

Université de Lyon
ED de Chimie de Lyon
Proposition de sujet de thèse pour la campagne des contrats doctoraux 2019

Formation de cristaux de glace sous cavitation ultrasonore

Laboratoire d'accueil : LAGEPP UMR CNRS/UCBL 5007

Encadrants : Stéphane LABOURET, Roman PECZALSKI, Claudia COGNE

Contact : stephane.labouret@univ-lyon1.fr

Contexte

Le contrôle de la taille des cristaux de glace est très important pour les procédés industriels tels que la lyophilisation des produits pharmaceutiques en flacons, la conservation des tissus vivants, la congélation des produits alimentaires, la fabrication du coulis de glace. Une taille adéquate des cristaux permet de préserver correctement la texture du produit et/ou lui donner les propriétés finales souhaitées.

La formation spontanée d'un cristal est un processus probabiliste qui est favorisé par le sous-refroidissement du liquide (abaissement de la température du produit en dessous de la température de fusion de la glace). Au cours du refroidissement du liquide, l'apparition du premier cristal de glace n'est pas prédictible. Une fois formé, ce cristal croît et provoque la formation de nouveaux cristaux, dans tout le liquide sous-refroidi. Ainsi, il n'est pas possible de contrôler la taille des cristaux en fixant le niveau de sous-refroidissement, car la nucléation peut survenir avant d'atteindre ce niveau. Les cristaux sont d'autant plus gros que la nucléation (apparition des premiers germes des cristaux) survient à faible sous-refroidissement.

Pour améliorer le contrôle de la taille des cristaux, et créer des cristaux plus petits ou plus grands que ce que la nature nous offre pour un sous-refroidissement donné, l'idée est de produire, par un phénomène physique bien maîtrisé et instantané, le plus grand nombre de germes de glace possible à la température stabilisée désirée. Pour cela l'utilisation d'ultrasons est intéressante car l'exposition du liquide à des ultrasons de puissance basse fréquence est connue pour provoquer la congélation de solution aqueuses sous refroidies.

La production de cristaux de glace ordinaire (type Ih) serait indirectement due à la présence de bulles de cavitation inertielles. En fin d'implosion, ces bulles créent dans leur voisinage des pressions et des températures qui provoquent des sous-refroidissements localisés si importants que la fraction de nanoseconde durant lesquels ces conditions se maintiennent suffit à rendre probable la formation de cristaux de glace de type VI ou VII. D'après une étude publiée, la présence de la glace VII semble avoir été détectée autour d'une bulle de cavitation inertielle produite par une impulsion laser focalisée dans l'eau. Cependant, aucun mécanisme n'a décrit à ce jour comment ces cristaux de glace 'très haute pression' de type VI ou VII entraineraient la formation de la glace ordinaire Ih, la seule qui est présente dans le produit congelé final.

L'utilisation de la cavitation à basse fréquence ultrasonore (typiquement entre 20 kHz et 60 kHz) initie la congélation mais introduit une incertitude sur la reproductibilité et l'homogénéité de la taille des cristaux. A ces fréquences et appliqués à des flacons de lyophilisation, les ultrasons doivent être considérés plutôt comme des vibrations mécaniques en cela que la distribution de la pression acoustique dans le contenu du flacon est la conséquence de l'état de vibration de la source associé au flacon et à son contenu. Les pressions acoustiques dans le liquide dépendent de petites variations sur les contraintes appliquées au flacon, de la pression appliquée à la sonde sur le flacon, à la hauteur de remplissage, à d'éventuels défauts dans la paroi du flacon. De plus, l'apparition de la cavitation dépend

de la présence de germes de cavitation préexistants sous forme de micro ou sub-micro bulles dans le produit liquide ou sur les parois du flacon. Ces germes ne sont pas toujours en grand nombre, ils peuvent être multipliés durant les premiers instants de la cavitation, mais leur formation rentre en concurrence avec l'apparition des cristaux de glace. Plus globalement, la cavitation et la nucléation de la glace qui y est liée se développent en général sur une petite portion seulement du contenu du flacon, le reste du liquide étant essentiellement congelé par la propagation de la glace à partir de la zone de cavitation préférentielle.

L'utilisation de fréquences plus élevées, permet de s'affranchir du couplage mécanique entre l'onde ultrasonore appliquée et l'enveloppe du flacon et obtenir la situation où l'onde est transmise à travers la paroi indépendamment de la vibration globale du flacon. La répartition de l'onde sera plus homogène dans le flacon, engendrant une congélation plus uniforme sur l'ensemble de l'échantillon. En revanche, les pressions acoustiques pour déclencher la cavitation doivent être plus élevées que dans le cas des basses fréquences. Expérimentalement, il a été observé que l'augmentation de fréquence rend également plus difficile la création de la glace. La congélation n'a jamais été obtenue pour une fréquence de 1 MHz malgré la formation d'un champ de cavitation (d'un nuage de bulles en cavitation). Elle a pu l'être vers 250 kHz.

Travail à réaliser

L'étude proposée combine un travail de modélisation et simulation et des travaux expérimentaux.

La mise en évidence de l'influence de la fréquence acoustique sur la création de la glace offre une opportunité pour tester (partiellement) l'hypothèse de la formation de la glace 'très haute pression' par cavitation inertielle. Le travail réalisé durant le projet ANR 'SONONUCLICE' a produit un modèle numérique capable de décrire l'évolution de la bulle de cavitation inertielle et des échanges de chaleur entre le gaz dans de la bulle et son voisinage liquide afin de rendre compte des pressions et températures autour de la bulle. Il permet ensuite de calculer la probabilité de formation des cristaux de glace 'très haute pression'.

Le travail de modélisation et simulation consistera à étendre le fonctionnement de ce modèle à des fréquences élevées, le modèle numérique actuel ne parvenant pas à donner des résultats à des fréquences supérieures à quelques dizaines de kHz. Une modélisation par éléments finis en utilisant le logiciel commercial COMSOL sera d'abord tentée. D'autres solutions numériques devront être recherchées en cas d'échec de cette première solution. Le développement du modèle sera associé à la détermination expérimentale des limites en fréquence et pression acoustique de la formation de la glace sous cavitation, en précisant si possible l'intervalle des tailles de bulles concernées. La confrontation entre expérience et modèle sera une occasion de tester la théorie basée sur la formation de glaces 'très haute pression'.

Un second volet purement expérimental portera sur la possibilité de réduire les tailles de cristaux de glace finaux en procédant à une application des ultrasons en deux étapes : une première étape consiste à créer un champ de bulles à haute fréquences, bulles qui sont reprises par une onde basse fréquence qui les entrainera dans une cavitation inertielle suffisamment forte pour produire de la glace. Le démonstration et validation du principe a été déjà réalisée récemment au LAGEPP, mais il est nécessaire de procéder à une étude paramétrique étendue et approfondie afin d'évaluer les performances et les limitations de cette méthode.

Profil souhaité du candidat

Diplôme Ingénieur ou Master en sciences physiques, dans les domaines de la mécanique, acoustique, énergétique. Le candidat sera amené à réaliser des simulations numériques en mécanique des fluides et transferts thermiques, mais aussi des expériences physiques impliquant des sondes acoustiques et du traitement du signal.