

La lévitation aérodynamique dédiée à l'estimation de la viscosité de métaux liquides

Dylan Le Maux, Mika Ranaivo, Edouard Geslain, Mickaël Courtois, Thomas Pierre*, Muriel Carin, Philippe Le Masson

Univ. Bretagne Sud, UMR CNRS 6027, IRDL, F-56100 Lorient, France.

* Auteur correspondant : thomas.pierre@univ-ubs.fr

Résumé – Ce travail poursuit une thématique phare du laboratoire : la caractérisation des propriétés physiques des métaux liquides à haute température ($> 1\,500\text{ °C}$). L'objectif est ici d'évaluer si le dispositif de lévitation aérodynamique d'échantillons métalliques chauffés par laser, développé au laboratoire pour la mesure de masse volumique et tension superficielle, est adapté à la mesure de viscosité. Expérimentalement, des ondes acoustiques, propagées par le gaz de lévitation, provoquent la déformation de l'échantillon. Une caméra filme cette déformation durant sa relaxation (oscillations amorties). Un post-traitement trace l'évolution des diamètres principaux de l'échantillon (observable) au cours du temps (variable). Le modèle théorique de relaxation étant fonction de plusieurs paramètres, une étude de sensibilité précède l'estimation de la viscosité par techniques inverses. Les résultats obtenus à partir d'expériences de lévitation mettent en évidence des écarts avec ceux de la littérature. En conséquence, l'impact de la gravité et du gaz sustentateur sont discutés au moyen d'un modèle multiphysique représentant l'expérience.

Nomenclature

Lettres latines

A	amplitude, m
f	fréquence, Hz
N	nombre de pas de temps
r	rayon, m
t	temps, s
T	température, K
X	sensibilité réduite, m

Lettres grecques

β	paramètre
ρ	masse volumique, $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$

ρ_i	coefficient de corrélation
τ_0	temps de relaxation, s
φ	déphasage, rad
σ_{β_i}	écart-type
$\sigma_{\beta_i\beta_j}$	covariance

Indices et exposants

0	initial
i	indice de paramètre
j	indice de paramètre
k	indice du temps
N	normé

1. Introduction

Le développement de simulations numériques multiphysiques, dans notre cas de procédés métallurgiques, nécessite la connaissance des propriétés physiques des métaux à l'état liquide. Et cet état de la matière ne facilite pas leurs mesures. La littérature n'est cependant pas totalement vierge : les techniques de lévitation sont celles qui offrent le plus de succès mais requièrent des développements technologiques importants [1]. Nous en inspirant, un dispositif de lévitation aérodynamique d'échantillons métalliques chauffés par laser a été développé au laboratoire. Il a donné entière satisfaction pour la mesure à l'état liquide de masse volumique [2] et de tension de surface [3-4] ; pour la diffusivité de métaux à l'état solide, la faisabilité de l'estimation par méthodes bayésiennes a seulement été abordée [5].

En complément, la littérature propose également des résultats de viscosité [6-11] obtenus avec des techniques extrêmement variées et souvent complexes.

Dans cette communication, nous étendons notre dispositif expérimental à la mesure de viscosité et testons sa validité en nous appuyant sur un modèle direct classique d'oscillateur amorti fréquemment rencontré dans la littérature sur ce type d'expérience [6-9]. Expérimentalement, des ondes acoustiques, propagées par le gaz de lévitation, provoquent la déformation de l'échantillon. Une caméra filme cette déformation durant sa relaxation (oscillations amorties). Un post-traitement trace l'évolution des diamètres principaux de l'échantillon (observable) au cours du temps (variable). Le modèle théorique de relaxation étant fonction de plusieurs paramètres, une étude de sensibilité précède l'estimation de la viscosité par techniques inverses.

Le dispositif expérimental est d'abord présenté. La partie suivante présente le modèle théorique, l'étude de sensibilité et la technique inverse employée pour l'estimation des paramètres. Enfin, la dernière partie présente les estimations de la viscosité du fer pur à partir de données expérimentales, puis à partir d'un modèle numérique simulant strictement l'expérience mais avec la possibilité de retirer les effets gravitationnels et de modifier la nature du gaz environnant.

2. Présentation de l'expérience

Le dispositif expérimental est présenté sur la Figure 1. Un gaz de composition Ar + 2,5 % H₂ est soufflé à travers une buse convergente-divergente de 60° afin de mettre en lévitation une bille d'environ 30 mg, soit à peu près 2 mm de diamètre pour du fer (A). Le débit de gaz est contrôlé par un débitmètre Brooks SLA5850S (B). La lévitation a lieu dans une chambre étanche équipée de fenêtres borosilicate (C). La fenêtre supérieure est dédiée au chauffage laser (IPG Photonics YLR 300/3000 QCW at 1 070 nm (D)). Le laser possède une puissance maximale de 280 W en mode continu, et possède une optique de focalisation de 500 mm légèrement défocalisée pour avoir une zone visée de 2 mm sur l'échantillon métallique.

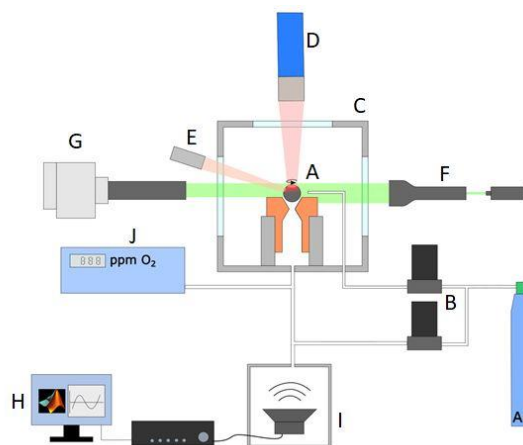


Figure 1 : schéma du dispositif expérimental de lévitation dans la configuration permettant la mesure de la viscosité de métaux liquides.

Les deux fenêtres latérales en vis-à-vis permettent à une caméra haute vitesse (F) Phantom VEO-E 310L d'observer l'échantillon rétro-éclairé par un laser (300 mW, laser diode 532 nm) (G) et la mesure pyrométrique (E). Cette mesure est assurée par un pyromètre bispectral (Optris CT Ratio 2MH1 : 1,45 μ m et 1,75 μ m). Le rapport d'émissivité nécessaire au bon fonctionnement du pyromètre a été réglé par rapport au plateau de fusion du fer pur dont la

température est connue. Il est évident qu'une incertitude subsiste pour toute variation importante de la température même si le rapport d'émissivité est supposé peu variant.

L'échantillon, assimilable à une bille métallique, est chauffé par le laser jusqu'à ce qu'il devienne liquide. Cette goutte est ensuite sollicitée acoustiquement pour la faire osciller : un signal sinusoïdal est généré, amplifié (H) et transformé en ondes de pression grâce à un haut-parleur (I). Un second débitmètre (B) contrôle un jet latéral de gaz afin de forcer la rotation de l'échantillon autour de son axe vertical, et ainsi faciliter l'analyse fréquentielle. Finalement, un analyseur d'oxygène mesure les résidus d'oxygène dans la chambre à vide (J).

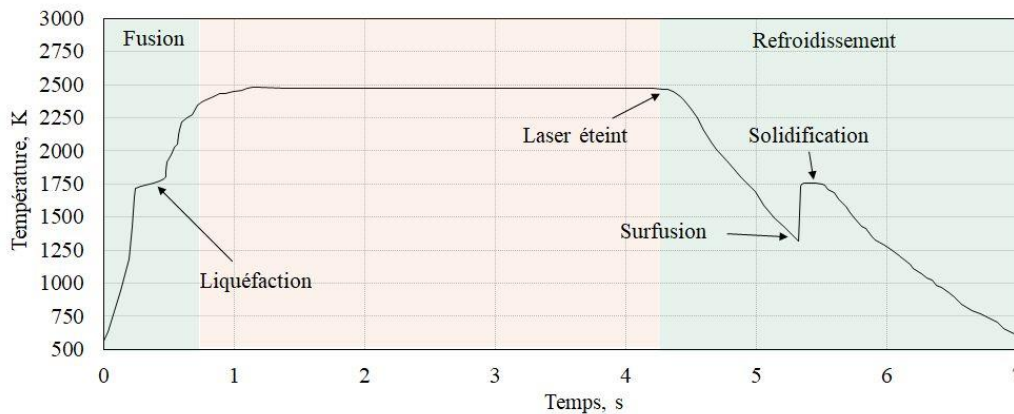


Figure 2 : évolution de la température d'un échantillon en fonction du temps.

La Figure 2 présente un résultat expérimental type avec l'évolution de la température de l'échantillon mesurée par le pyromètre au cours du temps. Durant la phase à température stabilisée, la goutte liquide est stimulée acoustiquement à différentes fréquences autour de celle de résonance, et avec entre chaque fréquence un temps de relaxation. La caméra haute vitesse filme les oscillations de la goutte à la vitesse de 1 000 images par seconde. Un programme de traitement d'images développé à l'aide de Matlab® détermine le contour de la goutte, assimilable à une ellipse dont les paramètres sont ajustés par une méthode des moindres carrés. À chaque pas de temps, les variations maximales de rayons sont enregistrées, généralement perpendiculairement l'un de l'autre lors des oscillations de mode 2 [1]. Un exemple type d'évolution d'un rayon est présenté sur la Figure 5 lors de la relaxation depuis la fréquence de résonance.

3. Estimation de la viscosité

3.1. Modèle direct et étude de sensibilité

Durant la phase de relaxation de la goutte, celle-ci se comporte comme un oscillateur amorti, dont la variation du rayon au cours du temps est supposée [6] :

$$r(t) = r_0 + A \sin(2\pi f t + \varphi) e^{-\frac{t}{\tau_0}} \quad (1)$$

où r_0 est le rayon au repos, A est l'amplitude maximale des oscillations, f la fréquence, φ le déphasage et τ_0 le temps caractéristique de relaxation. Ce dernier est relié à la viscosité dynamique η par la formule de Lamb (2) valable pour une goutte dans le vide, où ρ est la masse volumique du matériau testé [12] :

$$\eta = \frac{\rho r_0^2}{5\tau_0} \quad (2)$$

L'équation (1) est considérée comme le modèle complet de l'évolution du rayon de la sphère liquide en fonction du temps. Nous utilisons également un modèle plus simple en ne considérant que l'enveloppe de la fonction (1), donc sans le terme sinusoïdal. Considérant l'équation (1) complète, l'évolution du rayon au cours du temps est fonction de plusieurs paramètres $\boldsymbol{\beta} = [r_0 \ A \ f \ \varphi \ \tau_0]^T$. Une étude de sensibilité par le calcul des sensibilités réduites (3) est dès lors présentée pour définir la corrélation entre ces paramètres en fonction du temps t_k .

$$\chi_j(t_k, \boldsymbol{\beta}) = \beta_j \frac{\partial r(t_k, \boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_j} \quad (3)$$

Les données d'entrées du modèle sont les suivantes : $r_0 = 1,0$ mm, $A = 0,015$ mm, $f = 200$ Hz, $\varphi = 0$ rad et $\eta = 5$ mPa·s. Dans un souci de lisibilité, la Figure 3 présente l'évolution des sensibilités réduites normées (4) durant une période. L'analyse des sensibilités permet de souligner les deux principaux points suivants [13] :

- Les sensibilités réduites à τ_0 et à A semblent proportionnelles. Cependant, le calcul montre que le rapport de ces sensibilités réduites est égal à t/τ_0 et est donc proportionnel au temps. Il est aisé à $t = 0$ d'avoir une première idée de la valeur de A .
- Pris deux par deux, il existe une décorrélation entre le paramètre τ_0 et les trois autres, à savoir r_0 , f et φ .

$$\chi_j^N(t_k, \boldsymbol{\beta}) = \frac{\chi_j(t_k, \boldsymbol{\beta})}{\max[\chi_j(t_k, \boldsymbol{\beta})]} \quad (4)$$

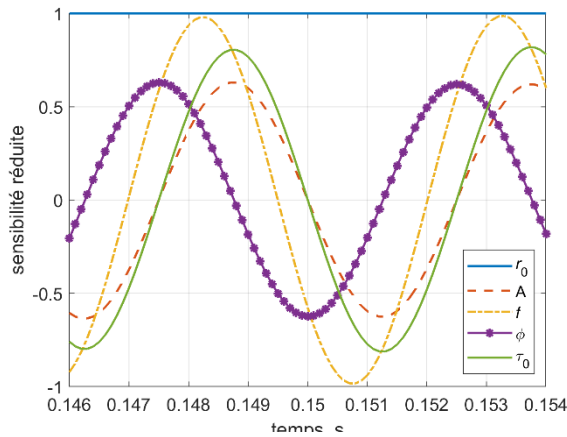


Figure 3 : sensibilités réduites $\chi_j(t_i, \boldsymbol{\beta})$ au cours du temps.

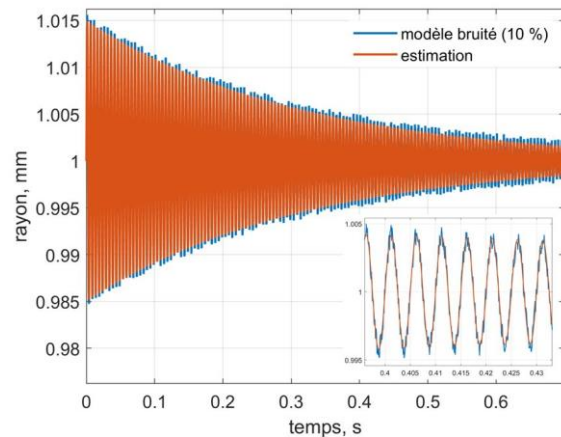


Figure 4 : simulation du rayon au cours du temps selon les équations (1) et (2).

3.2. Modèle inverse

Les techniques inverses utilisées pour estimer les paramètres sont basées sur la méthode des moindres carrés couplés à un algorithme de type Levenberg-Marquardt [14-15]. Il s'agit de minimiser l'écart quadratique entre les rayons expérimentaux et théoriques de la goutte liquide :

$$J = \sum_{k=1}^N [r^{th}(t_k, \boldsymbol{\beta}) - r^{exp}(t_k)]^2 \quad (5)$$

où N est le nombre de points. La Figure 4 présente un exemple d'estimation à partir de données théoriques additionnées d'un bruit gaussien de 10 % et de moyenne nulle sur l'amplitude des oscillations (bruit d'amplitude proche de l'expérience). Les valeurs estimées sont très proches de celles du modèle direct, validant la méthodologie d'estimation. Les coefficients de la matrice de corrélation ρ_{ij} sont également calculés à l'aide de l'équation (6) où $\sigma_{\beta_i\beta_j}$, σ_{β_i} et σ_{β_j} sont les éléments de la matrice de covariance sur l'erreur de mesure [13]. Le Tableau 1 montre que les valeurs sont bien estimées. De plus, les coefficients de corrélation confirment l'analyse, tout particulièrement entre l'amplitude initiale A et le temps de relaxation τ_0 .

$$\rho_{ij} = \frac{\sigma_{\beta_i\beta_j}}{\sigma_{\beta_i}\sigma_{\beta_j}} \quad (6)$$

Tableau 1 : bilan des données physiques d'entrée initiales et estimées à partir de mesures bruitées.

	r_0 , mm	A , mm	f , Hz	φ , rad	τ_0 , s	η , mPa·s
Valeurs initiales	2,00	1,00	0	π	0,112	50
Valeurs estimées	$\approx 1,00$	$\approx 0,015$	≈ 200	$\approx -0,005$	$\approx 0,277$	$\approx 4,99$
Coefficients corrélation	$\rho_{r_0\tau_0} = 0,014$		$\rho_{A\tau_0} = -0,712$		$\rho_{f\tau_0} = -0,011$	
					$\rho_{\varphi\tau_0} = 0,016$	

4. Résultats et discussion

4.1. Estimation à partir de résultats expérimentaux

Des essais ont été effectués sur des échantillons de fer (pureté 99,99 %) et les deux possibilités d'utiliser le modèle direct ont été considérées en vue de l'estimation (voir § 3.1). La masse volumique du fer est donnée selon l'équation (7) [16], où pour $T = 293$ K le résultat correspond à celui donné par [17].

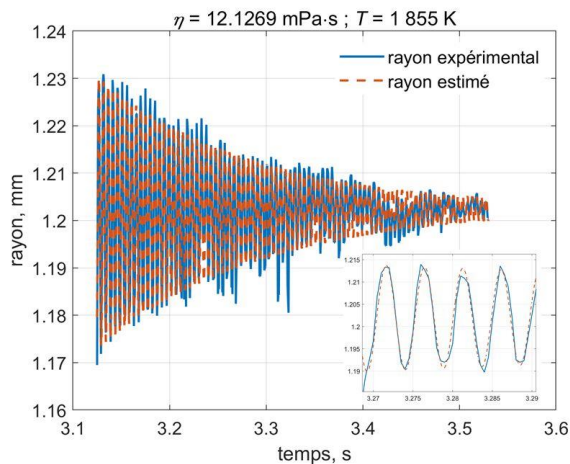


Figure 5 : rayons expérimentaux et estimés à partir du modèle complet (1) pour une sphère de fer liquide (1 855 K).

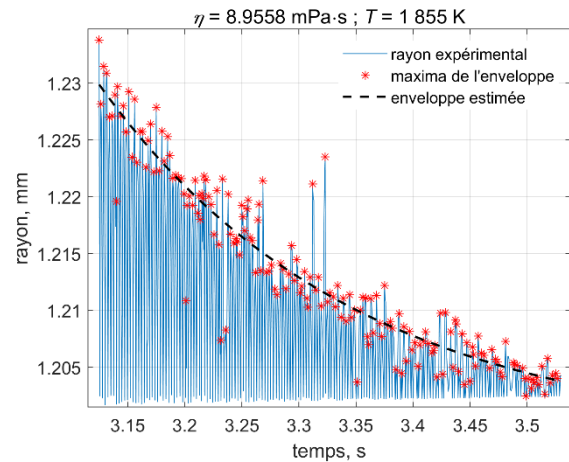


Figure 6 : rayons expérimentaux et estimés à partir de l'enveloppe de la fonction (1) pour une sphère de fer liquide (1 855 K).

La Figure 5 présente un exemple d'estimation avec le modèle complet et la Figure 6 avec l'enveloppe de la fonction (1). Le Tableau 2 regroupe l'ensemble des estimations pour cet essai.

$$\rho_{Fe}(T) = 8\,013 - 0,56 T \quad (7)$$

Tableau 2 : bilan des estimations avec les deux modèles théoriques et comparaison avec la littérature.

	r_0 , mm	A , mm	f , Hz	φ , rad	τ_0 , s	η , mPa·s
Modèle complet	1,196	0,023	207	0,02	0,164	12,13
Modèle enveloppe	1,198	0,031	-	-	0,441	8,96
					Modèle de Mills [16]	5,17

Il apparaît que les résultats d'estimation de la viscosité sont différents avec les deux modèles, mais aussi par rapport à la littérature où une formulation de la viscosité pour le fer en fonction de la température est proposée par Mills [16] basée sur des mesures expérimentales :

$$\eta(T) = 10^{-0,622 + \frac{2\,478}{T}} \quad (8)$$

La recherche des *extrema* pour la méthode avec l'enveloppe est tributaire du bruit de mesure comme on peut le voir sur la Figure 6, ce qui pourrait avoir une incidence non-négligeable sur l'estimation. Cependant, quelle que soit la méthode employée, ces résultats sont représentatifs de l'ensemble des tests exploitables et présentés sur le fer (\blacktriangle sur la Figure 7). La tendance globale est d'être systématiquement au-dessus de la littérature d'un facteur 2 voire 3. Dès lors, nous avons développé un modèle numérique multiphysique de l'expérience pour mieux comprendre l'influence de la gravité et du gaz de lévitation, qui sont deux paramètres non pris en compte dans la solution analytique (1).

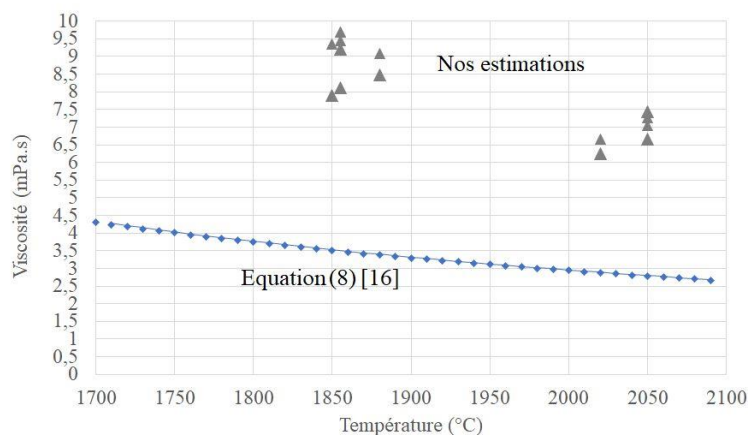


Figure 7 : comparaison entre les viscosités estimées et celles de la littérature [16].

4.2. Estimation à partir de simulation numérique

Trois simulations numériques résolvant avec Comsol Multiphysics® les équations hydrodynamiques dans le métal fondu et le gaz sustentateur [3] calculent l'évolution du rayon

(grâce à une méthode à maillage mobile) d'une goutte de fer liquide de même caractéristique que précédemment ($\eta = 5 \text{ mPa}\cdot\text{s}$, $\rho = 7800 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$) selon trois configurations expérimentales différentes : i) lévitation avec gaz et gravité ; ii) lévitation en impesanteur avec gaz ; iii) lévitation en impesanteur sans gaz. Le premier cas est le même qu'expérimentalement, les deux suivants pourraient correspondre à une expérience dans l'ISS [11] avec et sans gaz environnant. Les données d'entrée sont les mêmes qu'au § 3.1. Les Figures 8 à 10 ainsi que le Tableau 3 présentent et synthétisent les résultats d'estimation pour les trois tests.

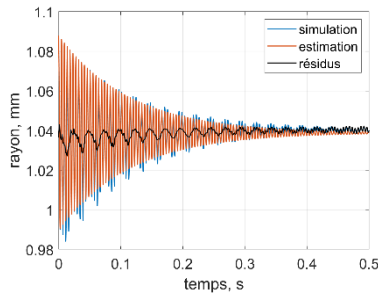


Figure 8 : *simulation et estimation pour l'expérience sous gravité et avec gaz.*

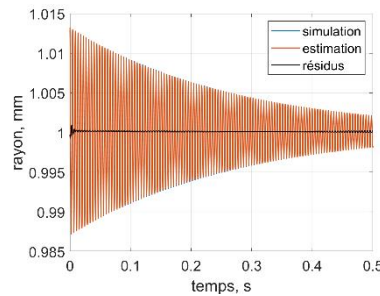


Figure 9 : *simulation et estimation pour l'expérience impesanteur avec gaz.*

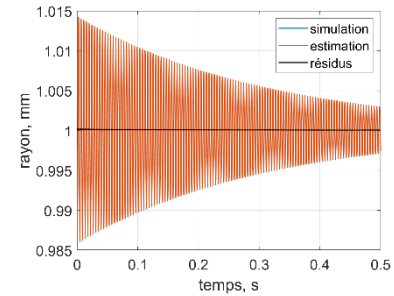


Figure 10 : *simulation et estimation pour l'expérience impesanteur sans gaz.*

Tableau 3 : *synthèse des estimations pour les trois simulations numériques.*

	r_0 , mm	A , mm	f , Hz	φ , rad	τ_0 , s	η , mPa·s
Données d'entrée	1,000	-	220	-	-	5,00
Gravité avec gaz	1,039	0,049	217	1,66	0,114	14,77
Impesanteur avec gaz	1,000	0,013	225	1,54	0,267	5,84
Impesanteur sans gaz	1,000	0,026	228	1,49	0,315	4,95

Les estimations, avec les simulations, sont fidèles à l'expérience : gravité avec gaz, et donnent approximativement les mêmes résultats : une viscosité surévaluée par rapport à la littérature et surtout très différente de celle d'entrée (5 mPa·s). La suppression de la gravité apporte cette fois-ci des résultats satisfaisants par comparaison avec les données d'entrée. Il est à noter que l'estimation sans le gaz environnant permet d'obtenir une viscosité relativement proche de celle initiale.

Au vu de cette partie numérique, il est clair que le modèle théorique utilisé dans cette étude et pour notre expérience de lévitation aérodynamique ne semble pas adapté à l'estimation directe de la viscosité du fer, contrairement à la tension de surface et à la masse volumique. Il sera donc nécessaire de s'orienter vers des modèles plus complets prenant en compte les effets de la gravité ou d'une force externe (ici le gaz sustentateur) [18].

Conclusion

Cette communication est dédiée à l'estimation de la viscosité du fer liquide sous forme de sphère à l'aide d'un dispositif de lévitation aérodynamique. Le matériau testé ici est le fer. À partir de mesures d'évolution du rayon des gouttes liquides au cours du temps, la viscosité est estimée par techniques inverses par minimisation de l'erreur quadratique entre les rayons expérimentaux et ceux proposés par un modèle analytique. Les résultats ont montré une

surestimation de la valeur du paramètre à partir du modèle analytique de l'oscillateur couramment rencontré dans la littérature, laquelle, notons-le, ne précise pas systématiquement les conditions expérimentales telles que la présence d'un gaz environnant, sa nature et les incertitudes associées. Dès lors, une simulation numérique de l'expérience a été développée avec possibilité d'influer sur la gravité, la nature et la présence du gaz. Les estimations comparatives concordent avec celles effectuées à partir des résultats expérimentaux. Cependant, la suppression de la gravité dans le modèle, puis du gaz environnant tend à obtenir des valeurs de viscosité proches de celles de la littérature accréditant l'hypothèse que le modèle d'oscillateur amorti simple est perturbé par le flux gazeux de lévitation et ne suffit pas à représenter convenablement l'expérience de lévitation.

Une perspective à explorer consisterait à utiliser le modèle numérique pour déterminer une nouvelle loi valide pour notre expérience et permettant ainsi la détermination de la viscosité malgré la présence de gravité.

Bibliographie

- [1] Le Maux Dylan, *Estimation de propriétés thermophysiques : application aux métaux à l'état liquide*, thèse de doctorat, Université Bretagne Sud, 2020.
- [2] Le Maux, Dylan, et al. « Density measurement of liquid 22MnB5 by aerodynamic levitation ». *Review of Scientific Instruments*, vol. 90, n° 7, juillet 2019, p. 074904.
- [3] Le Maux, Dylan, et al. « Surface Tension of Liquid Fe, Nb and 304L SS and Effect of Drop Mass in Aerodynamic Levitation ». *Journal of Materials Science*, vol. 57, n° 25, juillet 2022, p. 12094-106.
- [4] Klapczynski, Vincent, et al. « Surface Tension Measurements of Liquid Pure Iron and 304L Stainless Steel under Different Gas Mixtures ». *Journal of Molecular Liquids*, vol. 350, mars 2022, p. 118558.
- [5] Lamien, Bernard, et al. « A Bayesian Approach for the Estimation of the Thermal Diffusivity of Aerodynamically Levitated Solid Metals at High Temperatures ». *International Journal of Heat and Mass Transfer*, vol. 141, octobre 2019, p. 265-81.
- [6] Battezzati, L., et A. L. Greer. « The Viscosity of Liquid Metals and Alloys ». *Acta Metallurgica*, vol. 37, n° 7, juillet 1989, p. 1791-802.
- [7] Cheremisina, Elizaveta, et al. « Density, Viscosity and Surface Tension of High-Silicate CaO–SiO₂ and CaO–SiO₂–Fe₂O₃ Slags Derived by Aerodynamic Levitation. The Behavior of Fe³⁺ in High-Silicate Melts ». *Ceramics International*, vol. 49, n° 3, février 2023, p. 4460-72.
- [8] Kondo, Toshiki, et al. « Density and Viscosity of Liquid ZrO₂ Measured by Aerodynamic Levitation Technique ». *Heliyon*, vol. 5, n° 7, juillet 2019, p. e02049.
- [9] Langstaff, D., et al. « Aerodynamic levitator furnace for measuring thermophysical properties of refractory liquids ». *Review of Scientific Instruments*, vol. 84, n° 12, décembre 2013, p. 124901.
- [10] Bakhtiyarov, S. I., et R. A. Overfelt. « Measurement of Liquid Metal Viscosity by Rotational Technique ». *Acta Materialia*, vol. 47, n° 17, novembre 1999, p. 4311-19.
- [11] Hans-Jörg Fecht, Markus Mohr, *Metallurgy in Space – Recent results from ISS*, Springer, 2022.
- [12] Sir H. Lamb, *Hydrodynamics*, Dover Publications Inc, London, 6th Edition, 2009.
- [13] F. Rigollet, D. Maillet, *Lecture 3. Basics for linear estimation, the white box case*, Metti 7 Advanced School, Thermal Measurements and Inverse Techniques, Volume 1: Lectures, Porquerolles, France, Sept. 29th – Oct. 4th, 2019.
- [14] Levenberg, K., "A method for the solution of certain nonlinear problems in least squares", *Quart. Appl. Math.* 2, 164-168, 1944.
- [15] Marquardt, D. W., "An algorithm for least squares estimation of non-linear parameters", *SIAM J. Appl. Math.* 11, 431-441, 1963.
- [16] K. Mills, *Recommended values of thermophysical properties for selected commercial alloys*, Woodhead Publishing Limited, England (2002).
- [17] F. Kreith, W. Z. Black, *Basic heat transfer*, Harper & Row, Publishers, New-York, 1980.
- [18] Prosperetti, Andrea. "Free oscillations of drops and bubbles: the initial-value problem." *Journal of Fluid Mechanics* 100.2 (1980): 333-347.