unsteady boundary layers. *J. Fluid Mech.*, *161*, 139–159.

Mitchell, J. E. (1965). *Investigation of wall turbulence using a diffusion-controlled electrode*. Thèse de doctorat, University of Illinois at Urbana-Champaign.

Mitchell, J. E. et Hanratty, T. J. (1966). A study of turbulence at a wall using an electrochemical wall shear-stress meter. *J. Fluid Mech.*, *26*(1), 199–221.

Mysels, K. J. (1956). Electrodiffusion : A fluctuation method for measuring reaction rates. *J. Chem. Phys.*, *24*(2), 371–375.

Naughton, J. W. et Sheplak, M. (2002). Modern developments in shear-stress measurement. *Prog. Aerosp. Sci.*, *38*(6), 515–570.

Ozisik, M. N. (2000). *Inverse heat transfer : fundamentals and applications*. CRC Press.

Padmanabhan, A., Sheplak, M., Breuer, K. S. et Schmidt, M. A. (1997). Micromachined sensors for static and dynamic shear-stress measurements in aerodynamic flows. *Transducers '97*. IEEE, 137–140.

Pauli, J., Sobolik, V. et Onken, U. (1991). Oxygen as depolarizer in electrodiffusion diagnostics of flow. *Chem. Eng. Sci.*, *46*(12), 3302–3304.

Pedley, T. J. (1976). Heat transfer from a hot film in reversing shear flow. *J. Fluid Mech.*, *78*(3), 513–534.

Phares, D. J., Smedley, G. T. et Flagan, R. C. (2000). The wall shear stress produced by the normal impingement of a jet on a flat surface. *J. Fluid Mech.*, *418*, 351–375.

Press, W. H., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T. et Flannery, B. P. (2007). *Numerical Recipes 3rd Edition : The Art of Scientific Computing*. Cambridge University Press.

Py, B. (1973). Étude tridimensionnelle de la sous-couche visqueuse dans une veine rectangulaire par des mesures de transfert de matière en paroi. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *16*(1), 129–144.

Py, B. et Gosse, J. (1969). Sur la réalisation d'une sonde polarographique sensible à la vitesse et à la direction de l'écoulement. *C. R. Hebd. Séances Acad. Sci.*, *269*(10), 401.

Rehimi, F. et Aloui, F. (2011). Synchronized analysis of an unsteady laminar flow downstream of a circular cylinder centred between two parallel walls using PIV and mass transfer probes. *Exp. Fluids*, *51*(1), 1–22.

Rehimi, F., Aloui, F., Nasrallah, S. B., Doubliez, L. et Legrand, J. (2006). Inverse method for electrodiffusional diagnostics of flows. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *49*(7), 1242–1254.

Reiss, L. P. et Hanratty, T. J. (1963). An experimental study of the unsteady nature of the viscous sublayer. *AlChE J.*, *9*(2), 154–160.

Roffel, B. et Van de Graaf, J. J. (1977). The diffusion coefficient of ferricyanide ions in aqueous potassium chloride solutions with and without polyethylene oxide addition. *J. Chem. Eng. Data*, *22*(3), 300–302.

Saraç, H., Patrick, M. A. et Wragg, A. A. (1993). Physical properties of the ternary electrolyte potassium ferri-ferrocyanide in aqueous sodium hydroxide solution in the range 10–90 °C. *J. Appl. Electrochem.*, *23*(1), 51–55.

Schlichting, H. et Gersten, K. (2000). *Boundary-layer theory*. Springer Science & Business Media.

Selman, J. R. et Tobias, C. W. (1978). Mass-transfer measurements by the limiting-current technique. *Advances in Chemical Engineering*, *10*, 211–318.

Shenefelt, J. R., Luck, R., Taylor, R. P. et Berry, J. T. (2002). Solution to inverse heat conduction problems employing singular value decomposition and model-reduction. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *45*(1), 67–74.

Sheplak, M., Cattafesta, L., Nishida, T. et McGinley, C. (2004). MEMS shear stress sensors : promise and progress. *24th AIAA Aerodynamic Measurement Technology and Ground Testing Conference*. 2606.

Sirkar, K. K. et Hanratty, T. J. (1970). The limiting behaviour of the turbulent transverse velocity component close to a wall. *J. Fluid Mech.*, *44*(3), 605–614.

Smits, A. J., McKeon, B. J. et Marusic, I. (2011). High–reynolds number wall turbulence. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, *43*, 353–375.

Sobolík, V., Benabes, B. et Cognet, G. (1995). Study of Taylor-Couette flow using a three-segment electrodiffusion probe. *J. Appl. Electrochem.*, *25*(5), 441–449.

Sobolik, V., Jirout, T., Havlica, J. et Kristiawan, M. (2011). Wall shear rates in Taylor vortex flow. *J. Appl. Fluid Mech.*, *4*(3).

Sobolik, V., Legrand, J., Latifi, A. et Wein, O. (2007). Calibration of a segmented friction probe flush mounted in a sphere. *Meas. Sci. Technol.*, *18*(8), 2704.

Sobolík, V., Pauli, J. et Onken, U. (1991). Three-segment electrodiffusion probe for velocity measurements. *Exp. Fluids*, *11*(2), 186–190.

Sobolík, V., Tihon, J., Wein, O. et Wichterle, K. (1998). Calibration of electrodiffusion friction probes using a voltage-step transient. *J. Appl. Electrochem.*, *28*(3), 329–335.

Sobolík, V., Wein, O. et **C**ermák, J. (1987). Simultaneous measurement of film thickness and wall shear stress in wavy flow of non-newtonian liquids. *Collect. Czech. Chem. Commun.*, *52*(4), 913–928.

Sobolík, V., Wein, O., Gil, O. et Tribollet, B. (1990). Three-segment electrodiffusion probes for measuring velocity fields close to a wall. *Exp. Fluids*, *9*(1), 43–48.

Son, J. S. et Hanratty, T. J. (1969). Velocity gradients at the wall for flow around a cylinder at reynolds numbers from 5×10^3 to 10^5. *J. Fluid Mech.*, *35*(2), 353–368.

Surana, A., Jacobs, G. B., Grunberg, O. et Haller, G. (2008). An exact theory of three-dimensional fixed separation in unsteady flows. *Phys. Fluids*, *20*(10), 107101.

Szánto, D. A., Cleghorn, S., Ponce-de León, C. et Walsh, F. C. (2008). The limiting current for reduction of ferricyanide ion at nickel : the importance of experimental conditions. *AIChE J.*, *54*(3), 802–810.

Taama, W. M., Plimley, R. E. et Scott, K. (1996). Influence of supporting electrolyte on ferricyanide reduction at a rotating disc electrode. *Electrochim. Acta*, *41*(4), 549–551.

Tardu, F. S. et Pham, C. T. (2005). Response of wall hot-film gages with longitudinal diffusion and heat conduction to the substrate. *J. Heat Transfer*, *127*(8), 812–819.

Tihon, J. (2014). Application of the electrodiffusion method for near-wall flow diagnostics. *EPJ Web of Conferences*, *67*, 2117.

Tihon, J., Legrand, J. et Legentilhomme, P. (2001). Near-wall investigation of backward-facing step flows. *Exp. Fluids*, *31*(5), 484–493.

Tihon, J., P**e**nkavová, V. et Vejra**z**ka, J. (2014). Wall shear stress induced by a large bubble rising in an inclined rectangular channel. *Int. J. Multiph. Flow*, *67*, 76–87.

Tihon, J., Tovchigrechko, V., Sobolík, V. et Wein, O. (2003). Electrodiffusion detection of the near-wall flow reversal in liquid films at the regime of solitary waves. *J. Appl. Electrochem.*, *33*(7), 577–587.

Tournier, C. et Py, B. (1978). The behaviour of naturally oscillating three-dimensional flow around a cylinder. *J. Fluid Mech.*, *85*(1), 161–186.

Wang, D. M. et Tarbell, J. M. (1993). An approximate solution for the dynamic response of wall transfer probes. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *36*(18), 4341–4349.

Wasselet, M. (2016). *Calcul des forces et moments sur des corps immergés par la méthode des éléments spectraux*. Mémoire de maîtrise, Polytechnique Montréal, Canada.

Wein, O. et Kovalevskaya, N. D. (1984). Transient convective diffusion on a convex electrode in the presence of anomalous wall effects. *Collect. Czech. Chem. Commun.*, *49*(5), 1297–1303.

Wein, O. et Sobolík, V. (1987). Theory of direction sensitive probes for electrodiffusion measurement of wall velocity gradients. *Collect. Czech. Chem. Commun.*, *52*(9), 2169–2180.

Wein, O. et Sobolík, V. (1989). Segmented electrodiffusion probes : Simultaneous measurement of shear rate and normal flow component. *Collect. Czech. Chem. Commun.*, *54*(11), 3043–3060.

Wein, O., Tovcigrecko, V. V. et Sobolík, V. (2006). Transient convective diffusion to a circular sink at finite peclet number. *Int. J. Heat Mass Transfer*, *49*(23), 4596–4607.

Wein, O. et Wichterle, K. (2008). Theory of electrodiffusion friction probes in microdisperse liquids 8 : Effect of apparent wall slip and insulating gaps on the directional characteristics. Rapport technique, ICPF.

White, F. M. et Corfield, I. (2006). *Viscous fluid flow*, vol. 3. McGraw-Hill New York.

Wietrzak, A. et Lueptow, R. M. (1994). Wall shear stress and velocity in a turbulent axisymmetric boundary layer. *J. Fluid Mech.*, *259*, 191–218.

Wouahbi, F., Allaf, K. et Sobolik, V. (2007). Electrochemical analysis of Taylor vortices. *J. Appl. Electrochem.*, *37*(1), 57–62.

Zhang, Z. (2010). *LDA application methods : laser Doppler anemometry for fluid dynamics*. Springer Berlin.

Zidouh, H., Labraga, L. et William-Louis, M. (2009). Unsteady wall shear stress in transient flow using electrochemical method. *J. Fluids Eng.*, *131*(5), 051403.

ANNEXE A FORME VARIATIONNELLE DE L'ÉQUATION DE CD

L'équation générale de CD pour un écoulement incompressible ($\nabla \cdot \boldsymbol{u} = 0$) avec un coefficient de diffusion constant se formule par

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla c = D\Delta c + f, \tag{A.1}$$

où f est un terme source. Multiplions cette équation par une fonction test ϕ et intégrons sur le domaine Ω :

$$\int_\Omega \phi \left[\frac{\partial c}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla c\right] dV = \int_\Omega \phi D\Delta c \, dV + \int_\Omega f dV. \tag{A.2}$$

En utilisant le théorème de flux-divergence, le premier terme du membre de droite peut s'écrire

$$\int_\Omega \phi D\nabla \cdot \nabla c \, dV = \int_\Gamma \phi D\nabla c \cdot \boldsymbol{n} \, dS - \int_\Omega D\nabla c \cdot \nabla \phi \, dV, \tag{A.3}$$

avec $\boldsymbol{n}$ le vecteur normal et Γ la frontière du domaine. Puisque les fonctions ϕ sont nulles sur les frontières avec une condition limite de Dirichlet, seules les conditions limites naturelles de Neumann (et/ou Robin, le cas échéant) apparaissent dans la forme faible ; l'intégrale sur Γ devient ainsi

$$\int_\Gamma \phi D\nabla c \cdot \boldsymbol{n} \, dS = \sum_i \int_{\Gamma_i} g_i \phi \, dS, \tag{A.4}$$

avec $g_i = D\nabla c \cdot n$ le flux imposé à la frontière Γ_i. Puisque selon la Figure 2.9 tous les flux sont nuls, l'intégrale sur Γ disparait naturellement de l'équation. En réarrangeant (A.2) avec (A.3), on obtient

$$\int_\Omega \phi \left[\frac{\partial c}{\partial t} + \boldsymbol{u} \cdot \nabla c\right] dV + \int_\Omega D\nabla c \cdot \nabla \phi \, dV = \int_\Omega \phi f dV. \tag{A.5}$$

Les membres de gauche et de droite représentent respectivement les parties *bilinéaire* et *linéaire* de l'équation utilisée dans `FreeFem++`. On notera que f n'est non-nul que dans les équations des sensibilités. Sous forme matricielle, (A.5) peut se formuler par

$$\mathbf{A}\boldsymbol{C} = \boldsymbol{B}, \tag{A.6}$$

où $\mathbf{A}$ est la matrice élémentaire ou de rigidité, $\boldsymbol{C}$ est le vecteur d'inconnues et $\boldsymbol{B}$ regroupe les contributions connues.

ANNEXE B MÉTHODE DES RÉACTIONS

Cette section présente, d'une façon très générale, la méthode utilisée pour le calcul des *variables secondaires* ou *réactions*.

En éléments finis, on peut réécrire le vecteur des sollicitations élémentaires ($\boldsymbol{B}$ en équation (A.6)) tel que

$$\boldsymbol{B} = \boldsymbol{F} + \boldsymbol{R}, \tag{B.1}$$

où $\boldsymbol{F}$ contient les contributions connues (tels que les termes sources ou les termes découlant de la dérivation temporelle) et $\boldsymbol{R}$ est le vecteur des réactions, regroupant les sollicitations des conditions limites naturelles. Sur une certaine frontière Γ, $\boldsymbol{R}$ est donc, dans notre cas, directement lié au flux (de concentration) et respecte (Fortin et Garon, 2017; Wasselet, 2016)

$$\sum R_i = \int_\Gamma D\nabla c \cdot \boldsymbol{n}\, dS, \tag{B.2}$$

où la sommation est effectuée sur les degrés de liberté situés sur Γ. Les composantes de $\boldsymbol{R}$ dans (A.6) seront non-nulles aux nœuds où un flux est imposé (e.g. condition de Neumann), de même qu'aux nœuds où les conditions de Dirichlet sont imposées. En effet, lorsque la variable primaire (ici, c) est connue, la variable secondaire est inconnue (Fortin et Garon, 2017). Ce sont donc ces variables secondaires associées à la condition de Dirichlet à la sonde ($c = 0$) que l'on cherchera à calculer pour évaluer le flux. Pour ce faire, le système matriciel (A.6) peut se reformuler tel que

$$\begin{bmatrix} \mathbf{A_{11}} & \mathbf{A_{12}} \\ \mathbf{A_{21}} & \mathbf{A_{22}} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \boldsymbol{C'} \\ \boldsymbol{C_{\mathbf{dir}}} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{F'} \\ \boldsymbol{F_{\mathbf{dir}}} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \boldsymbol{R'} \\ \boldsymbol{R_{\mathbf{dir}}} \end{bmatrix}, \tag{B.3}$$

où ont été séparés les termes relatifs à la condition de Dirichlet à la sonde (d'indice « dir »). Le flux ou transfert de masse peut ainsi être évalué en sommant ces contributions R_{dir} sur l'ensemble des nœuds i à la frontière Γ_{dir}, correspondant ici à la sonde. Ce calcul peut se voir comme un post-traitement puisque, selon (B.3), on a

$$\boldsymbol{R_{\mathbf{dir}}} = \mathbf{A_{21}}\boldsymbol{C'} + \mathbf{A_{22}}\boldsymbol{C_{\mathbf{dir}}} - \boldsymbol{F_{\mathbf{dir}}}, \tag{B.4}$$

lesquelles quantités sont accessibles une fois (A.6) résolue. Enfin, comme à la sonde $\boldsymbol{C_{\mathbf{dir}}} = \mathbf{0}$, on obtient

$$\boldsymbol{R_{\mathbf{dir}}} = \mathbf{A_{21}}\boldsymbol{C'} - \boldsymbol{F_{\mathbf{dir}}}. \tag{B.5}$$

On notera que la formulation (B.2) n'est vraie que si Γ_{dir} est une courbe (ou surface) fermée, ce qui n'est pas le cas pour la sonde ED. Toutefois, cette circonstance n'affecte pas le transfert de masse mesuré dans le problème direct, car un flux nul est imposé sur les frontières en amont et en aval de la sonde ($\partial c/\partial y = 0$, cf. Figure 2.9).

ANNEXE C COMPOSANTS DU CANAL ED

La majeure partie des expérimentations menant aux résultats présentés en chapitres 6 et 7 ont été effectuées au sein du canal ED, banc de mesure conçu et fabriqué durant le projet de recherche. Cette section fournit des détails supplémentaires sur les composants et caractéristiques de ce montage.

La compagnie Mëkanic a été embauchée pour la conception et la fabrication du canal ED. Le candidat avait la tâche de préparer le cahier des charges du banc de mesure, d'assembler les

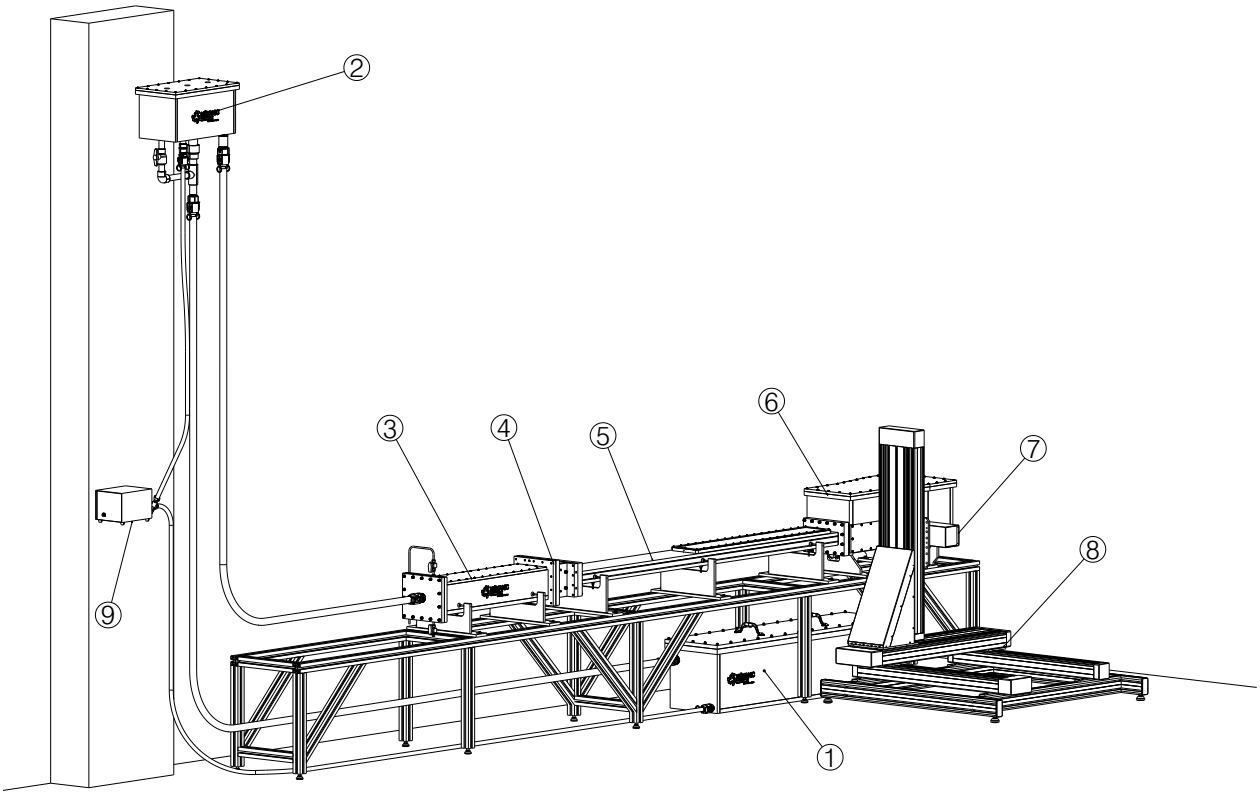


Figure C.1 Vue d'ensemble du canal ED. Le fluide stocké dans le bassin (1) est d'abord pompé dans le réservoir en hauteur (2), où des séparations permettent d'isoler l'écoulement principal de la pompe (9) et de maintenir une colonne de fluide constante. Le fluide traverse ensuite une valve de contrôle du débit (non illustrée) puis le dispositif de pulsation (non illustré), pour ensuite entrer dans la chambre de tranquillisation (3), accélérer dans la contraction 2D (4) et s'écouler dans le canal (5), où se retrouve la section d'essai. L'écoulement se déverse finalement dans le divergent (6) puis retourne dans le bassin (1). Sont également illustrés l'unité LDA (7) et le système de déplacement trois axes (8)

composants et d'effectuer les tests de mise en fonction. Le produit tel que conçu par Mëkanic est illustré en Figure C.1. Certains ajustements ont par la suite été apportés par le candidat pour compléter les exigences du cahier des charges, notamment l'ajout :

- d'une valve de régulation du débit contrôlée électroniquement ;
- d'un régulateur de la température du fluide ;
- d'un dispositif de pulsation de l'écoulement ;
- d'un apport en azote, permettant de purger l'oxygène dissout dans la solution (cf. section 2.6.9).

La section test a également été modifiée pour accueillir des sondes ED. Aucun débitmètre n'a été installé dans le montage pour minimiser les pertes de charges précédant la section d'essai. L'ajustement du débit est possible en caractérisant d'abord l'écoulement par LDA à une certaine ouverture de valve, dont la position peut être contrôlée grâce à un actuateur électronique. À ouverture complète, les pertes de charge associées à la valve de contrôle sont minimes.

Pulsation de l'écoulement

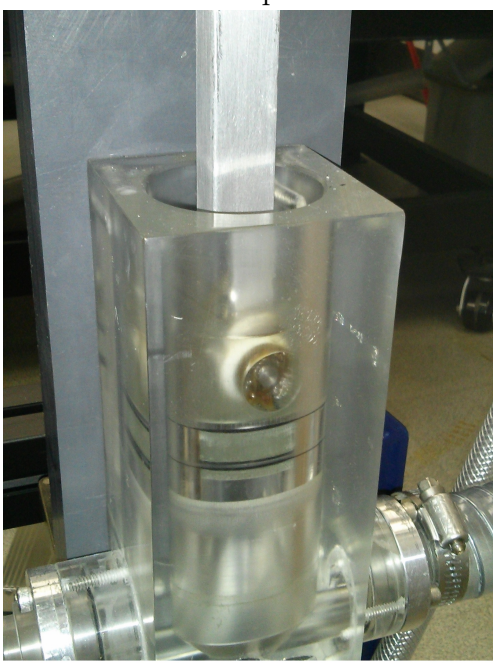
Piston	Moteur en porte à faux
$f \lesssim 15Hz$	5 Hz $< f <$ 50 Hz
Forte amplitude	Amplitude limitée
	

Figure C.2 Dispositifs de pulsation de l'écoulement testés

Bien que plusieurs dispositifs aient été testés, seulement deux sont ici présentés. Le premier consiste en un système bielle–manivelle relié à un piston dans une cylindrée de 2 po de diamètre (Figure C.2). La course du piston est ajustable en variant l'excentricité de la bielle. Ce système permet d'obtenir une forte amplitude de pulsation à des fréquences modérées ; alors que le moteur pas à pas fixé à la manivelle peut opérer jusqu'à une fréquence $f = 50\,\mathrm{Hz}$, ce système est généralement limité à $f \lesssim 15\,\mathrm{Hz}$ en raison des vibrations. Le second dispositif consiste en un moteur pas à pas attaché à une poutre en porte à faux (Figure C.2), sur laquelle est fixé un tuyau où circule le fluide. En attachant un balourd de poids variable sur l'axe du moteur et en variant la longueur de la poutre, ce système peut vibrer et générer des fluctuations de faible amplitude et haute fréquence (jusqu'à $f \sim 50\,\mathrm{Hz}$) dans l'écoulement. Puisque la plupart des travaux du présent projet de recherche nécessitaient de fortes amplitudes, le système de piston a essentiellement été utilisé pour obtenir les résultats présentés en chapitres 6 et 7.

Conditionnement de l'écoulement précédant la section d'essai

Le cahier des charges prévoyait un banc d'essai modulable et facilement ajustable puisque différentes configurations devaient être testées. La chambre de tranquilisation (Figure C.3) a pour but de ralentir le fluide et de dissiper les fluctuations dans l'écoulement avant le canal. Une première caractéristique importante est d'augmenter considérablement le rapport d'aire entre l'entrée du fluide (tuyau 1 po de diamètre) et la chambre (section de $5 \times 4\,\mathrm{po}$), qui est ici ~ 25. La chambre de tranquilisation a également été conçue de façon à permettre un positionnement polyvalent de grilles et nids d'abeilles. Puisque les études sur l'agencement de ces éléments sont souvent réalisées en régime turbulent et que les recommandations varient selon les travaux, plusieurs dispositions ont été testées, en suivant les contraintes générales suivantes : la taille des mailles des grilles/nids d'abeille doit diminuer avec la position axiale ; l'espacement entre les éléments (et avant la contraction) devrait être d'au moins 0.2 fois le diamètre (hydraulique) de la conduite (Mehta et Bradshaw, 1979). La qualité de la disposition a été jugée en mesurant le taux de fluctuation en section d'essai par LDA. L'agencement illustré en Figure C.3 (bas) a été retenu, où les grilles sont représentées par des traits pointillés et le nid d'abeille par l'alignement de traits pleins. De gauche à droite, on retrouve :

- une grille 10×10 (10 mailles par po en largeur et en hauteur), diamètre de fil $d_f = 0.023\,\mathrm{po}$;
- un nid d'abeille de 1 po de long, maille de 3 mm de côté ;
- une grille 14×14, $d_f = 0.017\,\mathrm{po}$;
- une grille 20×20, $d_f = 0.016\,\mathrm{po}$.

Cette disposition offre un taux de fluctuation $\sim 0.5\,\%$ à $Re = 4u_{\mathrm{axe}}h/3\nu \simeq 1300$ (Figure C.4).

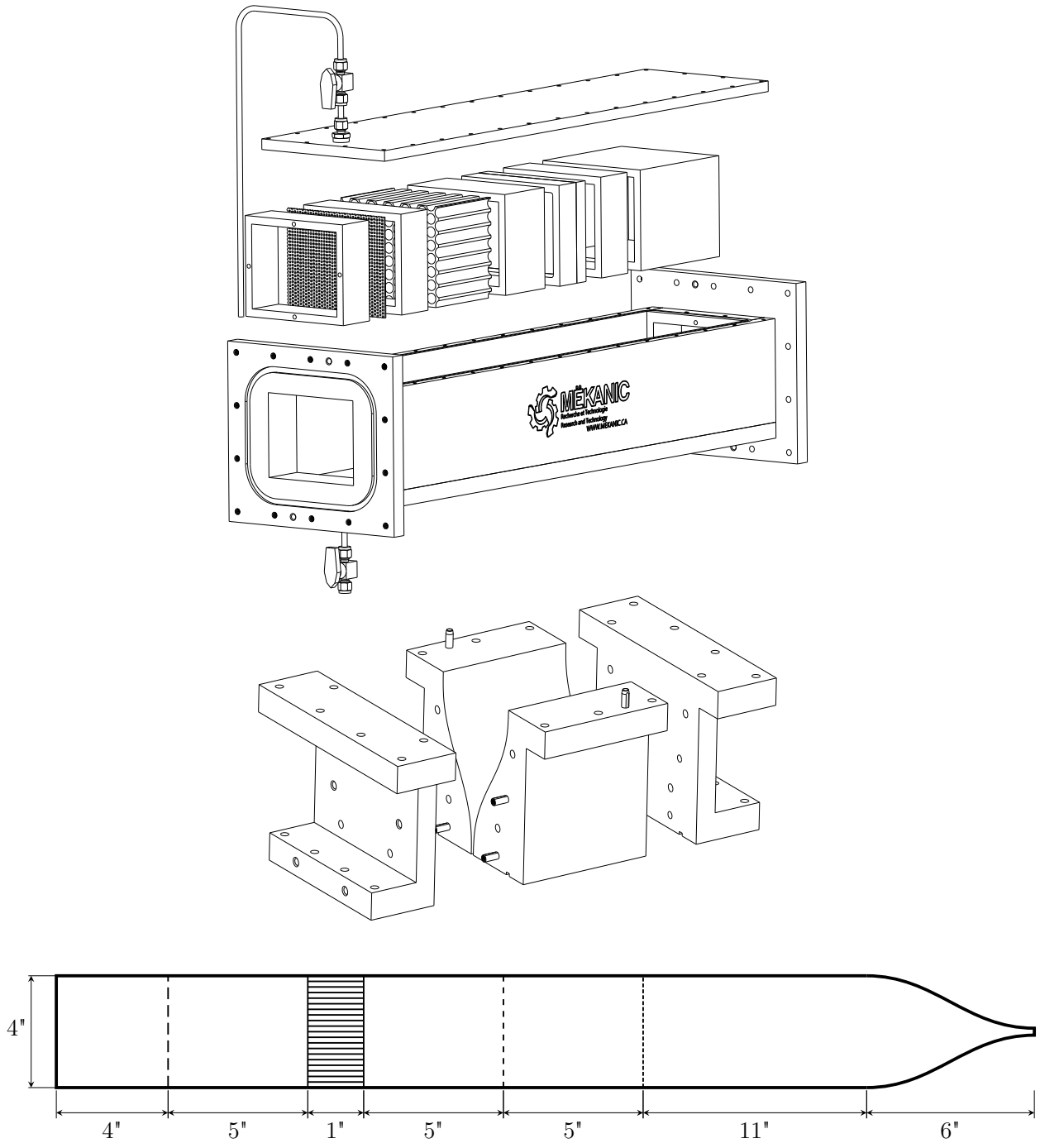


Figure C.3 Haut : chambre de tranquilisation de l'écoulement, composée de grilles et d'un nid d'abeille. Des pièces de différentes longueurs permettent de varier l'espacement entre les différents composants. Deux valves permettent de purger l'air (dessus) et le fluide (dessous). Milieu : Contraction bidimensionnelle. Bas : Positionnement des éléments de conditionnement de l'écoulement dans la chambre de tranquilisation

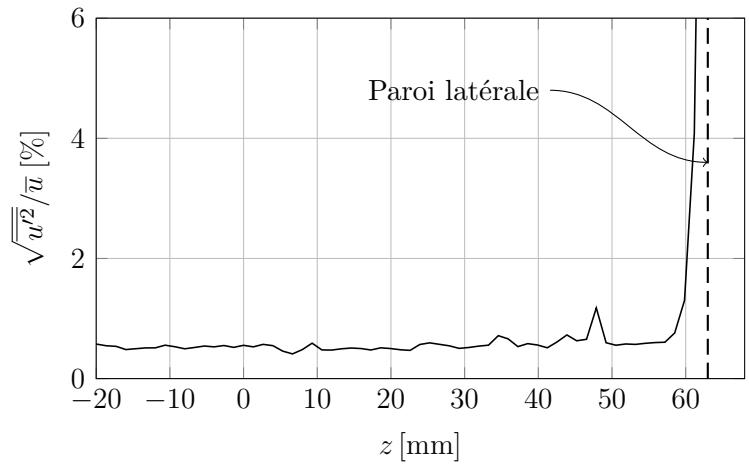


Figure C.4 Taux de fluctuation de la vitesse axiale u_{axe} selon la position transversale z en section d'essai, centrée en $z = 0$

Toutefois, l'ajout de ces éléments ne semblait pas réduire de façon significative le taux de fluctuation, déjà relativement faible aux débits et *Re* étudiés. Sans aucun élément, un taux de fluctuation $\sim 1\,\%$ est obtenu. Certes, la contraction bidimensionnelle (Figure C.3) suivant la chambre de tranquilisation doit jouer un rôle important dans l'atténuation des fluctuations, caractérisée par un rapport d'aire ~ 32 et dont la courbure suit un polynôme d'ordre 5.

Canal, section d'essai et divergent

Un canal en PMMA de 2 m de long suit la contraction bidimensionnelle. Le canal est formé de deux plaques planes rectangulaires (Figure C.5) collées sur deux longues lattes également faites de PMMA, servant à la fois de support et de paroi latérale. L'épaisseur de 1.25 po des plaques assure la rigidité du canal. La seconde moitié est dotée d'un couvercle amovible ; ce segment est souvent référé par *section d'essai* dans le présent document. Son épaisseur de 1.75 po permet de bien supporter les sondes ED, qui sont installées en fin de section (cf. Figure 7.3). Le fluide du canal se déverse ensuite dans le divergent qui ralentit l'écoulement et fait la transition vers le bassin. Le divergent comprend un drain de hauteur variable dans la subdivision du fond, permettant de contrôler la hauteur de la surface libre. Un hublot donne accès à la zone de déversement de la section d'essai et permet notamment de faire des mesures LDA une dizaine de centimètres en aval du canal (Figure C.5). Un couvercle peut être fixé pour isoler le fluide de l'air ambiant.

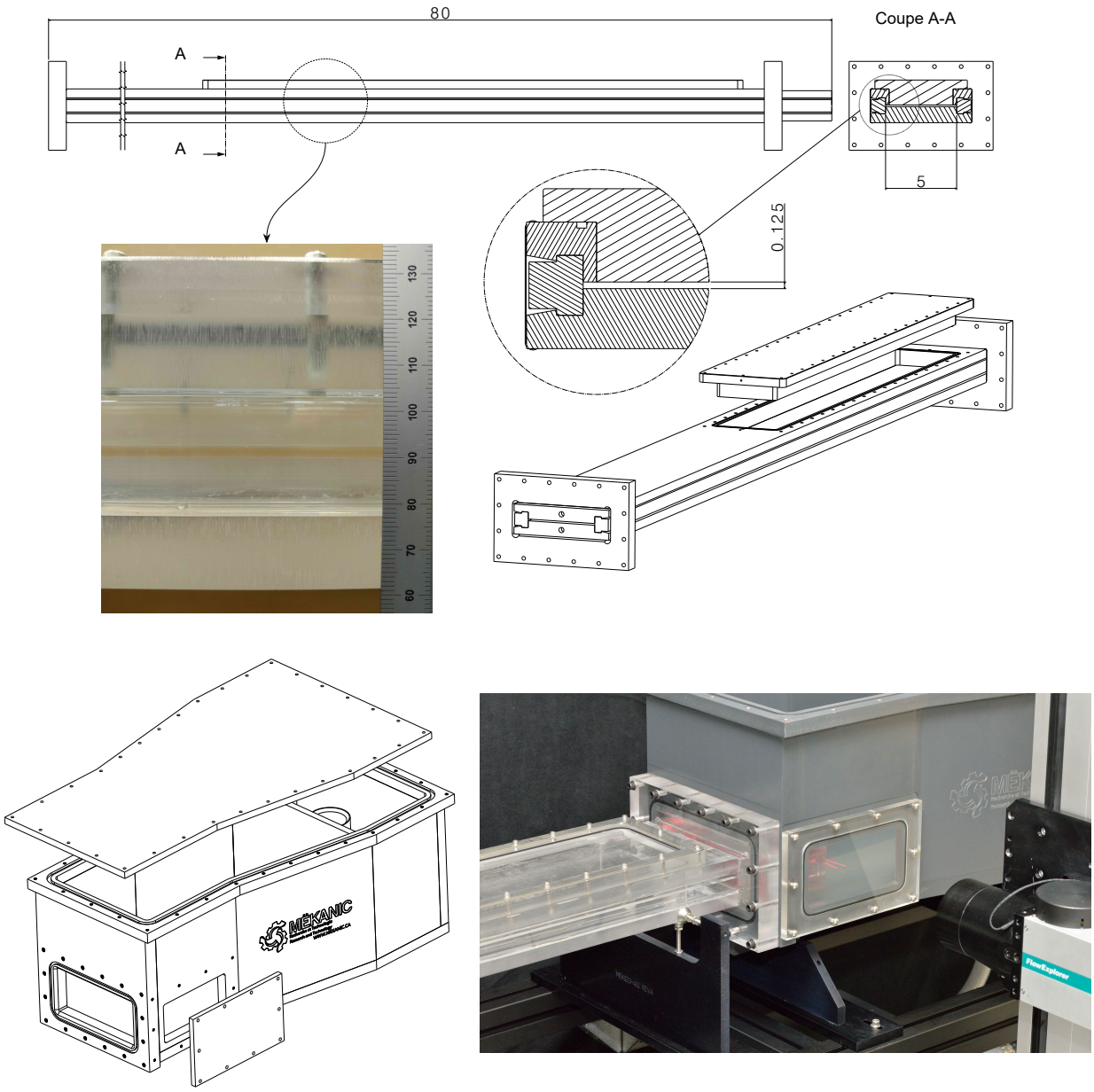


Figure C.5 Haut : canal à l'intérieur duquel se développe l'écoulement et comprenant la section d'essai, où se retrouve les sondes ED (non illustrées). Le canal est entièrement fabriqué de PMMA. Bas : dessin de détails (gauche) du divergent, composant qui suit le canal. À droite, le système de déplacement est positionné afin d'effectuer des mesures de vitesse LDA en sortie de la section d'essai, dans le divergent. On notera que, normalement, les mesures sont effectuées plus en amont, à l'emplacement des sondes. Les dimensions des dessins de détails sont en pouce ; celles sur la photo en mm

ANNEXE D CALCUL DU GRADIENT PARIÉTAL DE VITESSE FLUCTUANT À PARTIR DE MESURES DE VITESSE

Il a été montré en chapitre 7 que l'écoulement instationnaire dans la section d'essai du canal ED se rapproche fortement de la formulation analytique d'un écoulement de Poiseuille plan pulsé, où le profil de vitesse fluctuant est représenté par

$$u'(y,t) = \sum_n u'_n(y,t). \tag{D.1}$$

avec

$$u'_n(y,t) = -\frac{K_n}{\omega_n} \mathrm{e}^{i\omega_n t} \left[1 - \frac{\cosh\left(y\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}{\cosh\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)} \right]. \tag{D.2}$$

Pour utiliser (D.2), les constantes K_n doivent d'abord être calculées. Bien que ces dernières dépendent de la forme du gradient de pression instationnaire, elles peuvent plus simplement être reliées aux coefficients d'une série de Fourier d'un signal de vitesse quelconque $x(t)$ mesuré à une position donnée, défini par

$$x(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} \left[\frac{a_n - ib_n}{2} \mathrm{e}^{\omega_n t} \right], \tag{D.3}$$

où

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{2}{T} \int_0^T x(t) \cos(\omega_n t) dt, \\ b_n &= \frac{2}{T} \int_0^T x(t) \sin(\omega_n t) dt, \end{aligned} \tag{D.4}$$

avec T la période du signal et $n \neq 0$. En discrétisant le signal en N pas de temps Δt tels que

$$\begin{aligned} t_k &= k\Delta t; \\ T &= N\Delta t; \\ f_n &= \frac{n}{T} = \frac{n}{N\Delta t}; \\ \omega_n &= 2\pi f_n, \end{aligned}$$

(D.4) devient

$$a_n = \frac{2}{N}\sum_{k=1}^{N} x_k \cos(2\pi nk/N),$$
$$b_n = \frac{2}{N}\sum_{k=1}^{N} x_k \sin(2\pi nk/N). \tag{D.5}$$

Or, on cherche à ce que la décomposition (D.3) représente le profil de vitesse analytique donné par (D.2) à une certaine position y, soit à ce que

$$x_n(t) = u'_n(y,t)$$

et donc que

$$\frac{a_n - ib_n}{2}\mathrm{e}^{i\omega_n t} = -\frac{K_n}{\omega_n}\mathrm{e}^{i\omega_n t}\left[1 - \frac{\cosh\left(y\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}{\cosh\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}\right];$$
$$K_n = \frac{\dfrac{\pi n}{T}(ib_n - a_n)}{1 - \dfrac{\cosh\left(y\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}{\cosh\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}}. \tag{D.6}$$

En particulier, à la position $y = 0$, cette équation se simplifie à

$$K_n = \frac{\pi n(ib_n - a_n)/T}{1 - \cosh^{-1}\left(h/2\sqrt{i\omega_n/\nu}\right)}. \tag{D.7}$$

Ainsi, en représentant un signal temporel de la vitesse au centre du canal $u_{\mathrm{axe}}(t)$ à l'aide d'une série de Fourier, les constantes K_n peuvent être calculées.

ANNEXE E HAUTEUR LOCALE EN SECTION D'ESSAI

Selon (6.1), le gradient pariétal de vitesse moyen est directement proportionnel à la hauteur h dans un écoulement de Poiseuille, soit $\overline{s}_{\text{ana}} = 4\overline{u}_{\text{axe}}/h$. h intervient également dans (6.2), l'équation de la fluctuation s'_{ana}. Une erreur sur l'évaluation de la hauteur affecte donc considérablement la valeur de référence s_{ana}, utilisée autant pour étalonner les sondes que pour valider les mesures.

h a été évaluée à l'aide d'un micromètre de profondeur (Figure E.1) à chacune des trois positions des sondes ED (cf. Figure 7.3). Deux mesures de micromètre sont nécessaires pour évaluer h :

1. la profondeur totale H, effectuée lorsque le couvercle est fixé sur le canal, incluant ainsi l'épaisseur du couvercle ;
2. l'épaisseur e du couvercle seul, mesurée lorsque désassemblé du canal et fixé sur un marbre.

La hauteur est ensuite calculée selon $h = H - e$. Les mesures de h aux trois positions montrent que la section d'essai du canal est quelque peu déformée, où une différence $\sim 0.05\,\text{mm}$ est observée entre la hauteur mesurée h aux positions $z = 0$ et $z = W/3$ (cf. Figure E.1*a*). Cet effet semble être dû au processus de fabrication puisqu'une tendance similaire a été observée sur un échantillon de PMMA usiné et poli de la même manière que les plaques du canal. Des tests de métrologie effectués sur cet échantillon suggèrent que l'erreur de mesure associée à h serait de l'ordre de $\pm 0.03\,\text{mm}$ ($\sim \pm 1\,\%$ de h) considérant les défauts locaux de planéité et l'erreur de mesure du micromètre. En outre, la courbure des parois dans la direction axiale x apparait négligeable selon des mesures de hauteur déduites du profil de vitesse local (mesuré par LDA, cf. Figure E.1*b*).

Par ailleurs, un décalage est notable entre les valeurs obtenues avec le micromètre et par LDA ($\sim 0.14\,\text{mm}$, cf. Figure E.1) ; en fait, ces dernières ont tendance à surévaluer la hauteur réelle dû au manque de mesures fiable en proche paroi (cf. section 6.3), ce qui a pour effet d'élargir le profil de vitesse. Ainsi, considérant ces décalages de même que l'influence de h dans l'équation (6.2) sur la composante fluctuante s'_{ana}, une erreur de $\sim 5\,\%$ sur s a été estimée, soit un peu plus du double de l'erreur évaluée plus tôt concernant la planéité.

Enfin, l'effet de courbure des parois du canal induit une accélération de l'écoulement en s'éloignant de la position centrale $z = 0$ comme observé en Figure E.2, où le profil de vitesse $u(y)$ a été mesuré par LDA à différentes positions transversales. On observe que u_{axe} augmente

d'environ 3 % sur 50 mm.

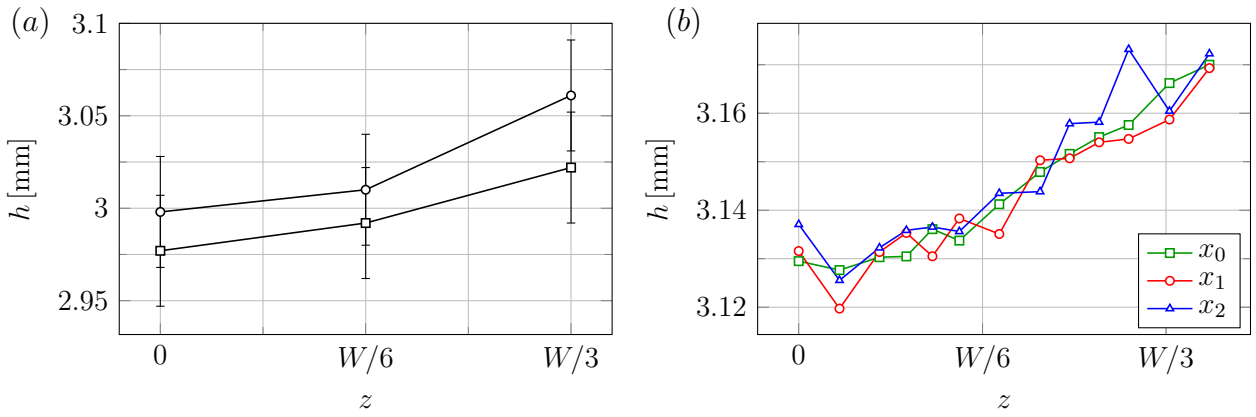


Figure E.1 (*a*) Mesures de hauteur h dans la section d'essai du canal ED, obtenues avec un micromètre de profondeur. Entre chacune des deux séries de mesure, le couvercle a été enlevé puis remis en place. Le centre du canal est situé en $z = 0$. (*b*) Hauteurs h déduites du profil de vitesse local à différentes positions transversales et pour trois positions axiales (x), chacune distancées de 1 cm

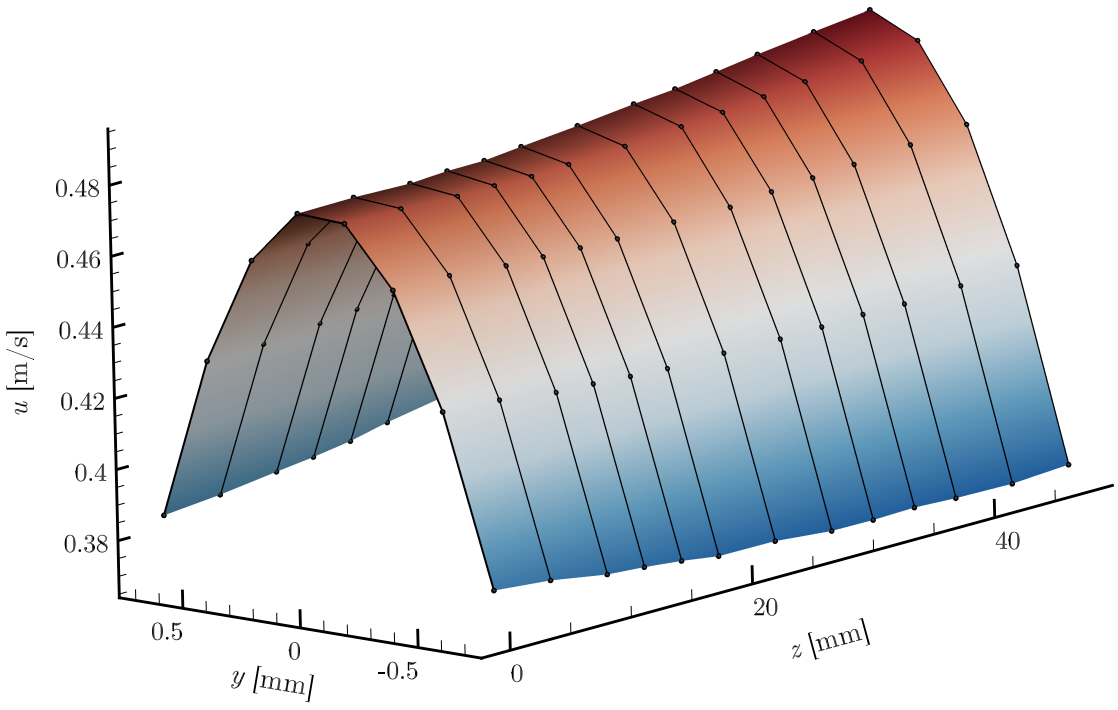


Figure E.2 Profils de vitesse à différentes positions transversales dans la section d'essai. La vitesse maximale u_{axe} augmente en se rapprochant de la paroi latérale, située en $z = 63.5$ mm

ANNEXE F EFFET D'UNE VARIATION DE LA CONCENTRATION DANS LA MASSE

La Figure F.1 présente les résultats d'essais de voltampérométrie à balayage linéaire dans trois solutions de concentration variable en ferricyanure, où $C_{0,1} = 0.025\,\mathrm{M}$, $C_{0,2} = 0.01\,\mathrm{M}$ et $C_{0,3} = 0.003\,\mathrm{M}$. On remarque en (a) que le courant limite diminue proportionnellement avec la concentration C_0. En (b), les courants ont été divisés par I_0, la valeur approximative du courant au plateau, pour comparaison. On observe que plus C_0 est faible, plus les plateaux de courant limite sont inclinés, conséquence de courants parasites plus importants comparativement au courant résultant de la réduction du ferricyanure. En réalisant la même expérience après avoir fait barboter de l'azote pendant quelques heures dans la solution $C_{0,3}$, le plateau est considérablement plus horizontal. En utilisant une telle concentration, il apparait encore plus important de réaliser un barbotage d'azote avant et pendant les mesures ; la dissolution d'oxygène dans la solution semble effectivement s'effectuer assez rapidement lorsque le fluide est en contact avec l'air ambiant. À une concentration C_0 plus élevée, les courants parasites sont toutefois de bien moindre importance. Les essais ont été effectués dans une enceinte où les effets convectifs étaient faibles, d'où les valeurs peu élevées du courant. On notera que la température du fluide peut varier entre les expériences.

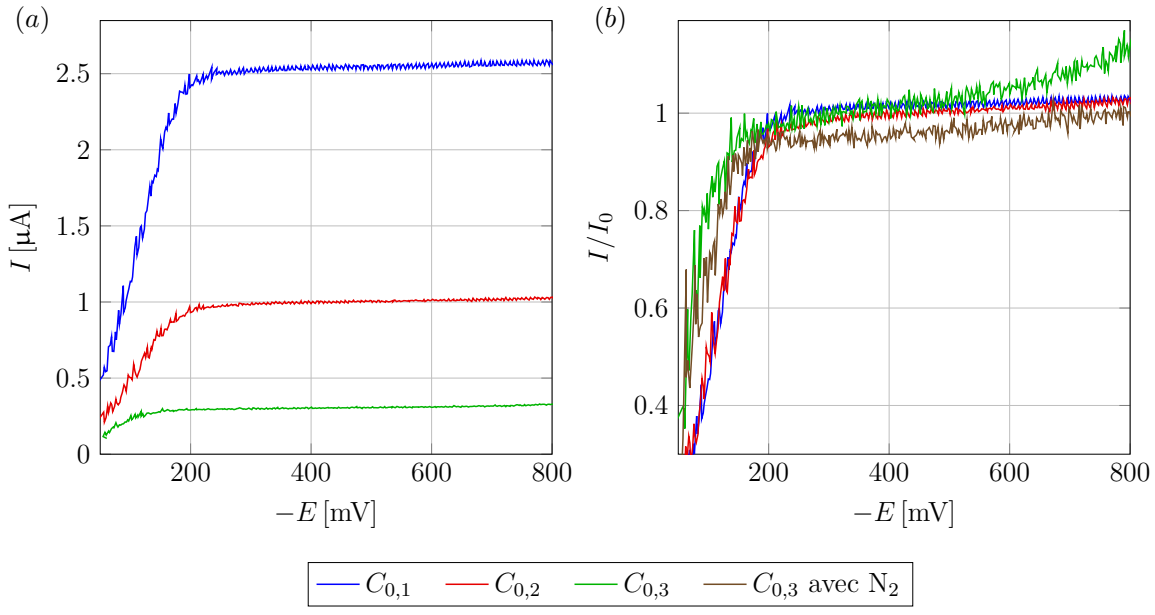


Figure F.1 Essais de voltampérométrie à balayage linéaire en utilisant des solutions de différente concentration en ferricyanure. $C_{0,1} = 0.025\,\mathrm{M}$; $C_{0,2} = 0.01\,\mathrm{M}$; $C_{0,3} = 0.003\,\mathrm{M}$

ANNEXE G VÉRIFICATION DES PARAMÈTRES D'ÉTALONNAGE DE SONDES ED

En section 6.4.5, deux formulations ont été proposées pour l'étalonnage en régime stationnaire, soit la formulation traditionnelle de Lévêque :

$$I = k_{\mathrm{q}} s^{1/3}, \tag{G.1}$$

ainsi que la formulation corrigée :

$$I = \left[I_0^4 + (As^n)^4 \right]^{1/4}. \tag{G.2}$$

Il a été vu que la seconde approche est plus juste que la première, particulièrement lorsque Pe est faible. Cette condition est ici ordinairement rencontrée pour les sondes de plus petite taille (C3 et C6, cf. Tableau 6.4) et l'ajout du second terme dans (G.2) est particulièrement adapté à ces capteurs. La Figure G.1 compare le gradient pariétal de vitesse obtenu avec la méthode de Sobolík pour les trois sondes ED du support 1 dans deux conditions d'écoulement instationnaire (canal ED). À titre de rappel, on a (cf. section 2.5.2)

$$s_{\mathrm{sob}} = s_{\mathrm{q}} + \frac{2}{3\pi k^2} \left(\frac{l_{\mathrm{eq}}^2}{D} \right)^{1/3} s_{\mathrm{q}}^{-2/3} \frac{\mathrm{d}s_{\mathrm{q}}}{\mathrm{d}t}, \tag{G.3}$$

avec $k = 0.80755$. Dans les sous-figures de gauche, s_{sob} est calculé en utilisant s_{q} obtenu avec (G.1), tandis que dans celles de droite avec la formulation corrigée (G.2). L'apport en précision de cette dernière est bien observé pour une fréquence de 1 Hz, où les trois sondes mesurent exactement la même contrainte, ici en accord parfait avec s_{ana}. Dans le second cas à plus haute fréquence et amplitude, (G.2) corrige considérablement le signal de C3, bien qu'un défaut d'amplitude est toujours observé sur les évolutions des deux autres sondes et de s_{ana}. (G.2) ne pourrait donc ajuster complètement le transfert de masse lorsque Pe est faible et en présence d'instationnarités plus intenses. La cause exacte de cet écart n'est toutefois pas connue et pourrait découler d'altérations de la surface active de la sonde (e.g. empoisonnement) considérant la très petite taille du capteur.

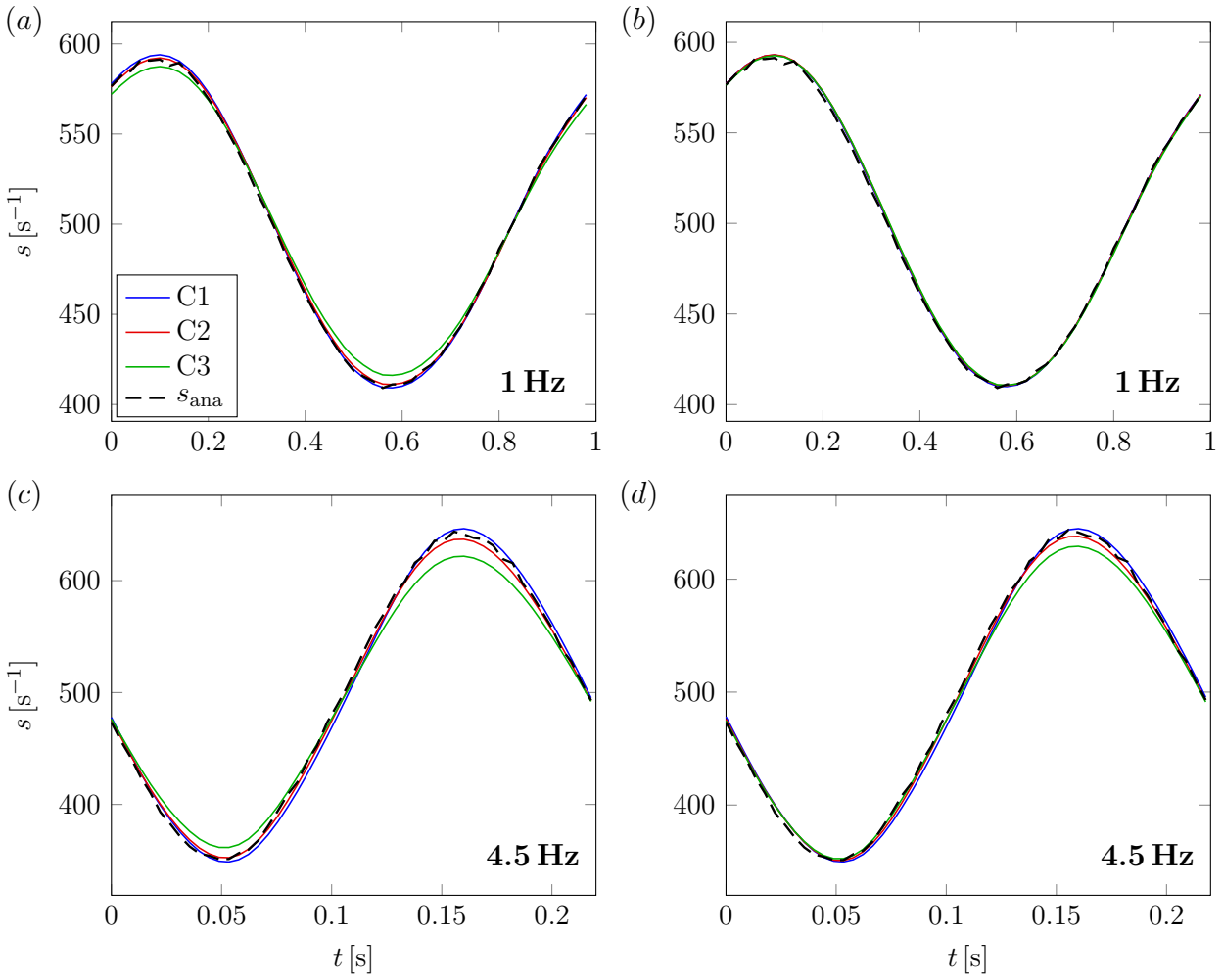


Figure G.1 Mesures du gradient pariétal de vitesse avec la méthode de Sobolík en utilisant deux types d'étalonnage : les formulations de Lévêque (gauche) et corrigée (droite), pour deux fréquences différentes

ANNEXE H CHRONOAMPÉROMÉTRIE ET EMPOISONNEMENT DE SONDES ED

Malgré sa rapidité d'exécution, la chronoampérométrie demande une approche particulièrement soignée lors de son exécution et est très sensible aux phénomènes d'empoisonnement. Un de ces effets est bien perçu en Figure H.1, où la perte d'aire active due à l'empoisonnement limite fortement la réaction.

Une anomalie de ce genre n'a cependant pas été couramment observée avec les sondes ED utilisées. Au contraire, le second type d'empoisonnement présenté en section 2.6.9 a été particulièrement embêtant. À titre de rappel, ce dernier implique l'adsorption d'espèces à la surface de la sonde, de sorte que la réaction d'électrolyse se produit en plus au niveau même du film d'oxyde ainsi formé. L'empoisonnement s'accentue de façon graduelle tel qu'observé en Figure H.2 : à force d'utiliser les sondes, on observe effectivement une augmentation du courant dans les instants suivant le saut de tension. Cet effet est toutefois contrer par un nettoyage (et/ou polissage) de l'électrode comme noté par l'expérience E_2 en Figure H.2. On remarque aussi que les conséquences de cette altération progressive sont particulièrement rapides pour l'électrode de petite taille C3.

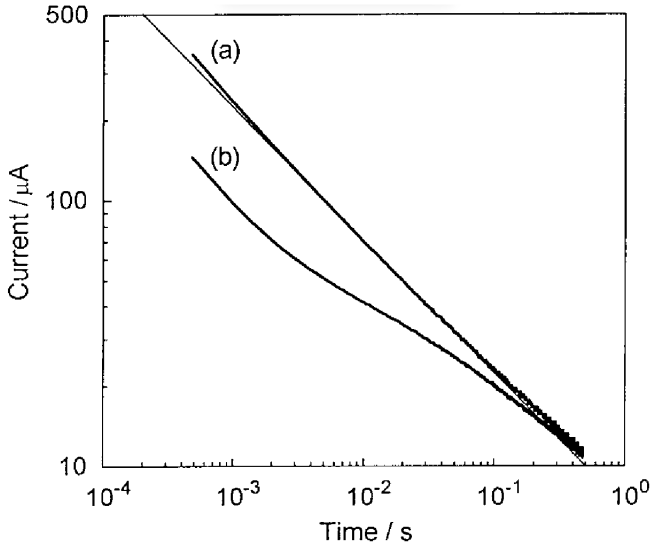


Figure H.1 Effet d'un empoisonnement de sonde ED sur l'évolution du courant au cours d'une expérience de chronoampérométrie (courbe b), comparativement à une évolution normale (courbe a). Image tirée de Sobolík *et al.* (1998), avec permission de *Springer*

Il avait été noté qu'un tel empoisonnement pourrait provenir d'espèces venant adsorber sur la sonde, en particulier l'oxygène dissout dans la solution, l'électrolyte support, la molécule HCN (générée lors de la dégradation photochimique du ferricyanure) et des impuretés dans la solution. Les deux dernières causes peuvent essentiellement être éliminées puisque une solution fraîchement préparée a été utilisée lors de ces expériences. L'oxygène dissout peut être éliminé avec un barbotage d'azote. L'influence de ce paramètre a donc été étudié avec des essais de chronoampérométrie dans deux solutions : une barbotée avec de l'azote et l'autre laissée à l'air libre. Les résultats présentés en Figure H.3 révèlent effectivement que l'oxygène dissout joue un rôle important sur l'empoisonnement des sondes ED. Des tests ont également été effectués en variant la concentration de l'électrolyte support K_2SO_4, d'une concentration nulle jusqu'à saturation ($\sim 0.5\,\mathrm{M}$ avec le mélange utilisé). Aucun changement notable quant à la vitesse d'empoisonnement des sondes n'a été observé.

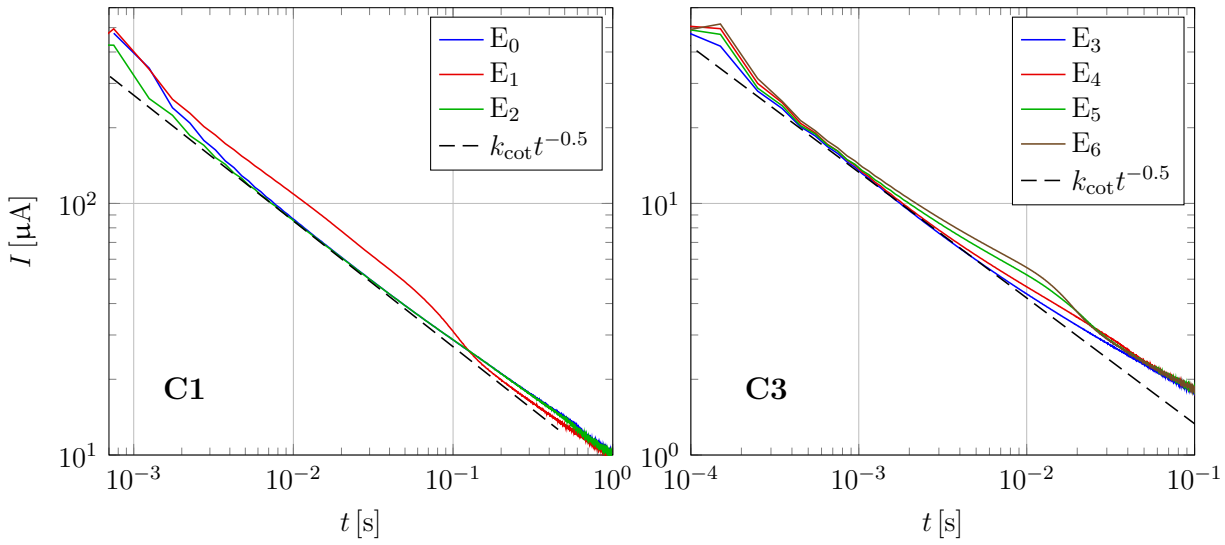


Figure H.2 Effet d'empoisonnement des sondes C1 ($d \simeq 0.5\,\mathrm{mm}$, à gauche) et C3 ($d \simeq 0.1\,\mathrm{mm}$, à droite) durant des expériences de chronoampérométrie. Gauche : l'expérience E_0 est effectuée après un nettoyage. La sonde est ensuite vieillie dans la solution pendant $\sim 10\,\mathrm{min}$, suite à quoi l'essai E_1 est effectué ; E_2 est finalement fait après un second nettoyage. Droite : l'expérience E_3 est effectuée après un nettoyage de la sonde C3, tandis que E_4, E_5 et E_6 sont les première, deuxième et troisième expériences suivant E_3, respectivement (aucun vieillissement préalable). Tous les essais ont été effectués dans une solution au repos, préalablement mélangée avant chaque expérience. Le trait pointillé est l'asymptote de Cottrell (équation (2.58), $k_{cot} = 8.52$ et $k_{cot} = 0.421$ à gauche et à droite, respectivement)

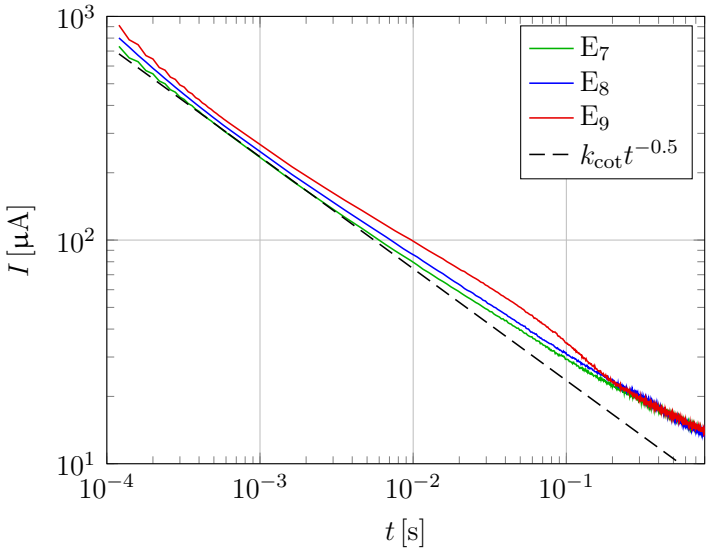


Figure H.3 Effet du barbotage sur C1. L'expérience E$_7$ est effectuée après avoir poli et nettoyé l'électrode. E$_8$ et E$_9$ sont réalisées après un vieillissement d'environ 4 min dans une solution continuellement barbotée avec de l'azote et laissée à l'aire libre, respectivement. Bien que des effets d'adsorption décalent la courbe E$_8$, le décalage est bien plus apparent sur E$_9$