



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

**THESE**

Présentée pour l'obtention du grade de

**Docteur de l'Université de Lorraine**

Spécialité : Mécanique et Energétique

Par

**Lionel PERRIN****Etude expérimentale de l'évaporation à haute température  
de gouttes de combustible en régime de fortes interactions  
à l'aide de méthodes optiques**

Soutenue publiquement le 16 décembre 2014 devant la commission d'examen composée de :

Président du jury :	M. Gérard GREHAN	Directeur de recherche au CNRS, Rouen
Rapporteurs :	M. Christian CHAUVEAU	Directeur de recherche au CNRS, Orléans
	M. Sergei SAZHIN	Professeur, Université de Brighton, Brighton
Examineurs :	Mme Maria Rosaria VETRANO	Assistant Professor, Institut Van Karman, Rhode-Saint-Genèse
	M. Fabrice LEMOINE	Professeur, Université de Lorraine, Nancy
	M. Guillaume CASTANET	Chargé de recherche, CNRS, Nancy

Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée

CNRS UMR 7563

2, avenue de la Forêt de Haye BP 160

54504 Vandœuvre-lès-Nancy



## **Remerciements**

*Je tiens tout d'abord à remercier Fabrice Lemoine, professeur à l'université de Lorraine et Guillaume Castanet, chargé de recherche au CNRS, mes encadrants lors de ces trois années de thèse, pour m'avoir fait confiance, pour leur conseil et leur expérience.*

*Je remercie également tout les membres du jury: Gérard Gréhan pour avoir accepté de présider ce jury, Christian Chauveau et Sergei Sazhin pour avoir contribué en tant que rapporteur à ce travail de thèse ainsi que Maria Rosaria Vetrano pour l'avoir examiné. Je les remercie tous d'avoir apporté leur expertise et leur sens critique.*

*Un grand merci à Sébastien Kiesgen de Richter et Christophe Baravian avec qui j'ai eu la chance d'effectuer mon stage de fin d'étude au sein de l'équipe Rhéologie du LEMTA et qui ont confirmé mon goût pour la recherche.*

*Un grand merci à Alain Delconte pour sa forte collaboration en tant qu'ingénieur électronicien au LEMTA et son suivi depuis le CRAN, pour son soutien, sa gentillesse et son amitié. Je remercie également l'équipe du service électronique: Mathieu Weber, Jamel ouhajjou ainsi que Simon Becker avec qui j'ai eu la chance de travailler et de profiter d'excellents moments lors de cette dernière année de thèse.*

*Merci à Alain Chenu ainsi qu'à l'équipe technique du LEMTA: Eric Blaise, Franck Demeurie, Ludovic Buhler, Jean-Yves Morel et Pascal Thomann pour le soutien technique et leur convivialité.*

*Merci à Irène Léonard, Edith Lang, Fatiha Boumendjel et Françoise Odille-Hirtt pour leur bonne humeur et leur inestimable dévouement à aider les doctorants tout au long de leur parcours du combattant.*

*Je remercie très chaleureusement Caroline Hanotin, ma consœur, véritable wonderwoman du laboratoire, avec qui j'ai tant échangé durant ces années passées au LEMTA.*

*Merci aux anciens doctorants et maintenant docteurs du LEMTA, Pierre Dunand, Clément Baillard, Nicolas Lopez Carranza, Matthieu Klein, Cédric Clément, Christophe Rodiet, Vincent Coeuriot, Bamdad Salemi qui ont su amener une ambiance des plus agréables.*

*Un clin d'oeil aux doctorants et post-doctorants du LEMTA: William, Sofyane, Blandine, Assma, Mathilde, Thomas et du CRAN: Gundars, Sharib, Vairis, Dorina, Julien, Maria, Marcos ainsi que Michelle et Kristine qui ont transformé cette période en une aventure inoubliable.*

*Je tiens aussi à remercier les chercheurs Sophie Didierjean, Alain Degiovanni, Ophélie Caballina, Benjamin Remy et Nicolas Louvet aux côtés de qui j'ai pu travailler lors de mes activités d'enseignement dans une ambiance très chaleureuse.*

*Je remercie aussi tous les doctorants que j'ai rencontrés lors des stages de formations doctorales et autres rencontres. De Nancy ou de Metz, ils forment une force avertie, enrichissant dans tout domaine les connaissances tout en gardant une extraordinaire camaraderie, propice aux échanges et à l'amitié.*

*Enfin, je remercie également toutes les personnes que j'ai pu côtoyer au sein du LEMTA, pour tous les échanges que j'ai pu avoir avec eux, dans une ambiance plus que sympathique en me laissant un souvenir impérissable.*



# **Sommaire**

# Sommaire

Introduction .....	1
Nomenclature .....	7
Chapitre 1.Modélisation aérothermique de gouttes mono et multi-composantes en évaporation .....	11
1. Les différents modèles .....	11
2. Evaporation d'une goutte multicomposant: modèle à composant discret .....	16
2.1. Définition d'un état de référence pour les propriétés de la phase gazeuse.....	16
2.2. Equations de la phase gazeuse .....	17
2.3. Hypothèses simplificatrices .....	18
2.4. Modélisation de la phase vapeur.....	20
2.5. Modélisation des transferts en phase liquide .....	30
2.6. Calcul des propriétés physiques en phase liquide et gazeuse .....	41
2.7. Prise en compte des interactions aérodynamiques.....	44
2.8. Aspect dynamique : modélisation de la traînée .....	51
3. Conclusions .....	56
Chapitre 2.Installations expérimentales et métrologie .....	58
1. Dispositifs expérimentaux.....	58
1.1. Le jet de gouttes monodisperse.....	58
1.2. Dispositif de mise en combustion .....	63
1.3. L'enceinte à haute température.....	65
1.4. Le circuit d'air :.....	69
1.5. Dispositif de chauffage des parois et isolation thermique .....	70
1.6. Dispositif de déplacement et d'orientation: .....	72
2. Choix des combustibles.....	73
2.1. Composants purs .....	73
2.2. Mélanges binaires .....	74
2.3. Mélange ternaire .....	74
3. Mesure de la taille et de la vitesse des gouttes par ombroscopie quantitative .....	75
3.1. Dispositif optique.....	75



3.2. Traitement numérique des images pour la détermination de la vitesse et du diamètre des gouttes .....	79
3.3. Précision des mesures .....	83
4. Conclusions .....	85
Chapitre 3. Mesure de la température de gouttes mono et multicomposant par fluorescence induite par laser .....	87
1. La fluorescence induite par laser .....	87
1.1. Généralités .....	87
1.2. Principes de la fluorescence induite par laser .....	88
1.3. Modélisation du signal de fluorescence .....	91
2. Application de la fluorescence induite par laser à la mesure de température d'une goutte .....	93
2.1. Contexte .....	93
2.2. Mesure de la température de gouttes par 2cLIF .....	96
2.3. Le traceur fluorescent utilisé : le pyrrométhène 597-8C9 .....	99
2.4. Calibration en température du traceur fluorescent dans son solvant .....	118
2.5. Traitement du signal pour la mesure de la température des gouttes .....	126
2.6. Test de la technique de mesure dans le cas d'un jet de gouttes monodisperse en combustion .....	127
2.7. Résonances morphologiquement dépendantes .....	130
Chapitre 4. Etude de l'échauffement et de l'évaporation de gouttes monocomposant .....	141
1. Analyse expérimentale des paramètres intervenant dans l'échauffement et l'évaporation des gouttes en régime d'interaction .....	143
1.1. Influence de la température ambiante .....	143
1.2. Influence de la taille des gouttes .....	144
1.3. Influence de la vitesse des gouttes .....	145
1.4. Influence du paramètre de distance C .....	147
1.5. Influence de la volatilité du liquide .....	148
2. Comparaison des résultats expérimentaux aux modèles existants .....	155
2.1. Choix de la condition initiale .....	155
2.2. Résolution du problème direct .....	160
2.3. Effet de la présence de gradients de température à l'intérieur de la goutte sur la mesure de température .....	162
2.4. Résolution du problème inverse .....	167

Bruit et stabilité de l'inversion .....	169
Ajustement des paramètres $\eta_M$ et $\eta_T$ par des constantes .....	172
Précision de l'estimation des paramètres $\eta_M$ et $\eta_T$ .....	173
3. Comparaison des résultats expérimentaux aux modèles existants .....	177
3.1. Influence du paramètre de distance.....	178
3.2. Influence de la température ambiante .....	179
3.3. Influence de la température d'injection .....	180
3.4. Comparaison des effets d'interaction pour des liquides de volatilité voisine.....	181
3.5. Influence de la vitesse d'injection.....	182
3.6. Mécanisme des effets d'interaction.....	183
4. Echauffement et évaporation de gouttes multicomposant.....	185
4.1. Etude de mélanges binaires.....	185
4.2. Etude de mélanges ternaires.....	188
4.3. Conclusion .....	193
Conclusions et perspectives .....	195
Références bibliographiques .....	200

# **Introduction**

# Introduction

Le secteur des transports joue un rôle capital dans notre économie moderne. Un niveau de mobilité élevé est non seulement une caractéristique fondamentale des pays développés, mais également une des conditions de leur développement. Des défis majeurs sont désormais à relever : réduire la consommation spécifique et les émissions de CO<sub>2</sub>, maîtriser les émissions polluantes. Le transport se trouve ainsi au centre des politiques énergétiques et est désormais envisagé dans une problématique de développement durable conduisant à imposer des normes de plus en plus sévères sur les industriels des secteurs automobile et aéronautique qui sont ainsi contraints d'innover pour pouvoir les respecter.

L'émission de gaz à effets de serre comme le CO<sub>2</sub> est principalement issu de la combustion des combustibles fossiles et l'un des secteurs les plus émetteurs est celui des transports. Limiter les émissions de CO<sub>2</sub> conduit à une utilisation plus efficace de la valeur énergétique du combustible. Dans un même temps, l'utilisation de biocarburants, purs ou mélangés avec des carburants fossiles, permet de diminuer l'impact carbone des moteurs, les combustibles bio-sourcés étant réputés renouvelables. Rappelons que l'un des objectifs des 34 plans de la nouvelle France industrielle concerne la mise au point de véhicules particuliers dont la consommation de carburant est inférieure à 2l/100 km. L'industrie des moteurs aéronautiques n'est pas en reste, puisque l'ACARE (Advisory Council for Aviation Research and Innovation in Europe) affiche des objectifs de réduction de 50% des émissions de CO<sub>2</sub> entre 2000 et l'horizon 2020. Par ailleurs, les émissions polluantes des moteurs thermiques font l'objet d'une législation internationale qui est de plus en plus contraignante année après année. Pour les moteurs automobiles, la norme Euro 6b s'imposera dès le 1<sup>er</sup> septembre 2015 : à titre d'exemple, pour les moteurs diesel, les émissions d'oxydes d'azote (NOx) seront limitées à 80 g/km alors que la limitation n'était que de 500 g/km pour la norme euro 3 entrée en vigueur en 2001. Les émissions de monoxyde de carbone, d'hydrocarbures imbrûlés ainsi que de particules fines font également l'objet d'une limitation drastique, en particulier pour les moteurs à injection directe (essence ou diesel). Dans le secteur aéronautique, les normes imposées par l'OACI (Organisation de l'Aviation Civile Internationale) concernent en particulier les émissions de NOx, qui doivent être diminuées de 15% par rapport à leur niveau en l'an 2000 pour les moteurs certifiés depuis le 1<sup>er</sup> janvier 2014, l'objectif à plus long terme étant une réduction de 80%. De même, les émissions d'hydrocarbures imbrûlés, de monoxyde de carbone et de particules carbonées (suies) ont été fortement réduites.

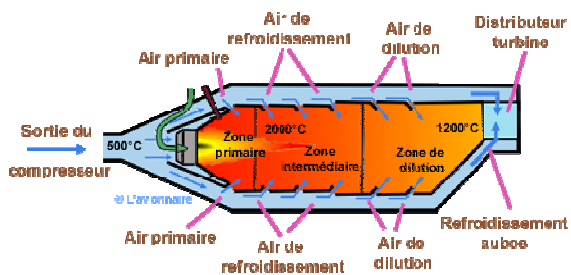
Les combustibles utilisés dans les systèmes propulsifs se présentent en général sous forme liquide. Ils sont injectés dans la chambre de combustion sous la forme d'un spray de fines gouttelettes. De nombreux phénomènes aérothermiques jouent un rôle important dans l'évolution de ces gouttelettes et doivent faire l'objet d'une description détaillée afin de les prendre en compte dans les outils de simulation numérique concourant au design de chambres de combustion à faibles émissions. Ces phénomènes concernent principalement :

- l'atomisation du combustible,
- l'échauffement et l'évaporation des gouttelettes,

- les interactions entre les gouttes et les parois chaudes de la chambre de combustion conduisant à la formation de films liquides qui participent au refroidissement de la paroi et à l'évaporation du combustible,
- l'interaction des gouttelettes avec la turbulence,
- le mélange de la vapeur de combustible avec le comburant (oxygène de l'air),
- la combustion du mélange qui fait intervenir de nombreux mécanismes aux cinétiques complexes et qui conduit au dégagement de chaleur ainsi qu'à la formation des produits de combustion et des polluants.

Ce travail s'inscrit dans l'étude approfondie de l'échauffement et l'évaporation des sprays de combustible. Il s'agit d'une étape clé à maîtriser pour plusieurs raisons :

- 1- La phase d'échauffement des gouttelettes de combustible représente environ la moitié du temps de séjour de la goutte dans la chambre de combustion.
- 2- Dans la zone primaire des chambres de turboréacteur (Figure 0.1), ou au voisinage de la sortie des injecteurs dans les moteurs automobile à injection directe (Figure 0.2), la densité du spray est telle que les interactions d'origine aérodynamique entre les gouttelettes modifient non seulement le mouvement des gouttes (effets de sillage) mais également le transport de chaleur et de masse associé à l'échauffement et à l'évaporation des gouttes.

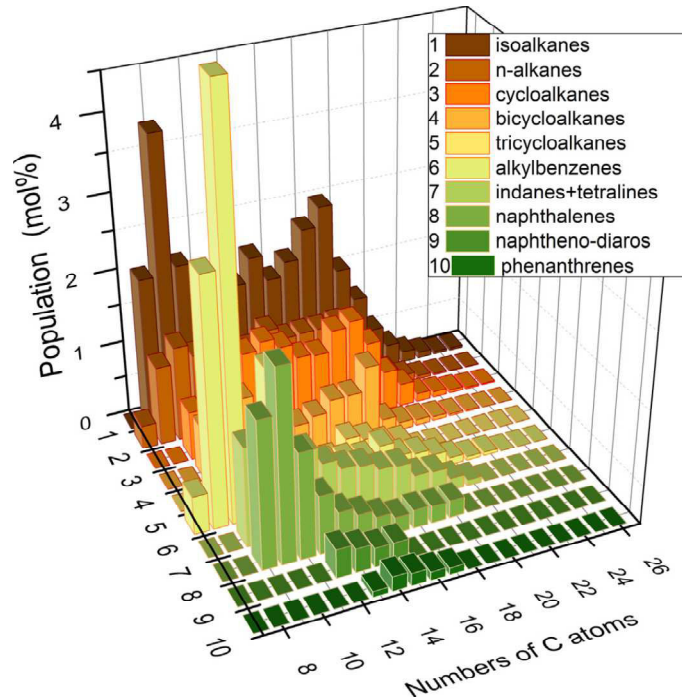


**Figure 0.1 :** Illustration des différents secteurs d'une chambre de combustion d'un turboréacteur.



**Figure 0.2 :** Illustration d'une chambre de combustion d'un moteur automobile à injection directe.

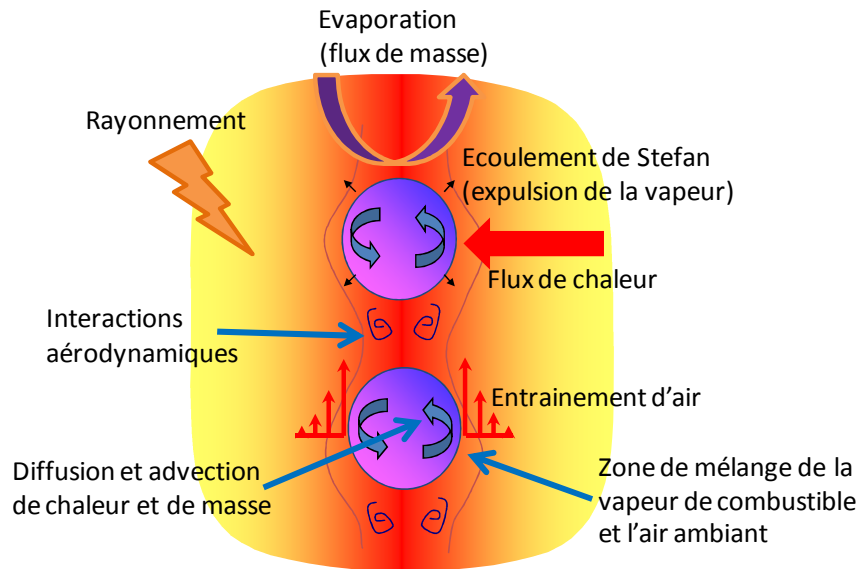
- 3- Les combustibles usuels tels que le kérosène, l'essence ou le diesel sont composés de plusieurs centaines de molécules différentes, avec des volatilités très différentes (voir Figure 0.3). Le caractère multicomposant du combustible n'est pas suffisamment pris en compte dans la plupart des modèles alors que la composition du combustible a une influence directe sur la durée de vie de la goutte, les mécanismes réactionnels, la cinétique chimique avec en particulier le délai d'auto-inflammation et in-fine la formation des polluants.



**Figure 0.3 :** Fonction de distribution des différents hydrocarbures représentatifs des composants du diesel en fonction du nombre de carbone (d'après Gun'ko et al.[1]).

Les différents phénomènes associés aux transferts couplés de chaleur et de masse intervenant dans un groupe de deux gouttes alignées sont illustrés sur la Figure 0.4. A partir de ce schéma, il est possible de dégager les principaux phénomènes gouvernant les transferts de quantité de mouvement, de masse et de chaleur. En plus du changement d'état, la phase liquide subit des échanges de chaleur convectifs avec la phase gazeuse. Ces échanges s'effectuent dans la couche limite et dans le sillage des gouttes. Le transport de la vapeur en phase gazeuse est assuré par diffusion et par transport convectif dans l'écoulement d'air. Du fait du mouvement des gouttes, des frottements s'exercent au niveau de la surface des gouttes et induisent un gradient de vitesse dans la phase gazeuse ainsi que des tourbillons à l'intérieur des gouttes. A l'intérieur de la phase liquide, les mouvements de circulation internes accélèrent le transport de la chaleur et des espèces chimiques par rapport à un régime de conduction pure. La proximité des gouttes et les effets de sillages réduisent la force de traînée, le taux d'évaporation et le flux de chaleur échangé entre les deux phases. Afin d'appréhender ces phénomènes complexes, des expériences simplifiées mais néanmoins suffisamment représentatives et très instrumentées doivent être réalisées.

Dans ce travail, une nouvelle expérience consistant à injecter un jet de gouttes monodisperse dans un écoulement d'air à basse vitesse et à haute température (540°C) a été conçue. De plus, l'utilisation de techniques optiques s'avère incontournable en raison de leur caractère non-intrusif.



**Figure 0.4 :** Illustration des phénomènes de transferts couplés intervenant dans un système simple de deux gouttes en mouvement dans un gaz à haute température.

Ce manuscrit de thèse s’articule autour de 4 chapitres :

- Un premier chapitre dresse l’état de l’art des travaux récents sur l’échauffement et l’évaporation de gouttelettes et des principales équations régissant le transport de chaleur et de masse entre les deux phases ainsi que les équations du transfert en phase liquide.
- Un second chapitre présente les dispositifs expérimentaux mis en œuvre ainsi que le développement d’une méthode originale de mesure du diamètre et de la vitesse des gouttes fondée sur l’ombroscopie quantitative à double impulsion laser.
- Le troisième chapitre offre une description détaillée de la technique de mesure de température par fluorescence induite par laser à deux couleurs (2cLIF). Plusieurs avancées significatives concernant cette technique seront décrites. Elles concernent en particulier la suppression de l’effet nuisible des modes de résonance morphologiques pouvant se développer à certaines longueurs d’onde de la fluorescence, l’effet de la composition du solvant sur le signal de fluorescence afin de réaliser des mesures de température sur des gouttes de combustibles multicomposant, binaires ou ternaires.
- Le dernier chapitre présente une étude paramétrique réalisée en faisant varier les principaux paramètres aérothermiques : température d’injection, température de l’écoulement gazeux, volatilité du combustible, diamètre et vitesse des gouttes, paramètre de distance (caractéristique des interactions entre gouttes). Pour des combustibles purs monocomposant de volatilité différente (alcanes, alcools), les nombres de Nusselt et de Sherwood, caractéristiques des échanges de chaleur et de masse entre la goutte et le milieu ambiant ont été déterminés expérimentalement. Dans ce cas, l’influence des interactions aérodynamiques entre gouttes sur les transferts ont fait l’objet d’une attention toute particulière, notamment afin de déterminer les paramètres pertinents permettant de proposer une stratégie de correction des nombres

de Nusselt et de Sherwood, afin de rendre compte de l'impact des interactions aérodynamiques sur les flux de chaleur et de masse échangés entre phases. Finalement, le cas de combustibles correspondant à des mélanges binaires et ternaires de corps purs, pour diverses conditions aérothermiques sera abordé.



# **Nomenclature**

# Nomenclature

## Symboles latins

$B_M, B_T$	Nombre de Spalding massique, thermique	
$C$	Paramètre de distance	
$Cd$	Coefficient de traînée	
$C_F$	Coefficient de frottement	
$C_p$	Capacité calorifique massique à pression constante	$J.Kg^{-1}$
$D$	Diamètre de la goutte	$m$
$D_b, D_g$	Coefficient de diffusion massique	$m^2.s^{-1}$
$f$	Fréquence	$Hz$
$g$	Force de pesanteur	$m.s^2$
$h_M$	Coefficient d'échange massique	$m.s^{-1}$
$h_T$	Coefficient d'échange thermique	$W.m^{-2}.K^{-1}$
$I$	Composant	
$k$	Taux d'évaporation	$m^2.s^{-1}$
$L$	Distance entre les gouttes	$m$
$Le$	Nombre de Lewis	
$L_V$	Chaleur latente d'évaporation	$J.Kg^{-1}$
$M$	Masse molaire	$Kg.mol^{-1}$
$m$	Masse de la goutte	$Kg$
$\dot{m}$	Débit massique	$Kg.s^{-1}$
$Nu$	Nombre de Nusselt	
$P$	Pression	$Pa$
$Pr$	Nombre de Prandtl	
$Q_L$	Flux de chaleur entrant dans la goutte	$W$
$R$	Rayon de la goutte	$m$
$r$	Rayon	$m$
$Re$	Nombre de Reynolds	
$R_f$	Rayon du film de vapeur entourant la goutte dans la théorie du film	$m$

$R_g$	Rayon de la région d'influence	$m$
$S$	Surface de la goutte	$m^2$
$Sc$	Nombre de Schmidt	
$Sh$	Nombre de Sherwood	
$T$	Température	$^{\circ}C$ ou $K$
$T$	Temps	$S$
$V_{stef}$	Vitesse de Stefan	$m.s^{-1}$
$V$	Vitesse	$m.s^{-1}$
$V_C$	Volume de collection	$m^3$
$Y$	Fraction massique	

### Symboles grecs

$\alpha$	Diffusivité thermique	$m^2.s^{-1}$
$\delta_M, \delta_T$	Epaisseur des films massique et thermique dans la théorie du film	$m$
$\eta$	Fonction de correction	
$\lambda$	Conductivité thermique	$W.m^{-1}.K^{-1}$
$\mu$	Viscosité dynamique	$Pa.s$
$\rho$	Masse volumique	$Kg.m^{-3}$
$\sigma$	Tension superficielle	$N.m^{-1}$
$\Phi$	Flux	$W$

### Indices

$0$	Relatif au premier point de mesure
	Relatif à la goutte isolée sans l'écoulement de Stefan
$\infty$	Relatif aux conditions à l'infini
$amb$	Relatif aux conditions ambiantes
$éb$	Relatif à l'ébullition
$eff$	Relatif à l'hypothèse de diffusion effective
$éq$	Relatif à l'équilibre thermodynamique

<i>f</i>	Relatif à la théorie du film
<i>film</i>	Relatif aux conditions du film
<i>inj</i>	Relatif à l'injection
<i>l</i>	Relatif à la phase liquide
<i>g</i>	Relatif à la phase gazeuse
<i>v</i>	Relatif à la vapeur
<i>i</i>	Relatif au composant <i>i</i>
<i>réf</i>	Relatif à l'état de référence
<i>s</i>	Relatif à l'interface

# **Chapitre 1**

Modélisation aérothermique de gouttes  
mono et multi-composantes en évaporation

# Chapitre 1. Modélisation aérothermique de gouttes mono et multi-composantes en évaporation

## 1. Les différents modèles

Les premiers travaux concernant la description quantitative de l'évaporation d'une gouttelette sphérique immobile, en régime stationnaire, dans une atmosphère infinie et uniforme sont attribués à Maxwell en 1877 [2] : le modèle de Maxwell suppose que l'évaporation est essentiellement gouvernée par la diffusion moléculaire et donc par le gradient de concentration de vapeur s'installant entre la surface de la goutte et la phase gazeuse. Le modèle élaboré par Fuchs [3] prend en compte le mouvement d'ensemble du gaz du fait de l'évaporation du liquide à la surface de la goutte (écoulement de Stefan). Toutefois, le modèle de Fuchs impose une pression totale et une masse volumique du gaz constantes et néglige l'influence des gradients de température en phase gazeuse. Ainsi, la validité des hypothèses de ce modèle, notamment pour déterminer le taux d'évaporation, peut être discutée lorsque la température du liquide approche son point d'ébullition.

Plus récemment, Tonini et Cossali [4] se sont également intéressés à la description des phénomènes de transfert de chaleur et de masse pour une goutte immobile (goutte suspendue), monocomposant, s'évaporant dans de l'air immobile. Ce nouveau modèle propose la résolution des équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie pour la vapeur de combustible et le gaz environnant la goutte. En revanche, ce modèle utilise l'hypothèse de conduction infinie pour la description du transfert de chaleur dans la goutte et ne prend donc pas en compte les gradients de température à l'intérieur même de la goutte. La prise en compte des gradients de température en phase gazeuse s'avère pertinente pour des taux d'évaporation élevés et pour les liquides de forte masse molaire (n-hexadécane, n-décane par exemple).

La complexité de la modélisation est très souvent amenée par le caractère multicomposant des combustibles, souvent composées de plusieurs centaines de corps purs.

En ce qui concerne la modélisation de l'évaporation de gouttes multicomposant, deux approches sont essentiellement utilisées :

- Lorsqu'un nombre relativement limité de composants est mis en jeu, le modèle à composant discret est utilisé, en s'intéressant au comportement de chacun des composants du mélange et en y ajoutant les interactions potentielles du fait de la non-idéalité de celui-ci : ce modèle fera l'objet d'une description détaillée en section 2.2.
- Lorsque le combustible contient un grand nombre de composants, une approche basée sur des fonctions de distributions de nature probabiliste est préférée. Il s'agit de modèles basés sur la thermodynamique continue ou encore des modèles dit de courbe de distillation. Ces modèles, basés sur des approches probabilistes, nécessitent des simplifications qui supposent dans le cas de la thermodynamique continue un mélange

infiniment rapide des espèces, alors que le modèle basé sur la courbe de distillation nécessite de supposer que les espèces ne se mélangent pas.

En revanche, certains modèles sont basés sur une approche mixte comportant des caractéristiques des modèles à composants discrets et de la thermodynamique continue (Zhang et Kong [5]). L'approximation d'un mélange infiniment rapide pour les espèces et la chaleur est alors également nécessaire.

La méthode QMoMs (Quadrature Method of Moments, Laurent [6]), utilise deux ou trois pseudo-composants qui remplacent différents groupes de plusieurs dizaines de composants (alcanes, aromatiques, oléfines,...). Tout comme les autres modèles, l'hypothèse de mélange infiniment rapide entre les espèces doit être présupposée.

Cependant, l'hypothèse de mélange infiniment rapide a été fréquemment remise en cause: par exemple dans les travaux de Tong et Sirignano [7] et Ra et Reitz [8], une approche à composants discrets a été utilisée afin de décrire l'évaporation de combustibles complexes composés de plusieurs centaines de corps purs. Le Diesel était représenté par 6 composants alors que l'essence l'était par 7. L'effet de la conduction thermique limitée était pris en compte (présence de gradients de température dans la goutte), cependant le mélange des espèces en phase liquide était considéré comme infiniment rapide, hypothèse qui reste par ailleurs très discutable.

Une nouvelle approche a été introduite par Sazhin et al. [9], basée sur l'utilisation de pseudo-composants, de manière similaire à celle introduite par Laurent [6]. Cependant, ce nouveau modèle introduit la diffusion des espèces en phase liquide ainsi que la diffusion thermique : le mélange thermique ou des espèces n'est donc pas infiniment rapide.

Dans le modèle de pseudo-composant, tout comme en thermodynamique continue, une fonction de distribution est introduite telle que :

$$\int_{i_1}^{i_2} f_m(i) di = 1 \quad (1.1)$$

où  $f_m(i)$  caractérise la contribution ayant une propriété  $i$  (par exemple la masse molaire, le point d'ébullition, le nombre d'atomes de carbone) et  $i_1$  et  $i_2$  sont les valeurs limites de la propriété  $i$ .

Elwardany et Sazhin [10] ont utilisés le modèle à pseudo-composants afin de décrire le comportement des alcanes ( $C_nH_{2n+2}$ ) en utilisant comme propriété caractéristique le nombre d'atome de carbone  $n$  (Figure 1.1) :

La fonction  $f_m(n)$  pour être approximée par :

$$f_m(n) = C_m(n_0, n_f) \frac{(M(n) - \gamma)^{\alpha-1}}{\beta^\alpha \Gamma(\alpha)} \exp\left[-\left(\frac{M(n) - \gamma}{\beta}\right)\right] \quad (1.2)$$

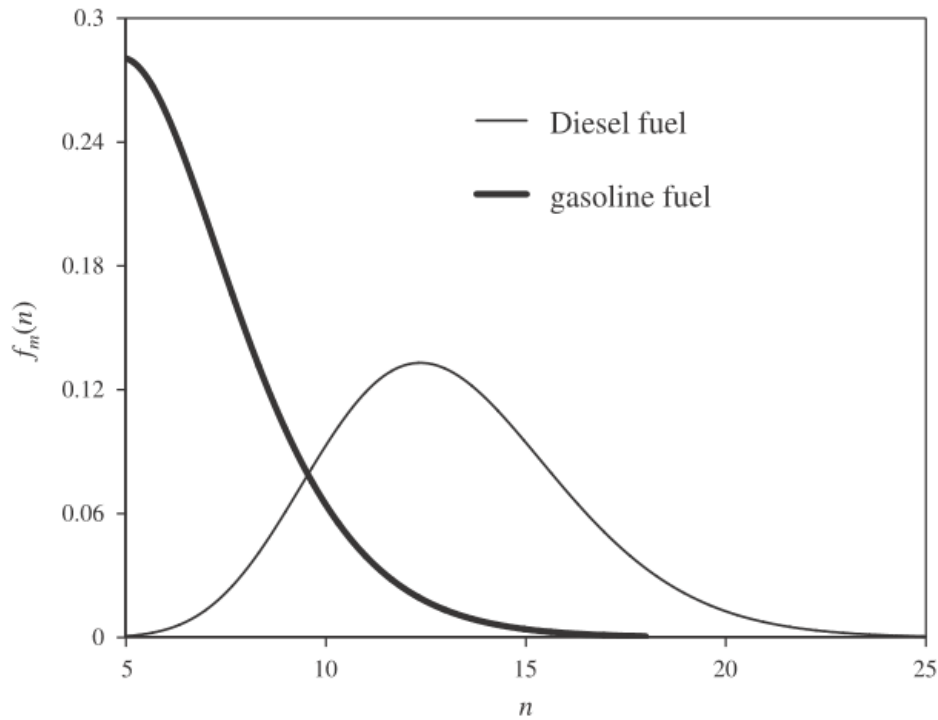
où  $\alpha$  et  $\beta$  sont des paramètres qui déterminent la forme de la fonction de distribution et  $\gamma$  est l'ordonnée à l'origine.

$M(n)$  est la masse molaire qui s'écrit dans le cas des alcanes (en g/mol) :

$$M(n) = 14n + 2 \quad (1.3)$$

$C_m(n_0, n_f)$  est déterminé tel que :  $\int_{n_0}^{n_f} f_m(n) dn = 1$  (1.4)

$$\text{soit : } C_m(n_0, n_f) = \left\{ \int_{n_0}^{n_f} \frac{(M(n) - \gamma)^{\alpha-1}}{\beta^\alpha \Gamma(\alpha)} \exp\left[-\left(\frac{M(n) - \gamma}{\beta}\right)\right] dn \right\}^{-1} \quad (1.5)$$



**Figure 1.1:** Fonction de distribution  $f_m$  en fonction de  $n$  d'après l'équation (1.2) dans le cas du diesel et de l'essence, défini à partir des paramètres donnés dans le Tableau 1.1.

Combustible	$\alpha$	$\beta$ (kg/kmole)	$\gamma$ (kg/kmole)	$n_0$	$n_f$
Diesel	18.5	10	0	5	25
Gasoil	5.7	15	0	5	18

**Tableau 1.1 :** Paramètres utilisés par Elwardany et Sazhin [10] pour le diesel et l'essence.

La pression de vapeur saturante tout comme les autres propriétés thermodynamiques (chaleur de changement de phase, capacité calorifique) ou thermophysiques (conductivité thermique, viscosité, diffusivité des espèces) peuvent alors être également écrites en fonction du nombre d'atomes de carbone.

A noter que le modèle ne prend en compte que les alcanes, alors que les combustibles réels contiennent un grand nombre d'autres espèces chimiques tels que des aromatiques, des alcènes, des alcynes...

Elwardany et Sazhin [10] ont appliqué cette méthode au cas du Diesel, en réalisant la simulation d'une goutte de diamètre 20  $\mu\text{m}$  se déplaçant à une vitesse constante de 1 m/s dans

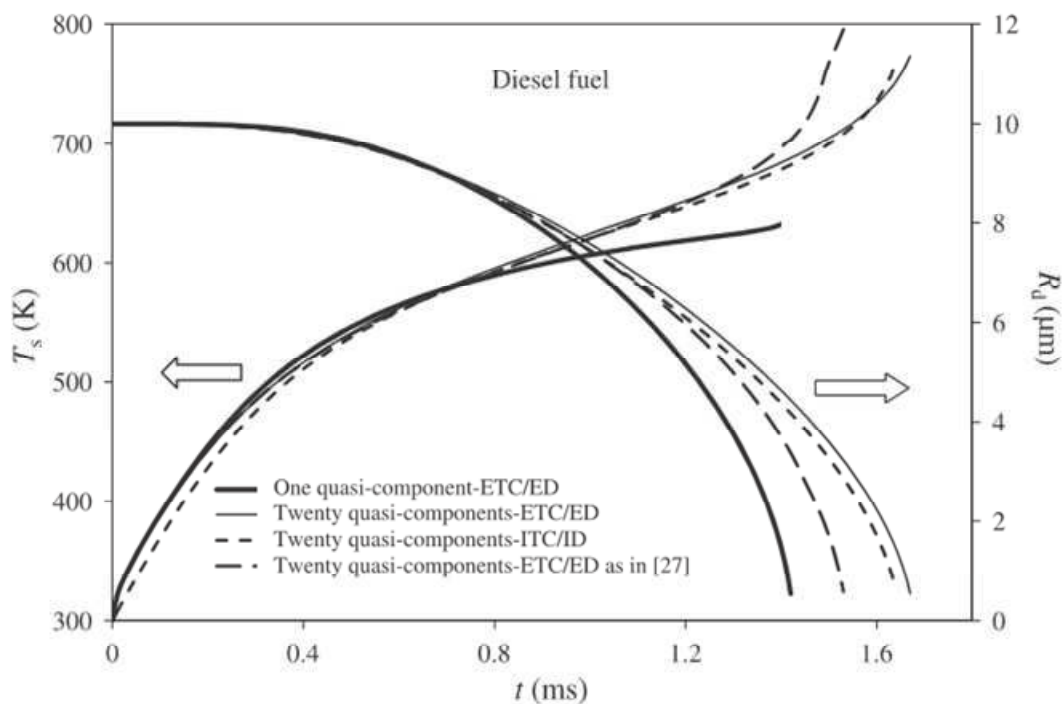


une ambiance dont la température est de 800K et la pression de 3 MPa. Le modèle de type conductivité thermique effective associé au modèle de diffusivité effective (ETC/ED) des espèces est comparé à celui prenant en compte une conductivité thermique et une diffusivité des espèces infinies (ITC/ID).

Deux cas sont simulés :

- Un quasi-composant unique ( $N_f=1$ ) ayant le nombre d'atomes de carbone moyen de la distribution
- 20 quasi-composants ( $N_f=20$ )

Le nombre de quasi-composants utilisé induit une différence tout à fait notable sur l'évolution de la température de surface et sur le rayon de la goutte lorsque le modèle ETC/ED est utilisé, en particulier dans la phase finale d'évaporation (Figure 1.2). Lorsque 20 quasi-composants sont utilisés, la température de surface prédite est supérieure à celle obtenue avec un quasi-composant unique. Ceci peut être attribué au fait qu'en phase finale d'évaporation les composants ayant un nombre élevé d'atomes de carbone deviennent dominant dans la composition du mélange, ainsi ils s'évaporent plus lentement et ont une température d'équilibre plus élevée (température de bulbe humide). Des différences significatives apparaissent dans la phase initiale d'évaporation.



**Figure 1.2 :** Evolution du rayon de la goutte  $R_d$  et de sa température de surface  $T_s$  en fonction du temps pour les différents modèles envisagés et pour les deux cas ( $N_f=1$ ,  $N_f=20$ ).

Une seconde approche, visant à compléter le modèle à composant quasi-discret développé précédemment, comble ces lacunes et a été développée par Sazhin et al. [10]. En effet, plusieurs difficultés peuvent être mises en évidence lorsque le modèle à composants quasi-discrets est appliqué à un combustible réel tel que le diesel. D'une part même si le modèle ne considère qu'un unique groupe d'hydrocarbures (les alcanes en l'occurrence), il est difficile de déterminer une fonction de distribution dépendant uniquement du nombre d'atomes de carbone. D'autre part, la contribution d'autres groupes d'hydrocarbures (cycloalcanes, bicycloalcanes, alcylobenzenique, naphtalènes, indanes et tetralines) est ignorée.

Dans cette nouvelle approche, la fraction molaire des différents composants est directement prise en compte. Ainsi, une description matricielle du mélange  $X_{nm}$  ( $X$  désignant la fraction molaire des espèces) peut être faite, où  $n$  correspond au nombre d'atomes de carbone et  $m$  au groupe de composants ou aux composants individuels considérés (ex- tricycloalcanes, biaromatiques et phénanthrènes). Ainsi, la formulation des quasi-composants peut être basée sur la contribution réelle des composants individuels sans l'approximation qu'introduirait la prise en compte d'une fonction de distribution. Il est montré qu'une quinzaine de quasi-composants sont suffisants pour conduire à une bonne approximation (2,5% d'erreur sur le temps d'évaporation complète), le calcul de référence étant réalisé pour 98 composants réels.

Le modèle à pseudo-composant a été étendu par Sazhin et al. [11] pour une application à des combustibles plus complexes de type biodiesel, tels que des esters méthyliques de palmier, des huiles de colza ou encore de soja. Ces combustibles sont en général composés d'une quinzaine d'esters méthyliques.

Deux approches sont testées en parallèles :

- Prise en compte de l'ensemble des esters méthyliques composant le combustible (une quinzaine)
- Prise en compte d'un seul composant dont les propriétés physiques correspondent à des moyennes de celles des esters méthyliques composant le mélange.

Les deux approches donnent des résultats relativement proches, même si le modèle multicomposant tend à prédire une température de surface de la goutte plus élevée et des temps d'évaporation plus longs. Ceci est dû au fait que l'évaporation des composants les plus volatiles se produit dans la phase initiale alors qu'en fin d'évaporation ne subsistent que les composants les moins volatiles ayant des taux d'évaporation significativement plus faibles et des températures d'équilibre plus élevées.

## 2. Evaporation d'une goutte multicomposant: modèle à composant discret

### 2.1. Définition d'un état de référence pour les propriétés de la phase gazeuse

La connaissance des propriétés physiques de la phase gazeuse est fondamentale pour la description des échanges de chaleur et de masse entre la phase gazeuse et la goutte. Malheureusement ces propriétés sont fortement dépendantes de la température et de la composition de la couche de vapeur entourant la goutte et ainsi, elles évoluent avec le temps et la position dans l'espace. Afin de simplifier la détermination des propriétés physiques, il est communément admis de considérer ces propriétés comme uniformes au sein de la couche de vapeur entourant la goutte où s'effectuent les transferts de chaleur et de masse. De plus, ces propriétés sont déterminées en prenant une température et une fraction massique intermédiaire entre la surface de la goutte et les conditions à l'infini suivant:

$$T_{réf} = \alpha T_{amb} + (1 - \alpha) T_s \quad (1.6)$$

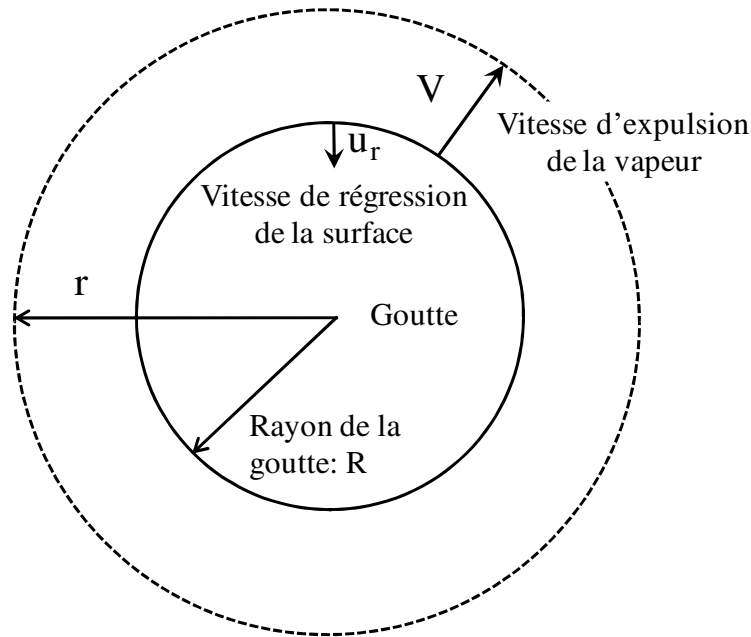
$$Y_{réf} = \alpha Y_{amb} + (1 - \alpha) Y_s \quad (1.7)$$

Hubbard et al. [12] ainsi que Yuen et Chen [13] proposent une manière empirique de calculer un état dit de "référence" pour la température et la fraction massique de vapeur avec ce qui est communément appelé la loi du 1/3 en posant  $\alpha=1/3$  dans les équations (1.6) et (1.7). Certains auteurs préférant utiliser  $\alpha=1/2$  dans ces mêmes équations où l'on parle alors de température et de fraction massique du film.

Ainsi, dans la description du modèle d'évaporation, les propriétés physiques calculées dans l'état de référence seront notées avec un indice *réf* et l'indice *film* sera utilisé pour les propriétés du film.

## 2.2. Equations de la phase gazeuse

Considérons une goutte isolée composée de  $N$  espèces élémentaires  $i$  (composants), immobile et en évaporation.



**Figure 1.3 :** Schéma d'une goutte immobile en évaporation et notations utilisées dans la modélisation.

Sans autres hypothèses, les équations de conservation en phase gazeuse sont les suivantes :

- Conservation de la quantité de mouvement :

$$\rho_g \left( \frac{\partial \bar{V}}{\partial t} + \bar{V} \cdot \overline{\text{grad}} \bar{V} \right) = -\overline{\text{grad}} P + \rho_g \bar{g} + \text{div} \left( \frac{\mu_g}{2} \left[ \overline{\text{grad}} \bar{V} + \overline{\text{grad}} \bar{V} \right] \right) \quad (1.8)$$

- Conservation de la masse totale :

$$\frac{\partial \rho_g}{\partial t} + \text{div}(\rho_g \bar{V}) = 0 \quad (1.9)$$

- Conservation de la masse pour la vapeur de combustible :

$$\frac{\partial \rho_g Y_{g,i}}{\partial t} + \text{div}(\rho_g Y_{g,i} \bar{V}) + \text{div}(-D_{g,i} \overline{\text{grad}}(\rho_g Y_{g,i})) = 0 \quad (1.10)$$

- Conservation de l'énergie :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_g C_p T) + \text{div}(\rho_g C_p T \bar{V}) + \text{div}(-\lambda_g \overline{\text{grad}} T) + \text{div}(\rho_g T \Sigma_i (C_{p_{v,i}} Y_{g,i} (\bar{V}_i - \bar{V}))) = 0 \quad (1.11)$$

Dans ces équations,  $\rho_g$ ,  $\mu_g$ ,  $\lambda_g$ ,  $C_p$  et  $D_g$  représentent respectivement la masse volumique, la viscosité dynamique, la conductivité thermique, la capacité calorifique massique et le coefficient de diffusion pour le gaz ou l'espèce  $i$  en phase vapeur.

Il n'existe pas à priori de solutions simples pour la résolution de ces équations. Il devient alors nécessaire d'imposer des hypothèses simplificatrices afin d'obtenir une solution analytique.

### 2.3. Hypothèses simplificatrices

- La forme de la goutte est à symétrie sphérique. Le nombre de Weber définit comme le rapport des forces d'inertie de la phase gazeuse et des forces de tension superficielle permet de justifier cette hypothèse et s'écrit :

$$We = \frac{\rho_{g,ref} (V - V_g)^2 D}{\sigma_l} \quad (1.12)$$

Ce nombre est proportionnel à la vitesse relative de la goutte par rapport au gaz environnant élevée au carré, avec  $\rho_{ref}$  la masse volumique du gaz dans les conditions de références définies au paragraphe 2.1,  $D$  le diamètre de la goutte et  $\sigma$  la tension superficielle de la goutte.

Dans le cas le plus défavorable qui sera considéré dans ce travail, pour des gouttes de dodécane de  $180 \mu\text{m}$  se déplaçant à  $13 \text{ m.s}^{-1}$ , le nombre de Weber ne dépasse pas 1, ce qui est suffisant pour justifier la sphéricité.

- La phase liquide est quasi-stationnaire. Le débit d'évaporation pour une goutte en évaporation est suffisamment faible pour négliger la variation de son diamètre sur un temps considéré comme suffisamment faible. L'évaporation se décrit alors comme une succession d'états quasi-stationnaires et les équations de conservation se résolvent alors de manière parfaitement stationnaire.
- Les propriétés physiques dans le film gazeux autour de la goutte sont uniformes. Elles sont calculées pour un état de référence et sont variables dans le temps.
- Les propriétés thermophysiques à l'intérieur de la goutte sont uniformes. Ces propriétés sont variables dans le temps.
- La pression est uniforme dans la phase gazeuse.
- La phase gazeuse est constituée par un mélange idéal de gaz parfait correspondant à l'air ambiant et chacun des composants du mélange constituant le combustible liquide.
- Absence de réactions chimiques.
- L'interface liquide-gaz est à l'équilibre thermodynamique.
- Les transferts radiatifs vis-à-vis de la phase liquide sont négligés. Ceci étant justifié par une température ambiante relativement basse ( $T < 600^\circ\text{C}$ ) et par une absorptivité du rayonnement faible par les combustibles liquides pour les longueurs d'onde correspondant à la température de la phase gazeuse.

Compte-tenues des hypothèses précédentes, les équations peuvent être réécrites de la manière suivante :

Conservation de la masse :

$$4\pi r^2 \rho_{g,ref} V_{Stef} = \dot{m} = \sum_i \dot{m}_i \quad (1.13)$$

De plus, l'hypothèse de quasi stationnarité et la conservation de la masse permettent de simplifier l'équation du transport de la masse et d'évaluer le débit massique  $\dot{m}$  s'évaporant de la goutte en fonction de la vitesse de régression de la surface de la goutte  $u_R$  :

$$\dot{m} = 4\pi \rho_l R^2 u_R = 4\pi \rho_{g,ref} r^2 V_{Stef} \quad (1.14)$$

Conservation de la quantité de vapeur de combustible :

$$\frac{d}{dr} \left[ r^2 \left( \rho_{g,ref} u_g Y_{g,i,ref} - \rho_{g,ref} D_{g,i,ref} \frac{dY_{g,i,ref}}{dr} \right) \right] = 0 \quad (1.15)$$

avec  $V_{Stef}$  la vitesse radiale due à l'écoulement de Stefan résultant de l'expulsion du gaz à l'interface.

$$\text{Conservation de l'énergie : } \frac{d}{dr} \left[ r^2 \left( \lambda_{g,ref} \frac{dT}{dr} + \rho_{g,ref} V_{Stef} C_{p,v,ref} T \right) \right] = 0 \quad (1.16)$$

La résolution des équations de conservations s'effectue alors dans le cas unidirectionnel grâce aux conditions initiales connues et aux conditions aux limites définies ci-après :

- Pour la température, la condition à la surface ( $r=R$ ) est de type flux imposé et s'exprime suivant :

$$Q_L = 4\pi R^2 \lambda_{g,ref} \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_R \quad (1.17)$$

- En ce qui concerne le transfert massique, le débit massique d'évaporation de l'espèce  $i$  à l'interface est égal au flux de masse évaporée de l'espèce  $i$  diminué du flux de masse diffusif :

$$\dot{m} Y_{i,g} - 4\pi r^2 \rho_{g,ref} D_{i,g,ref} \left. \frac{d(Y_{i,g})}{dr} \right|_{r=R} = \dot{m}_i \quad (1.18)$$

Dans le déroulement d'une simulation numérique, le diamètre est recalculé à chaque pas de temps. Son évolution peut être prédite en utilisant l'hypothèse de quasi-stationnarité de la phase gazeuse, ce qui permet d'écrire :

$$\dot{\dot{m}} = \sum_i \dot{m}_i = -4\pi \rho_l R^2 \frac{dR}{dt} \quad (1.19)$$

## Bilan thermique de la goutte:

Une goutte injectée dans un environnement chaud reçoit de la chaleur provenant de la phase gazeuse ( $\Phi_g$ ). Cette énergie est utilisée pour l'échauffement de la goutte ( $Q_L$ ) et à son évaporation ( $\Phi_{vap}$ ) :

$$\Phi_g = \Phi_{vap} + Q_L \quad (1.20)$$

$$\text{avec } \Phi_g = 4\pi R^2 \lambda_{g,réf} \left. \frac{dT}{dr} \right)_s \quad (1.21)$$

La chaleur prélevée pour l'échauffement conduit à une condition à la limite de type flux imposé à l'interface liquide-gaz:

$$Q_L = -\lambda_l 4\pi R^2 \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right)_{s,r \leq R} \quad (1.22)$$

Le flux de chaleur prélevé par l'évaporation d'un nombre de composants  $n$  à la surface de la goutte s'écrit :

$$\Phi_{vap} = \sum_i^n L_{v,i}(T_S) \dot{m}_i \quad (1.23)$$

où le débit massique  $\dot{m}_i$  et la chaleur latente d'évaporation  $L_{v,i}$  sont exprimés pour chaque constituant  $i$ .

## 2.4. Modélisation de la phase vapeur

### 2.4.1. Nombres adimensionnels caractéristiques

Dans la phase gazeuse, les transferts de masse et de chaleur s'opèrent suivant différents mécanismes:

- La diffusion de matière et de chaleur,
- La convection forcée générée par l'écoulement de Stefan
- La convection forcée, lorsqu'il existe un mouvement relatif entre la goutte et le milieu ambiant.

Afin de caractériser les transferts entre la phase liquide et la phase vapeur sont introduits respectivement les nombres de Sherwood (relatif au transfert de masse) et Nusselt (relatif au transfert de chaleur) définis comme suit :

$$Sh_i = \frac{h_{M,i} D}{D_{g,i}} \quad (1.24)$$

$$Nu = \frac{h_T D}{\lambda_g} \quad (1.25)$$

avec  $h_T$  et  $h_{M,i}$  les coefficients d'échanges de chaleur et de masse respectivement :

$$h_T = \lambda_g \left. \frac{\partial T_g}{\partial r} \right)_{s,r>R} \frac{1}{T_{amb} - T_S} \quad (1.26)$$

$$h_{M,i} = D_{g,i} \left. \frac{\partial Y_{g,i}}{\partial r} \right)_{s,r>R} \frac{1}{Y_{g,i,amb} - Y_{g,i,s}} \quad (1.27)$$

#### 2.4.2. Transferts de matière et de chaleur à l'interface liquide-gaz

A l'interface, le débit massique de l'espèce  $i$  est égal au flux de masse évaporé diminué du flux massique échangé par diffusion :

$$\dot{m}_i = \dot{m} Y_{g,i} - 4\pi R^2 \rho_{g,réf} D_{g,i,réf} \left. \frac{dY_{g,i}}{dr} \right)_s \quad (1.28)$$

Il est alors possible d'évaluer le débit massique d'évaporation en introduisant le nombre de Spalding massique défini comme suit :

$$B_{M,i} = \frac{Y_{g,i,s} - Y_{g,i,amb}}{\xi_i - Y_{g,i,s}} \quad (1.29)$$

avec  $\xi_i = \dot{m}_i / \dot{m}$  (1.30)

En associant (1.28) et (1.29) avec le nombre de Sherwood défini en (1.24) et (1.27), le débit massique d'évaporation peut s'écrire en fonction du nombre de Sherwood et du nombre de Spalding massique:

$$\dot{m} = \pi D \rho_g D_{g,i} Sh_i B_{M,i} \quad (1.31)$$

Il est aussi possible de relier le nombre de Nusselt au débit d'évaporation en partant du bilan d'énergie à l'interface:

$$4\pi R^2 \lambda_g \left. \frac{dT}{dr} \right)_s = \sum_i^n L_{v,i}(T_S) \dot{m}_i + Q_l \quad (1.32)$$

En introduisant dans (1.32) le nombre de Nusselt défini à partir des équations (1.25) et (1.26) au niveau de l'interface:

$$\pi D \lambda_g Nu (T_{amb} - T_S) = \sum_i^n L_{v,i}(T_S) \dot{m}_i + Q_l \quad (1.33)$$

De manière similaire à l'écriture de l'équation (1.31), l'évaluation du débit massique d'évaporation est possible en introduisant le nombre de Spalding thermique défini comme suit :



$$B_T = \frac{\sum_i^n C_{p_{v,i,ref}} \dot{m}_i (T_{amb} - T_S)}{\sum_i^n L_{v,i}(T_S) \dot{m}_i + \frac{Q_l}{m}} \quad (1.34)$$

En associant (1.33) et (1.34) et en récrivant  $C_{p_{v,ref}} = \sum_i^n C_{p_{v,i,ref}} \xi_i$  et  $L_v(T_S) = \sum_i^n L_{v,i}(T_S) \xi_i$ , le débit massique d'évaporation s'écrit en fonction du nombre de Nusselt et du nombre de Spalding thermique de la manière suivante:

$$\dot{m} = \pi D \rho_{g,ref} \alpha_{g,ref} \frac{C_{p_{g,ref}}}{C_{p_{v,ref}}} Nu B_T \quad (1.35)$$

où  $\alpha_g$  représente la diffusivité thermique du gaz et  $C_p$  la capacité calorifique massique associée au gaz (indice  $g$ ) ou à la vapeur (indice  $v$ ).

Finalement, les équations (1.29) et (1.34) permettent d'obtenir :

$$Sh_i B_{M,i} = Le Nu B_T \frac{C_{p_g}}{C_{p_v}} \quad (1.36)$$

où  $Le$  est le nombre de Lewis correspondant au rapport des diffusivités thermiques et massique de chacune des espèces  $i$ :

$$Le = \frac{\alpha_g}{D_{g,i}} \quad (1.37)$$

Les propriétés physiques du gaz et de la vapeur sont prises dans les conditions de références. Seule la chaleur latente d'évaporation est prise à la température de surface. L'expression (1.36) est valable pour une goutte isolée dans un environnement au repos où les transferts de masse et de chaleur s'effectuent selon une symétrie sphérique.

### 2.4.3. Prise en compte du mouvement relatif de la goutte: théorie du film

Pour une goutte en mouvement apparaît la convection forcée qui va participer aux échanges s'effectuant entre la goutte et la phase gazeuse. Il est alors nécessaire de modifier la modélisation des transferts en prenant en compte la convection forcée qui brise la symétrie sphérique des échanges.

Prakash et al. [14] ont développé la théorie du film afin de prendre en compte la convection tout en gardant une symétrie sphérique des échanges. Ainsi, des expressions similaires à celles écrites précédemment, présupposant la symétrie sphérique, pourront être utilisées. Pour cela, ces auteurs proposent de modéliser la zone où ont lieu les échanges de masse et de chaleur par un film mince entourant la goutte. L'épaisseur du film est adaptée au transfert de masse de chaque composant  $i$  et au transfert de chaleur et dépend respectivement:

- des nombres de Sherwood du composé  $i$  et du nombre de Nusselt
- de l'écoulement de Stefan

Ainsi, les conditions à l'infini sont ramenées au niveau d'une couronne sphérique de rayon externe  $R_{f,M,i}$  pour le transfert de masse et  $R_{f,T}$  pour le transfert thermique.

Cette théorie implique un certain nombre d'hypothèses :

- A l'intérieur de ce film fictif, les propriétés thermophysiques du gaz sont supposées uniformes spatialement et aucune réaction chimique n'intervient.
- Les effets de la pesanteur sont négligés.
- Les épaisseurs de film sont différenciées avec  $\delta_{M,i}$  pour le champ de concentration en vapeur et  $\delta_T$  pour le champ de température. Elles sont ajustées de sorte que la diffusion de la masse et de la chaleur à l'intérieur du film soient égales au flux réellement échangé entre la goutte et le milieu extérieur.
- La température et la concentration sont uniformes à la surface de la goutte ainsi qu'à la surface du film.

Compte-tenu de ces hypothèses, il est possible de réécrire les équations de conservations qui ont été déterminées précédemment :

$$\frac{d}{dr} \left[ r^2 \left( \rho_g V_{Stef,i} Y_{g,i} - \rho_g D_{g,i} \frac{dY_{g,i}}{dr} \right) \right] = 0 \quad (1.38)$$

$$\frac{d}{dr} \left[ r^2 \left( \lambda_g \frac{dT}{dr} + \rho_g V_{Stef} C_{p_v} T \right) \right] = 0 \quad (1.39)$$

Les expressions (1.38) et (1.39) peuvent être intégrées en utilisant les conditions aux limites à la surface du film  $Y_{g,i}(r = R_{f,M,i}) = Y_{g,i,amb}$  et  $T(r = R_{f,M,i}) = T_{amb}$  :

$$Y_{g,i}(r) = \xi_i + (Y_{g,i,amb} - \xi_i) \exp \left( - \frac{\dot{m}}{4\pi\rho_g D_{g,i}} \left( \frac{1}{R} - \frac{1}{R_{f,M,i}} \right) \right) \quad (1.40)$$

$$T(r) = T_s - \frac{L_v}{C_{p_v}} - \frac{Q_v}{\dot{m} C_{p_v}} + \left( (T_{amb} - T_s) + \frac{L_v}{C_{p_v}} - \frac{Q_v}{\dot{m} C_{p_v}} \right) \exp \left( - \frac{\dot{m}}{4\pi\rho_g \alpha_{g,i} C_{p_g}} \left( \frac{1}{r} - \frac{1}{R_{f,T}} \right) \right) \quad (1.41)$$

Le débit massique d'évaporation est évalué en passant au logarithme les équations (1.40) et (1.41) et en y introduisant l'expression des nombres de Spalding thermique et massique :

$$\frac{\dot{m}}{4\pi\rho_g D_{g,i}} \left( \frac{1}{R} - \frac{1}{R_{f,M,i}} \right) = \ln(1 + B_{M,i}) \quad (1.42)$$

$$\frac{\dot{m}}{4\pi\rho_g \alpha_{g,i} C_{p_g}} \left( \frac{1}{R} - \frac{1}{R_{f,T}} \right) = \ln(1 + B_T) \quad (1.43)$$

En associant les équations (1.31) et (1.42) pour le transfert massique et (1.35) et (1.43) pour le transfert thermique, il est possible d'obtenir l'expression des nombres de Sherwood et de Nusselt pour une goutte sphérique en évaporation dans le cadre de la théorie du film :

$$Sh_i = \frac{\ln(1 + B_{M,i})}{B_{M,i}} \frac{2R_{f,M,i}}{R_{f,M,i} - R} \quad (1.44)$$

$$Nu = \frac{\ln(1 + B_T)}{B_T} \frac{2R_{f,T}}{R_{f,T} - R} \quad (1.45)$$

En l'absence d'évaporation,  $B_{M,i}$  et  $B_T$  tendent vers 0. Les équations suivantes donnent ainsi l'expression des rayons du film modélisant les couches massique et thermique autour de la goutte sans influence de l'écoulement de Stephan :

$$R_{f,M,i,0} = R \frac{Sh_{i,0}}{Sh_{i,0} - 2} \quad (1.46)$$

$$R_{f,0} = R \frac{Nu_0}{Nu_0 - 2} \quad (1.47)$$

$Sh_{i,0}$  et  $Nu_0$  représentent respectivement les nombres de Sherwood et de Nusselt dans le cas d'une sphère isolée, en mouvement par rapport à la phase gazeuse mais sans évaporation.

Afin de déterminer ces nombres adimensionnels, différentes corrélations ont été établies de manière empirique, afin de prendre en compte l'effet du mouvement relatif de la goutte par rapport à la phase gazeuse, tout en conservant la symétrie sphérique :

-La corrélation de Ranz et Marshall :

$$Sh_{i,0} = 2 + 0,6 Re^{1/2} Sc_{g,i}^{1/3} \quad (1.48)$$

$$Nu_0 = 2 + 0,6 Re^{1/2} Pr_g^{1/3} \quad (1.49)$$

avec  $Sc_{g,i} = \frac{\mu_g}{D_{g,i} \rho_g}$  correspondant au nombre de Schmidt de l'espèce  $i$ ,  $Pr_g = \frac{\mu_g Cp_g}{\lambda_g}$  le

nombre de Prandtl calculé sur les propriétés physiques de la phase gazeuse et  $Re = \frac{\rho_g VD}{\mu_g}$  le

nombre de Reynolds de la goutte.

-La corrélation de Frossling :

$$Sh_{i,0} = 2 + 0,552 Re^{1/2} Sc_{g,i}^{1/3} \quad (1.50)$$

$$Nu_0 = 2 + 0,552 Re^{1/2} Pr_g^{1/3} \quad (1.51)$$

-La corrélation de Clift :

$$Sh_{i,0} = 1 + (1 + Re Sc_{g,i})^{1/3} f(Re) \quad (1.52)$$

$$Nu_0 = 1 + (1 + Re Pr_g)^{1/3} f(Re) \quad (1.53)$$

avec  $f(Re) = 1$  si  $Re \leq 1$  et  $f(Re) = Re^{0,0777}$  si  $1 < Re < 40$ .

Ces corrélations permettent de modéliser la convection forcée autour de la goutte isolée sans l'écoulement de Stephan. Dans les conditions de la convection naturelle, le nombre de Reynolds sera remplacé par le nombre de Grashof.

Dans le cas de l'évaporation, il faut tenir compte d'un effet de soufflage du film causé par l'écoulement de Stephan. En effet l'écoulement radial, correspondant à l'expulsion de vapeur due au changement de phase à la surface de la goutte, a pour conséquence d'augmenter le rayon du film. D'après Abramzon et Sirignano [15], la variation relative d'épaisseur des films massique et thermique du fait de l'évaporation dépend principalement des nombres de Spalding massique ou thermique :

$$\frac{\delta_{M,i}}{\delta_{M,i,0}} = F_M(B_{M,i}) \quad (1.54)$$

$$\frac{\delta_T}{\delta_{T,0}} = F_T(B_T) \quad (1.55)$$

avec  $F(B) = (1 + B)^{0,7} \frac{\ln(1 + B)}{B}$ ,  $B = B_M$  ou  $B_T$ .

Ainsi, les épaisseurs de films en l'absence d'évaporation s'écrivent :

$$\delta_{M,i,0} = R_{f,M,i,0} - R = R \left( \frac{2}{Sh_{i,0} - 2} \right) \quad (1.56)$$

$$\delta_{T,0} = R_{f,T,0} - R = R \left( \frac{2}{Nu_0 - 2} \right) \quad (1.57)$$

Dans l'expression des nombres de Sherwood et de Nusselt (1.44) et (1.45), le terme dépendant du rayon externe du film pour le transfert de masse ou de chaleur peut se réécrire suivant:

$$\frac{2R_f}{R_f - R} = \frac{2(R + \delta)}{\delta} = 2 + \frac{2R}{F(B)\delta_0} \quad (1.58)$$

Finalement, les expressions générales des nombres de Sherwood et de Nusselt pour une goutte en évaporation sous l'influence de la convection forcée, résultant du déplacement relatif de la goutte par rapport à la phase gazeuse, deviennent :

$$Sh_i = \frac{\ln(1+B_{M,i})}{B_{M,i}} \left[ 2 + \left( \frac{Sh_{i,0} - 2}{F_M(B_{M,i})} \right) \right] \quad (1.59)$$

$$Nu = \frac{\ln(1+B_T)}{B_T} \left[ 2 + \left( \frac{Nu_0 - 2}{F_T(B_T)} \right) \right] \quad (1.60)$$

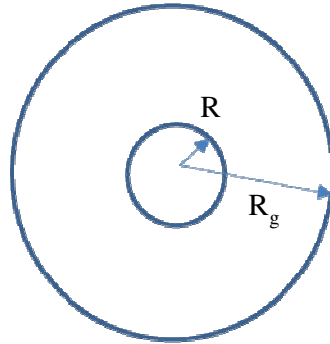
Plus récemment, Sazhin et al. [16] ont étendu le modèle d'évaporation de gouttes multicomposant à composants discrets en prenant notamment en compte la couplage entre la phase liquide (goutte) et la phase gazeuse entourant la goutte.

Ce couplage est basé sur l'hypothèse que la goutte échange de la chaleur et de la matière avec un volume gazeux  $V_g$ , appelé région d'influence, entourant celle-ci. La forme de ce volume peut être soit une sphère dans le cas d'une goutte isolée, soit un cylindre dans le cas d'un train de gouttes périodiques.

- Cas sphérique :  $V_g = \frac{4}{3}\pi(R_g^3 - R^3)$  (1.61)

- Cas cylindrique :  $V_g = \pi R_g^2 d - \frac{4}{3}\pi R^3$  (1.62)

où  $R_g$  est le rayon de la région d'influence,  $R$  le rayon de la goutte et  $d$  la distance entre deux gouttes successives (Figure 1.4).



**Figure 1.4 :** Schéma de la région d'influence autour d'une goutte isolée, d'après Sazhin et al. [16].

Le rayon de la zone d'influence peut être évalué par une zone fictive dans laquelle la goutte échange de la masse et de la chaleur :  $R_g = R + \sqrt{a_D t_D}$  (1.63)

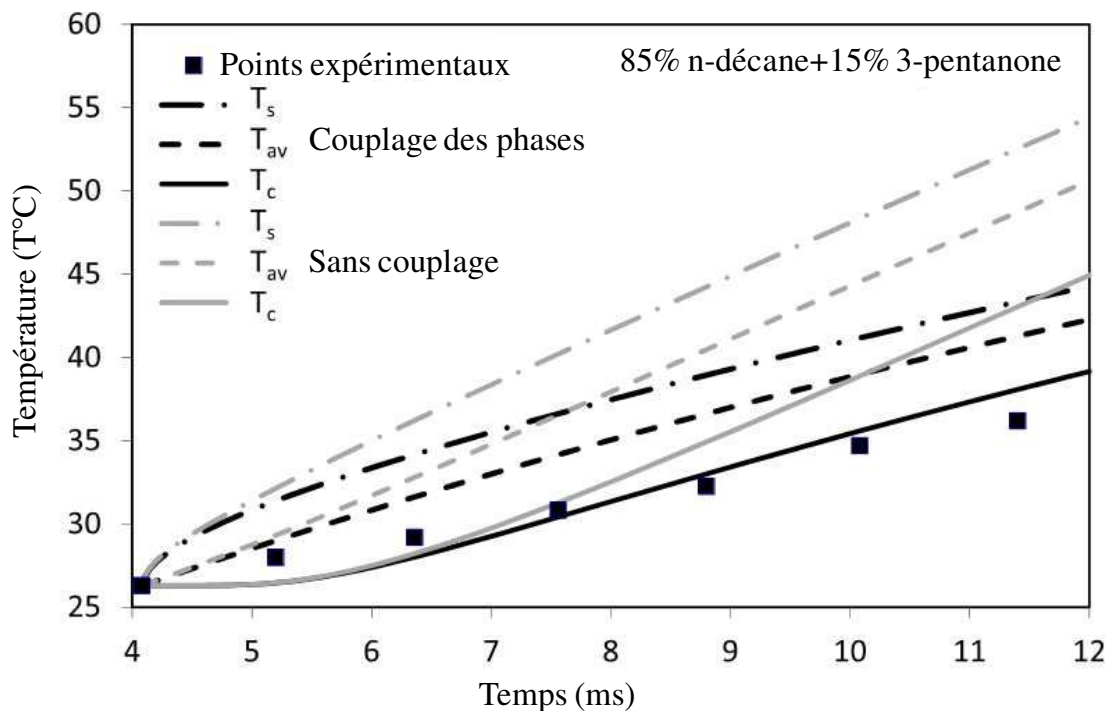
où  $a_D$  représente une diffusivité (massique ou thermique) et  $t_D$  est un temps caractéristique associé au processus d'évaporation :

$$a_D = \max \left( \frac{\lambda_g}{Cp_g \rho_g}, D_v \right) \quad (1.64)$$

où  $\lambda_g$ ,  $Cp_g$  et  $\rho_g$  sont respectivement la conductivité thermique, la chaleur massique et la masse volumique de la phase gazeuse.  $D_v$  représente la diffusivité massique de la vapeur.

Les bilans de matière sont ensuite écrits sur le volume correspondant à la zone de la région d'influence, en considérant les échanges entre la phase liquide et le domaine gazeux défini par la région d'influence.

Ce modèle a été testé pour des gouttes bicomposant composées d'un mélange n-décane/3-pentanone de diamètre  $122 \mu\text{m}$  injectées à  $26^\circ\text{C}$  dans de l'air à  $374^\circ\text{C}$  (Figure 1.5). Les points expérimentaux provenant du travail de Deprédurand [17] sont en général situés entre la température simulée au centre et la température arithmétique moyenne, lorsque le couplage entre les phases liquide et gazeuse est utilisé (Figure 1.5, correspondant à une fraction volumique de 15% de 3-pentanone). Les calculs effectués sans prise en compte du couplage montrent des températures moyennes trop élevées par rapport aux points expérimentaux, ce qui montre de meilleurs résultats en prenant en considération ce couplage.



**Figure 1.5 :** Evolution de la température pour des gouttes composées d'un mélange n-décane/3-pentanone en échauffement avec  $T_s$  la température à la surface,  $T_{av}$  la température arithmétique moyenne et  $T_c$  la température au centre des gouttes.

#### 2.4.4. Température d'équilibre d'une goutte monocomposant

Lorsqu'une goutte est injectée dans un gaz dont la température ambiante est supérieure à sa température de surface, l'évolution de la température de la goutte peut être caractérisée par deux phases:

- une phase d'échauffement correspondant à flux de chaleur dirigé de la phase gazeuse vers la phase liquide, utilisé à la fois pour échauffer le liquide et partiellement pour l'évaporation,

- lorsque la goutte est à l'équilibre thermique (phase d'équilibre), la goutte s'évapore à température constante correspondant à la température de bulbe humide. Tout le flux de chaleur en provenance de la phase gazeuse sert alors à l'évaporation de la goutte.

Dans cette seconde phase, il est alors possible de déterminer numériquement cette température d'équilibre en considérant que le flux de chaleur entrant dans la goutte  $Q_l$  comme nul.

$$\text{L'équation (1.20) devient : } \Phi_C = \Phi_{vap} \quad (1.65)$$

$$\text{En utilisant (1.59) et (1.60), il vient : } B_T = (1 + B_M)^a - 1 \quad (1.66)$$

avec:

$$a = Le \frac{Cp_g}{Cp_v} \frac{2 + \frac{Sh_{i,0} - 2}{F_M(B_{M,i})}}{2 + \frac{Nu_0 - 2}{F_T(B_T)}} \quad (1.67)$$

Les nombres de Nusselt et de Sherwood, ici limités à une faible évaporation (vitesse de l'écoulement de Stefan nul), sont utilisés en prenant en compte les corrélations de Ranz-Marshall, de Frossling ou encore de Clift ((1.48) à (1.53)). A l'équilibre thermique, la température d'équilibre  $T_{\acute{e}q}$  est donnée par l'équation (1.68) en posant :

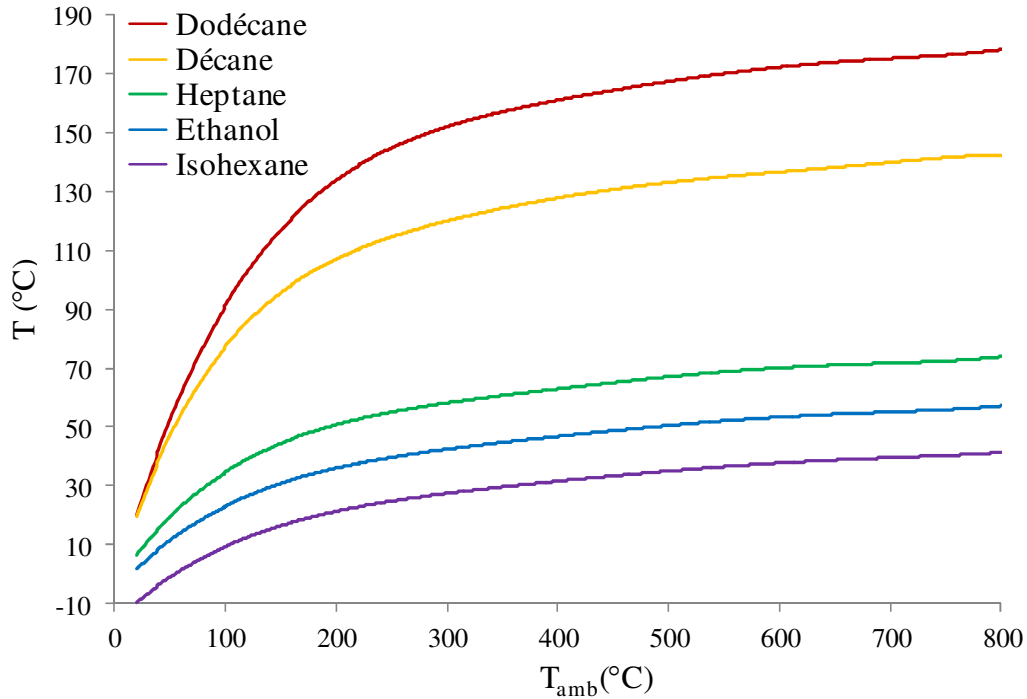
$$Q_l = 0 \quad \text{d'où} \quad B_T = \frac{Cp_g (T_{amb} - T_{\acute{e}q})}{L_v} \quad (1.68)$$

$$\text{et } B_M = \frac{Y_{g,S} - Y_{g,amb}}{1 - Y_{g,S}} \quad \text{avec } Y_{g,S} = f(T_{\acute{e}q}) \quad (1.69)$$

Il est alors possible de déterminer la température d'équilibre en connaissant la température ambiante et le nombre de Reynolds (intervenant dans la correction appliquée sur les nombres de Nusselt et de Sherwood afin de prendre en compte la convection forcée).

En supposant qu'un équilibre liquide/vapeur s'instaure et se maintient en permanence à la surface de la goutte, la pression partielle de vapeur à la surface de la goutte est considérée comme étant égale à la pression de vapeur saturante du combustible considéré. La loi d'Antoine permet d'obtenir la valeur de la pression de vapeur saturante et d'en déduire  $Y_{g,S}$  pour le calcul de  $B_M$ . Le système d'équations (1.68), (1.69) et (1.70) se résout numériquement par itérations.

Les courbes de la Figure 1.6 représentent l'évolution de la température d'équilibre en fonction de la température ambiante comprise entre 20°C et 800°C à la pression atmosphérique. Ces températures ont été déterminées numériquement en utilisant la corrélation de Clift pour le calcul de  $Nu_0$  et  $Sh_0$  dans l'équation (1.67).



**Figure 1.6 :** Evolution de la température d'équilibre de la goutte isolée en fonction de la température ambiante.

Le Tableau 1.2 représente les températures d'équilibre des combustibles correspondant aux conditions de température ambiante qui seront utilisées dans la suite de ces travaux (540°C pour la température ambiante).

Combustibles	Température d'ébullition (P=1atm)	Température d'équilibre (P=1atm, T <sub>amb</sub> =540°C)
n-hexadécane	284°C	218,5°C
n-dodécane	214°C	169,5°C
n-décane	184°C	134,5°C
n-heptane	100°C	61,7°C
Isohexane	60°C	36,0°C
Ethanol	78°C	51,4°C

**Tableau 1.2 :** Température d'équilibre du n-hexadécane, n-dodécane, n-décane, n-heptane, isohexane et de l'éthanol pour une température ambiante de 540°C et à pression atmosphérique.



## 2.5. Modélisation des transferts en phase liquide

Bon nombre d'auteurs ont montré l'intérêt de prendre en compte la conduction dans la phase liquide (Bertoli et al. [18]).

Différents modèles plus ou moins complexes permettent de décrire les transferts d'espèces et de chaleur dans la phase liquide.

**Diffusion infinie :** ce modèle repose sur l'hypothèse d'un transfert de chaleur infiniment rapide à l'intérieur de la goutte. Il représente un cas limite pour lequel la durée de vie de la goutte est considérée comme très grande devant le temps caractéristique de diffusion de la chaleur et des espèces en phase liquide. Ainsi la température et la composition de la phase liquide sont uniformes spatialement mais variables dans le temps. Ce modèle très simplifié à l'avantage d'être peu coûteux en temps de calcul. Il est utile afin d'obtenir des ordres de grandeurs sur les phénomènes d'évaporation.

**Diffusion limitée :** développé par Sirignano [19] et Kneer et al. [20], ce modèle suppose qu'il n'y a pas d'échanges convectifs à l'intérieur de la goutte. L'évolution de la composition et de la température au sein de la goutte est purement radiale et est régie par les équations instationnaires de diffusion des espèces et de la chaleur :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha_l \Delta T \quad (1.70)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_l Y_i) = D_{i,l} \Delta(\rho_l Y_i) \quad (1.71)$$

En ce qui concerne la diffusion de la chaleur à l'intérieur de la goutte, l'une des possibilités, afin d'économiser du temps de calcul, notamment par comparaison à la résolution complète de l'équation de la chaleur dans la goutte, consiste à supposer la forme du profil de température à l'intérieur de la goutte, tout en conservant des hypothèses d'axi-symétrie. Dombrowsky et Sazhin [21] ont utilisés une approximation de type parabolique pour la distribution de température sur un rayon de la goutte :

$$T(r, t) = T_c(t) + [T_s(t) - T_c(t)] \left( \frac{r}{R} \right)^2 \quad (1.72)$$

où  $T_c$  désigne la température au centre de la goutte.

Toutefois, cette approximation n'est pas valable au tout début de la phase d'échauffement, car la température demeure dans cette phase très proche de celle du centre.

En ajoutant la condition aux limites à la surface de la goutte :  $h(T_{amb} - T_s) = \lambda_l \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_{r=R}$  (1.73)

et  $Nu = 2Rh/\lambda_g$  (1.74)

il est possible de déduire :  $T_s - T_c = \frac{\zeta}{2}(T_{amb} - T_s)$  (1.75)

$$\text{avec } \zeta = \left( \frac{Nu}{2} \right) (T_{amb} - T_s) \quad (1.76)$$

Le profil de température parabolique de l'équation (1.72) doit satisfaire l'équation du bilan thermique :

$$\rho_l C_{p_l} \frac{R}{3} \frac{d\bar{T}}{dt} = h(T_{amb} - T_s) \quad (1.77)$$

$$\text{où } \bar{T} \text{ est la température moyenne de la goutte définie par : } \bar{T} = \frac{3}{R^3 \int_0^R r^2 T(r) dr} \quad (1.78)$$

avec  $T_{amb}$  température ambiante.

Cette équation est identique à celle utilisée en conduction infinie :

$$\rho_l C_{p_l} \frac{R}{3} \frac{dT_s}{dt} = h(T_{amb} - T_s) \quad (1.79)$$

En remplaçant  $h$  par  $h^*$  construit sur un nombre de Nusselt modifié :

$$Nu^* = Nu \frac{T_{amb} - T_s}{T_{amb} - \bar{T}} \quad (1.80)$$

L'échauffement est calculé à partir du jeu de trois équations [21]:

$$Nu^* = \frac{Nu}{1 + 0.2\zeta} \quad (1.81)$$

$$T_s = \frac{\bar{T} + 0.2\zeta T_{amb}}{1 + 0.2\zeta} \quad (1.82)$$

$$T_c = \frac{(1 + 0.5\zeta)\bar{T} - 0.3\zeta T_{amb}}{1 + 0.2\zeta} \quad (1.83)$$

La résolution s'opère ainsi : l'équation (1.79) est résolue en remplaçant  $h$  par  $h^*$  (équation (1.81)). Les valeurs de  $T_s$  et  $T_c$  peuvent ensuite être obtenues à partir des équations (1.82) et (1.83), ce qui permet d'obtenir la distribution radiale de la température dans la goutte.

Quant à lui, Brereton [22] a développé un modèle à  $n$  composants discrets, prenant en compte la dépendance en température à chaque instant de l'ensemble des paramètres et propriétés physiques, pour des gouttes présentant une symétrie sphérique. L'intérêt du modèle de Brereton est d'être aisément intégrable dans une simulation numérique de type Euler Lagrange pour des écoulements gouttelettes-gaz. Ce modèle est simplifié car les équations aux dérivées partielles décrivant les transferts couplés de chaleur et de masse à l'intérieur de la goutte sont approximées par des équations différentielles ordinaires.

Dans le cadre d'une approche quasi-stationnaire, les équations de transport de la fraction massique d'un composant  $i$  ( $Y_i$ ) et de la température  $T$  sont données par :

$$\begin{aligned}\frac{\partial Y_i}{\partial t} &= \frac{D_{mi}}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial Y_i}{\partial r} \right) \\ \frac{\partial T}{\partial t} &= \frac{D_t}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left( r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right)\end{aligned}\quad (1.84)$$

où  $r$  est la coordonnée radiale à l'intérieur de la goutte et  $D_{i,i}$  et  $\alpha_i$  représentent respectivement la diffusivité massique du composant  $i$  dans le mélange et la diffusivité thermique du mélange.

Les conditions aux limites sont :

Au centre de la goutte ( $r=0$ ) et à la surface ( $R$ ) :

$$\begin{aligned}r = 0: \quad T &= T_c(t) \text{ et } Y_i = Y_{ic}(t) \\ r = R: \quad T &= T_s(t) \text{ et } Y_i = Y_s(t)\end{aligned}\quad (1.85)$$

L'intégration des équations précédentes conduit à des profils paraboliques pour les fractions instantanées de la masse et de la température (Dombrovsky et Sazhin [21] et Dombrovsky et Sazhin [23]).

$$\frac{Y_i - Y_{ic}}{Y_{is} - Y_{ic}} = \left( \frac{r}{R} \right)^2 \quad \text{et} \quad \frac{T - T_c}{T_s - T_c} = \left( \frac{r}{R} \right)^2 \quad (1.86)$$

Cependant ce modèle est limité au cas de l'évaporation quasi-stationnaire, c'est-à-dire à une vitesse d'évaporation relativement lente et pour la phase préliminaire d'évaporation. Néanmoins, en situation réelle d'évaporation, l'échelle de temps liée à la diffusion thermique est 10 fois supérieure à celle liée à la diffusion massique. Ainsi, l'hypothèse quasi-stationnaire pour le champ de concentration à l'intérieur de la goutte n'est en général pas valable. Brereton [22] a ainsi développé un nouveau modèle en modifiant la forme des profils de température et de concentration des espèces à l'intérieur de la goutte, c'est-à-dire en s'écartant de la forme parabolique.

Brereton [22] a suggéré des profils de type :

$$\frac{Y_i - Y_{ic}}{Y_{is} - Y_{ic}} = \left( \frac{r}{R} \right)^{n_i} \quad \text{et} \quad \frac{T - T_c}{T_s - T_c} = \left( \frac{r}{R} \right)^{n_T} \quad (1.87)$$

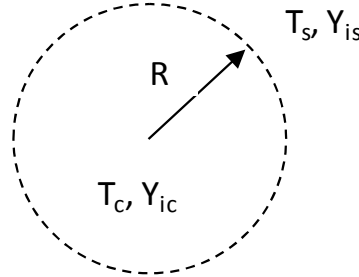
où  $n_i$  et  $n_T$  sont des paramètres définissant les formes des profils de température et de concentration du composant  $i$  à l'intérieur de la goutte, à l'instant  $t$ .

Ces expressions permettent d'exprimer simplement les gradients radiaux de température et de concentration des espèces en fonction des conditions au centre et à la surface de la goutte (température et concentration des espèces) :

$$\left. \frac{\partial Y_i}{\partial r} \right|_s = \frac{n_i}{R} (Y_{is} - Y_{ic}) \quad \text{et} \quad \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_s = \frac{n_T}{R} (T_s - T_c) \quad (1.88)$$

De la même manière, la valeur moyenne volumique de la température et de la fraction des espèces peut être aisément calculée :

$$\bar{Y}_i = \frac{n_i}{3+n_i} Y_{ic} + \frac{3}{3+n_i} Y_{is} \quad \text{et} \quad \bar{T} = \frac{n_T}{3+n_T} T_c + \frac{3}{3+n_T} T_s \quad (1.89)$$



**Figure 1.7 :** Définition des paramètres du modèle de Brereton [22].

Les gradients instantanés de concentrations des espèces et de température peuvent ainsi être calculés par combinaison linéaires des valeurs moyennes volumiques  $\bar{Y}_i$  et  $\bar{T}$  :

$$\left. \frac{\partial Y_i}{\partial r} \right|_s = \frac{3+n_i}{R} (Y_{is} - \bar{Y}_i) \quad \text{et} \quad \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_s = \frac{3+n_T}{R} (T_s - \bar{T}) \quad (1.90)$$

L'intérêt majeur du modèle proposé par Brereton [22] est que la résolution est reportée sur la détermination des quantités moyennes  $\bar{Y}_i$  et  $\bar{T}$ , qui permet ensuite de déduire les gradients de concentration des espèces et de température à l'intérieur de la goutte.

Ainsi, le modèle est basé sur un système d'équation de conservation appliqué sur un volume de contrôle sphérique de rayon instantané  $R$  :

$$4\pi R^2 \rho_l \dot{R} = \frac{d}{dt} (\rho_l \bar{V})$$

$$4\pi R^2 \left[ \lambda_l \left. \frac{\partial T}{\partial r} \right|_s + \underbrace{\rho_l \dot{R} C_{p_l} T_s}_{\text{perte d'enthalpie bulk due à l'évaporation}} + \underbrace{\sum_i D_{mi} \left. \frac{\partial Y_i}{\partial r} \right|_s \rho_l C_{p_{li}} T_s}_{\text{couplage diffusion de masse et diffusion de la chaleur}} \right] = \frac{d}{dt} (\rho_l \bar{V} C_{p_l} \bar{T}) \quad (1.91)$$

$$4\pi R^2 \left[ \rho_l D_{mi} \left. \frac{\partial Y_i}{\partial r} \right|_s + \underbrace{\rho_l \dot{R} Y_i}_{\text{perte}} \right] = \frac{d}{dt} (\rho_l \bar{V} \bar{Y}_i) \quad (i \text{ équations de ce type})$$

avec :  $\bar{V} = \frac{4}{3} \pi R^3$ ,  $\bar{T}$  la température moyenne volumique et  $\bar{Y}_i$  la fraction massique moyennée sur la volume de la goutte.

En combinant les équations (1.88), (1.89), (1.90) et le système (1.91), il est possible de déduire un système d'équations différentielles ordinaires décrivant respectivement l'évolution

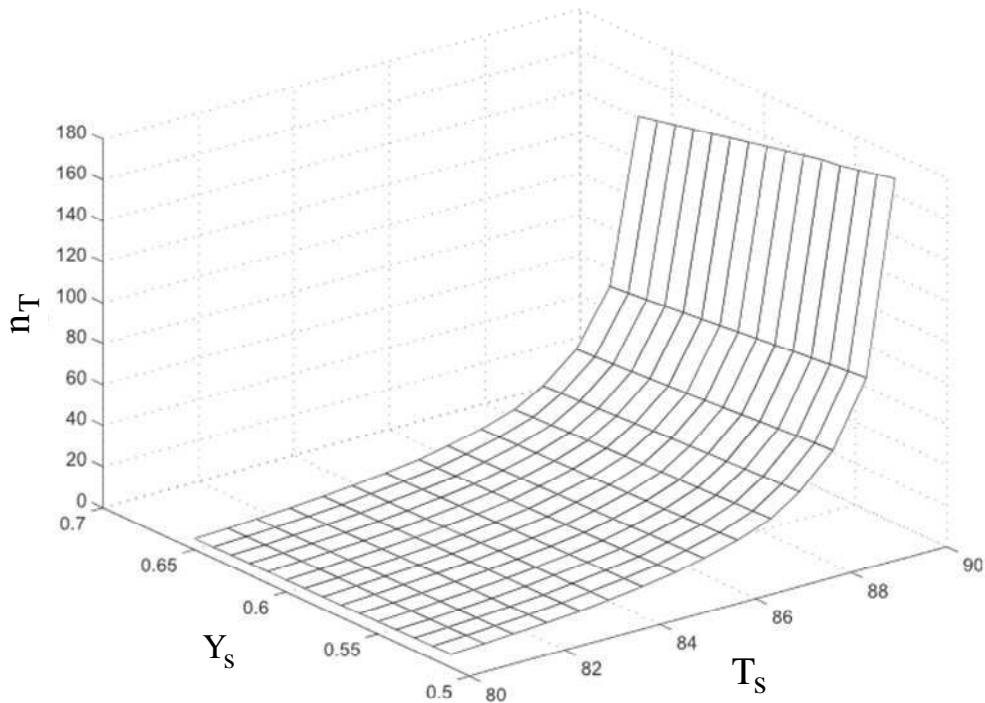
du rayon de la goutte, de la température moyenne volumique  $\bar{T}$  et de la fraction massique moyennée sur le volume de la goutte  $\bar{Y}_i$  :

$$\begin{aligned} \frac{dR}{dt} &= \dot{R} \\ \frac{d\bar{T}}{dt} &= \left[ \frac{3(3+n_T)\lambda_l}{\rho_l C_{p_l} R^2} + \frac{3\dot{R}}{R} \right] [T_s - \bar{T}] + \frac{3T_s}{C_{p_l} R^2} \sum_i (3+n_i) D_{mi} C_{p_{li}} [Y_{is} - \bar{Y}_i] \\ \frac{d\bar{Y}_i}{dt} &= \left[ \frac{3(3+n_i)D_{mi}}{R^2} + \frac{3\dot{R}}{R} \right] [Y_{is} - \bar{Y}_i] \quad (i \text{ équations de ce type}) \end{aligned} \quad (1.92)$$

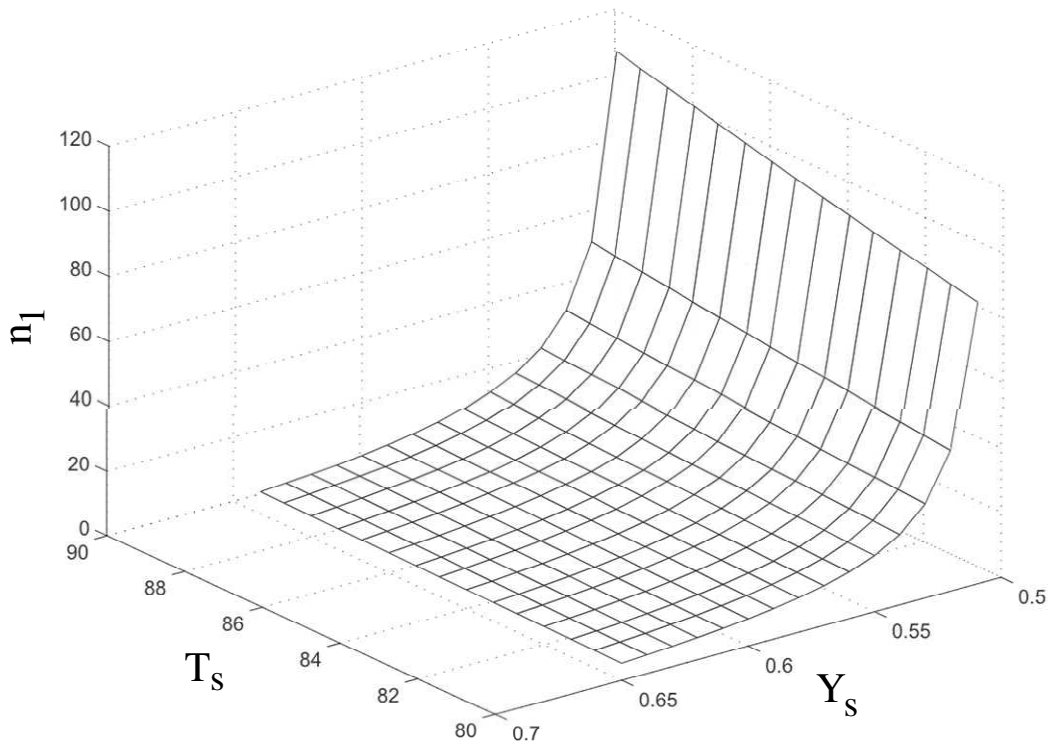
Lorsque le combustible est un mélange de  $k$  composants, afin de résoudre le problème, il est nécessaire d'ajouter  $k-1$  équations pour les fractions massiques :

$$\sum_{i=1}^k \bar{Y}_i = \sum_{i=1}^k Y_{is} = 1 \quad (1.93)$$

La Figure 1.8 représente l'évolution des paramètres définissant la forme des profils de température et de fraction des espèces à l'intérieur de la goutte, respectivement  $n_T$  et  $n_i$ , dans le cas de l'évaporation d'une goutte d'iso-octane de 20 $\mu$ m de diamètre (injectée à 90°C dans de l'air à une température de 120°C et à une pression de 2,64 bars) en fonction de la température de surface  $T_s$  et de la fraction massique des espèces en surface  $Y_{is}$ .



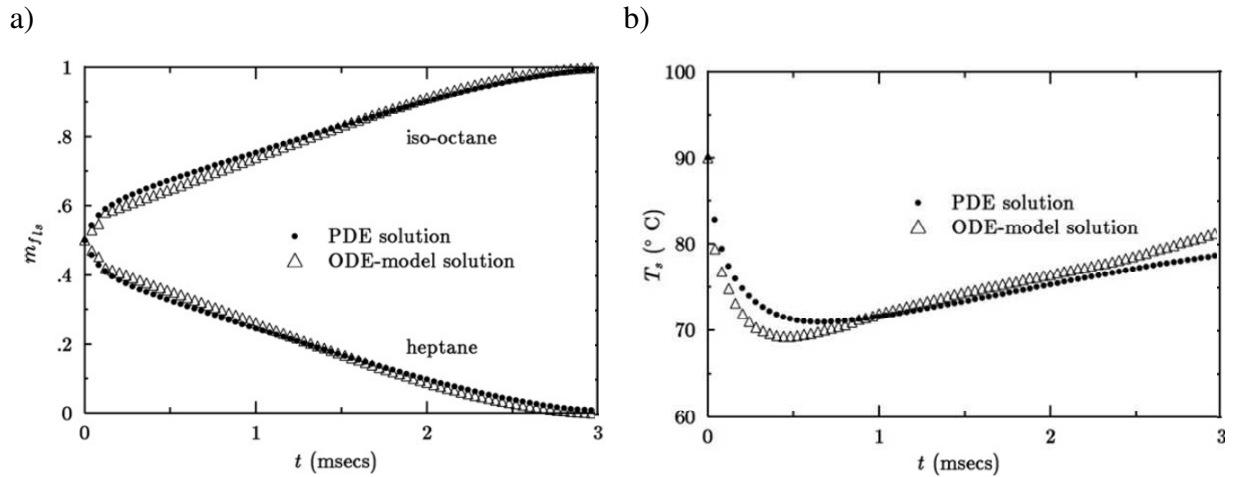
a)



b)

**Figure 1.8 :** Evolution du paramètre  $n_T$  définissant la forme des profils de température a) et de fraction massique d'iso-octane  $n_I$  b) à l'intérieur de la goutte dans le cas de l'évaporation d'une goutte de  $20\mu\text{m}$  de diamètre de même fraction massique d'iso-octane et d'heptane en fonction de la température de surface  $T_s$  et de la fraction massique des espèces en surface  $Y_{is}$ .

Brereton a montré que ce type de modèle simplifié permettait d'éviter une résolution des équations de transport à l'intérieur de la goutte ce qui permet d'atteindre des temps de calcul trois cent fois inférieurs par rapport au modèle détaillé consistant à résoudre complètement les équations de transport dans la goutte, alors que l'erreur commise du fait de l'approximation n'est que de quelques degrés sur la température de surface et de quelques pourcents sur la fraction des espèces. A titre d'illustration (Figure 1.9) le modèle simplifié (ODE) est comparé à la résolution complète des équations de transport (PDE) dans la goutte, dans le cas d'une goutte immobile composée d'un mélange d'iso-octane et de n-heptane (goutte de  $20\mu\text{m}$  de diamètre, injectée dans de l'air à une température de  $120^\circ\text{C}$  et une pression de 2,64 bars).



**Figure 1.9 :** gouttes de  $20\mu\text{m}$  en évaporation, injectée initialement à  $90^\circ\text{C}$  dans de l'air à  $120^\circ\text{C}$  a) température de surface  $T_s$  b) fraction massique de surface  $Y_{is}$ .

### Prise en compte de la convection à l'intérieur de la goutte

Les modèles décrits précédemment permettent de décrire la phase d'échauffement des gouttes dans un spray ainsi que le transport des espèces hors équilibre, en ne prenant en compte que les phénomènes diffusifs purs, mais ils ne prennent pas en compte la convection à l'intérieur de la goutte. En effet, pour des gouttes en mouvement, le cisaillement à l'interface entre la goutte et l'air ambiant peut-être suffisamment important pour générer une recirculation du fluide de la surface vers l'intérieur de la goutte et donc conduire à une advection de la chaleur ou d'espèces chimiques. Ceci a pour effet d'accélérer l'échauffement de la goutte et par conséquent son évaporation ou encore d'accélérer le transport des espèces. Pour décrire ce comportement, d'autres modèles sont proposés afin de décrire les transferts de chaleur et de masse à l'intérieur de la goutte.

**Vortex de Hill :** ce modèle, qui a été développé par Prakash et Sirignano [14] et [24], se veut assez proche de la réalité en modélisant les cellules de convection à l'intérieur de la goutte. En effet, les frottements s'appliquant symétriquement à la surface de la goutte induisent un champ de vitesse interne à la goutte qui présente par conséquent une symétrie axiale. Le problème est 2D axisymétrique en coordonnées polaires suivant  $r$  et  $\theta$ , la modélisation du profil de vitesse interne à la goutte se fait grâce aux équations suivantes :

$$V_r = U_s \left( 1 - \frac{r^2}{R^2} \right) \cos(\theta) \quad (1.94)$$

$$V_\theta = -U_s \left( 1 - 2 \frac{r^2}{R^2} \right) \sin(\theta) \quad (1.95)$$

où  $V_r$  représente la composante radiale de la vitesse,  $V_\theta$  la composante orthoradiale et  $U_s$  la vitesse surfacique maximale du liquide définit suivant :

$$U_s = \frac{\mu_g}{\mu_l} \frac{\|V_\infty - V_g\| \text{Re}_{ref}}{32} C_F \quad (1.96)$$

avec  $\text{Re}_{ref} = \frac{\rho_{amb}(V_\infty - V_g)D}{\mu_{ref}}$ , la viscosité cinématique  $\mu_{ref}$  s'exprimant dans les conditions de référence au paragraphe 2.1.

Le coefficient de frottement  $C_F$  est basé sur celui d'une sphère solide [25]  $C_F=12,69/Re^{2/3}$  et sur les travaux de Renksizbulut et Yuen [26] lorsque l'effet de l'évaporation est pris en considération. Ces auteurs ont montré que l'écoulement de Stephan diminuait la force de traînée d'un facteur  $(1+B_M)$ . Ainsi, Abramzon et Sirignano [15] recommande de diminuer le coefficient de frottement du fait du soufflage de la couche limite par l'écoulement de Stefan:

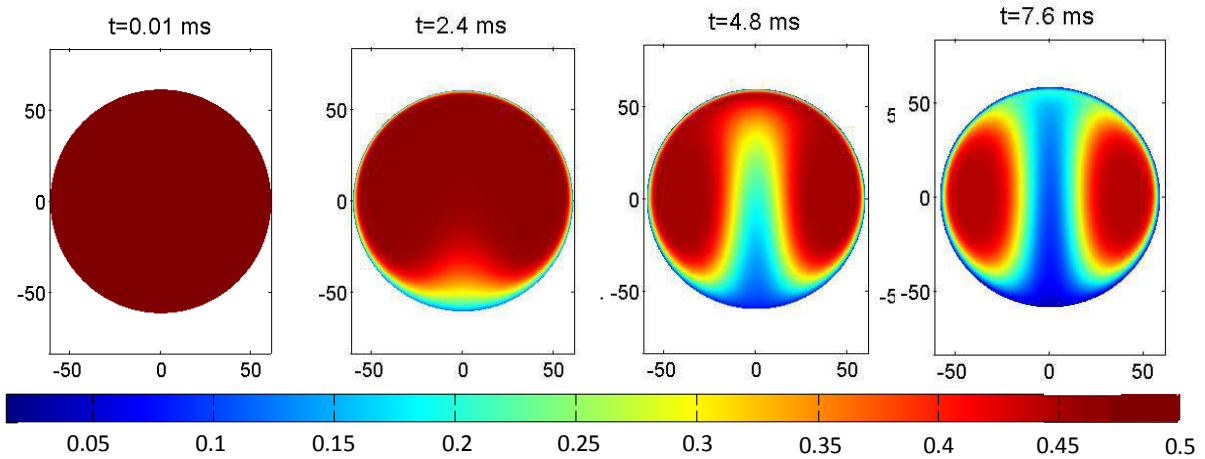
$$C_F = \frac{k}{\text{Re}_{ref}^{2/3}(1+B_M)} \quad (1.97)$$

La valeur de  $k$  est égale à 12,69 (Abramzon et Sirignano [15]) pour une goutte isolée en évaporation mais se trouve réduite de manière significative pour des gouttes en interaction comme dans le cas d'un train de gouttes monodisperse (Castanet [27]).

Dans le cas du vortex de Hill, seule la convection interne liée à la vitesse relative de la goutte par rapport à la phase gazeuse est prise en compte. Ce modèle supposant l'homogénéité de la composition et de la température à la surface de la goutte, l'effet de contraintes surfaciques supplémentaires liées à une différence de température ou de composition en surface étant négligé (effet Marangoni).

La Figure 1.10 illustre le modèle du vortex de Hill pour la diffusion d'espèces, dans le cas d'une goutte bicomposant: elle présente l'évolution temporelle de la composition d'une goutte d'un mélange isohehexane/n-dodécane initialement en proportion isovolumique et homogène spatialement, injectée verticalement à une vitesse de 12 m.s<sup>-1</sup>. L'isohehexane plus volatile que le n-dodécane s'évapore rapidement et avec un fort taux d'évaporation. Ainsi la surface s'enrichit en n-dodécane et commence à entrer en mouvement sous l'effet des frottements de l'air. Ici, en quelques millisecondes, le n-dodécane présent à la surface pénètre au centre de la goutte pour rejoindre le bord supérieur puis recirculer à la surface. Des vortex axisymétriques sont ainsi générés dans la goutte, l'isohehexane (composant le plus volatile du mélange) se retrouvant piégé à l'intérieur de ceux-ci.





**Figure 1.10 :** Evolution temporelle de la distribution de la fraction volumique d'isohexane d'une goutte se déplaçant verticalement vers le haut et constituée d'un mélange isohexane-dodécane ( $T_0=28^\circ\text{C}$ ,  $V_0=12\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ,  $D_0=123\mu\text{m}$ ,  $C_0=7,8$ ).

### Influences relatives de la convection et de la diffusion

Le nombre de Péclet est caractéristique de l'importance relative de la convection par rapport à la diffusion.

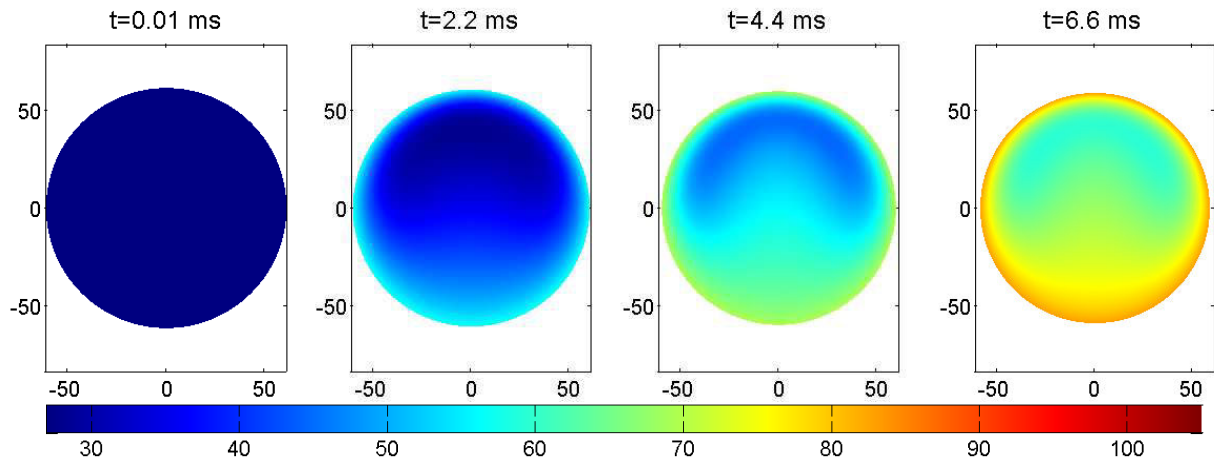
Dans le cas de la diffusion massique, on définit :

$$\text{Le nombre de Péclet massique : } Pe_M = \frac{U_s D_g}{D} \quad (1.98)$$

$$\text{Le nombre de Péclet thermique : } Pe_T = \frac{U_s D_g}{\alpha} \quad (1.99)$$

où  $U_s$  est la vitesse surfacique maximum définie dans le cadre du modèle du vortex de Hill défini par la relation (1.96).

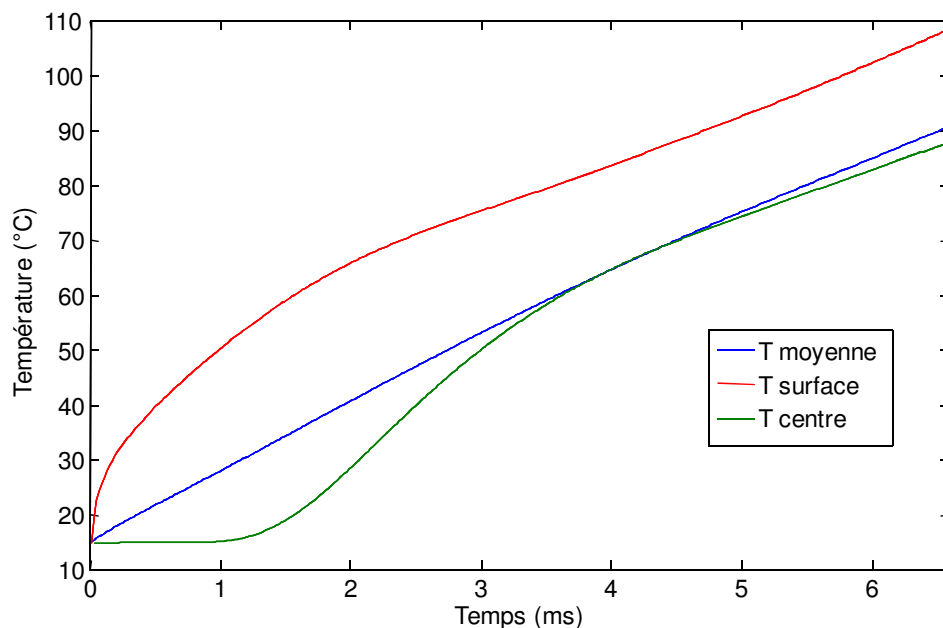
Dans le cadre des expériences qui seront réalisées au cours de ce travail, le nombre de Péclet massique est élevé (de l'ordre du millier) tandis que le nombre de Péclet thermique est plus faible et varie entre 10 et 100. En conséquence, si des cellules de convection sont clairement visibles pour le champ de composition, une forme intermédiaire entre champ purement diffusif et un champ de convection décrit par un modèle à vortex de Hill peut-être observée. A titre d'exemple, la Figure 1.11 présente le champ de température à l'intérieur d'une goutte, dans le cas d'un mélange isohexane-dodécane injectée à  $28^\circ\text{C}$ , verticalement à une vitesse de  $12\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , dans une ambiance à  $550^\circ\text{C}$ . Ce comportement hybride entre convection et diffusion peut être relevé en dépit d'un nombre de Péclet thermique élevé ( $Pe_T=439$ ).



**Figure 1.11 :** Evolution temporelle de la température pour une goutte se déplaçant verticalement vers le haut et composée d'un mélange isohehexane-dodécane ( $T_0=28^\circ\text{C}$ ,  $V_0=12\text{m.s}^{-1}$ ,  $D_0=123\mu\text{m}$ ,  $C_0=7,8$ ,  $Pe_T=439$ ).

Comme observé sur la Figure 1.11, la chaleur semble diffuser de manière radiale dans une phase initiale ; dans une seconde phase, la forme du champ de température est modifiée par l'effet des recirculations internes. Toutefois, l'effet de la convection sur le champ de composition est différent comparativement à celui sur le champ de température.

La présence de convection à l'intérieur de la goutte modifie fortement l'allure du champ de température. En effet, le liquide présent sur la surface en mouvement transporte la chaleur vers l'intérieur de la goutte. Ainsi, comme il est observé sur la Figure 1.12, la température au centre de la goutte évolue rapidement et rejoint la température moyenne. Ceci constitue une différence majeure par rapport aux modèles où seule la diffusion est prise en compte.



**Figure 1.12 :** Evolution des températures caractéristiques de la goutte lorsque le modèle du vortex de Hill est utilisé.

Les recirculations internes peuvent aussi être générées par des gradients de tension superficielle du fait des variations de température ou de concentration à l'interface entre la phase liquide et l'air ambiant. Cette convection thermocapillaire est appelée effet Marangoni et peut avoir un effet supplémentaire non négligeable comme l'ont démontré Niazmand et al. [28] pour une goutte isolée. Ces auteurs ont comparé numériquement la prise en compte ou non de l'effet Marangoni sur les recirculations internes. En particulier, ces auteurs ont montré qu'au début de l'évaporation, le bord d'attaque devenant plus chaud que le bord de fuite, l'effet Marangoni accélère la recirculation de la surface. Le champ de température à la surface s'inverse alors plus rapidement à cause de ce phénomène, la température du bord de fuite devenant plus importante. Ceci a pour effet de générer un effet Marangoni inverse ralentissant ainsi la vitesse de surface.

Plus récemment et dans le cas d'un jet de gouttes monodisperse, Frackowiak et al. [29] ont montré, par simulation numérique directe, que pour des gouttes injectées à la température ambiante, le champ de température interne est gouverné par les forces de frottement et présente une forme similaire au vortex de Hill. En revanche, pour des gouttes injectées dans un milieu de température différente, la force de Marangoni peut devenir prépondérante par rapport aux forces visqueuses, contrôlant ainsi la convection et affectant fortement le champ de température. Ainsi, pour des gouttes d'acétone en refroidissement et en interaction, ces auteurs ont pu observer la formation de trois vortex à l'intérieur d'une goutte d'acétone injectée à 46°C dans un milieu dont la température ambiante est de 22°C.

A partir de la détermination expérimentale du champ de température interne de gouttes en interaction et après confrontation à la simulation numérique directe, Castanet et al. ([27] et [30]) ont montré que la contrainte interfaciale supplémentaire induite par l'effet Marangoni avait une importance significative pour des nombres de Péclet de l'ordre de 50, notamment en réduisant la contrainte interfaciale durant la phase transitoire d'échauffement et ainsi en diminuant l'intensité de la recirculation interne.

### **Diffusion effective**

La convection à l'intérieur de la goutte dépend de nombreux paramètres tels que la vitesse relative par rapport à la phase gazeuse, la température de la goutte, ainsi que les propriétés physiques de la phase liquide et gazeuse. Ainsi, la possibilité de formation de cellules de convection à l'intérieur d'une goutte dépend de l'ensemble de ces paramètres. Devant la complexité des phénomènes mis en jeu et afin de réduire considérablement les temps de calcul, le modèle à diffusion effective prenant en compte la convection de manière simplifiée est utilisé dans la plupart des études et sera utilisé dans la suite de ce travail.

Le modèle de diffusion effective constitue une extension du modèle de la diffusion limitée et permet une prise en compte des phénomènes convectifs de manière empirique en conservant une symétrie sphérique des transferts. Abramzon et Sirignano [15] ont conçu ce modèle afin d'obtenir des résultats identiques sur les grandeurs moyennes à ceux calculés par le modèle du Vortex de Hill. Dans ce cas, seule la convection liée au déplacement de la goutte est directement prise en compte, l'effet Marangoni étant également négligé. La convection à

l'intérieur de la goutte est prise en compte indirectement en corrigeant les coefficients de diffusion des espèces  $D_{i,l}$  et de la chaleur  $\alpha_l$ . Ainsi, ce modèle utilise les mêmes équations qu'en diffusion limitée mais avec la formulation des diffusivités suivantes :

$$D_{i,l,eff} = \chi_T D_{i,l} \quad (1.100)$$

$$\alpha_{l,eff} = \chi_T \alpha_l \quad (1.101)$$

$D_{i,l,eff}$  et  $\alpha_{l,eff}$  étant les coefficients de diffusion dits "effectifs" avec :

$$\begin{aligned} \chi_{y_i} &= 1,86 + 0,86 \tanh \left( 2,225 \log \left( \frac{Re_l Sc_{i,l}}{30} \right) \right) \\ \chi_T &= 1,86 + 0,86 \tanh \left( 2,225 \log \left( \frac{Re_l Pr_l}{30} \right) \right) \end{aligned} \quad (1.102)$$

Les nombres de Reynolds  $Re_l$ , de Schmidt  $Sc_{i,l}$  et de Prandtl  $Pr_l$  sont définis pour la phase liquide comme suit :

$$\begin{aligned} Re_l &= \frac{2\rho_l U_s R}{\mu_l} \\ Sc_{i,l} &= \frac{\mu_l}{\rho_l D_{i,l}} \\ Pr_l &= \frac{\mu_l C_{p_l}}{\lambda_l} \end{aligned} \quad (1.103)$$

Dans l'expression du nombre de Reynolds,  $U_s$  représente la vitesse tangentielle maximale du liquide à la surface de la goutte définie en (1.96).

Le modèle de diffusion effective est le plus couramment utilisé car il représente un bon compromis entre temps de calcul et pertinence de la modélisation des transferts à l'intérieur de la goutte. En revanche, le modèle de diffusion effective ainsi que celui du Vortex de Hill ne sont applicables qu'à un nombre limité de composants. D'autres modèles existent afin de prendre en compte un nombre plus importants de composants.

## 2.6. Calcul des propriétés physiques en phase liquide et gazeuse

### 2.6.1. Cas des combustibles monocomposant

Le cadre de ce travail se limitant au cas isobare à la pression atmosphérique, les grandeurs physiques des combustibles dans le cas de combustibles monocomposant ne dépend que de la température pour la phase liquide mais aussi de la composition pour le combustible en phase gazeuse, la vapeur des différents composants étant mélangée à l'air ambiant. En conséquence les propriétés de la phase gazeuse seront évaluées dans la couche de vapeur entourant la goutte. Afin de simplifier la modélisation en phase gazeuse, les propriétés seront calculées

suivant les conditions de référence définies au paragraphe 2.1 qui déterminent la température et la composition du milieu suivant la loi du 1/3.

Afin de parvenir à calculer ces propriétés pour les deux phases, plusieurs bases de données ont été utilisées telles que l'ouvrage "The properties of Gases and Liquids" [31], le site internet du NIST (Chemical webbook of the National Institute of Standards and Technology) et la thèse de Doué [32]. L'ensemble des propriétés physiques de chaque combustible est répertorié en annexes 1.

### 2.6.2. Cas des combustibles multi-composant : loi de mélange

Dans le cas de mélange multicomposant, il devient nécessaire d'utiliser des lois de mélange afin de calculer les propriétés physiques des phases gazeuse et liquide en tenant compte de la composition.

#### Phase gazeuse

Propriétés physiques	Unités	Loi de mélange	Référence éventuelle
Capacité calorifique $Cp_v$	$J.Kg^{-1}.K^{-1}$	$Cp_v = \sum_i Y_i Cp_i$	
Masse volumique $\rho_v$	$Kg.m^{-3}$	$\rho_v = \left( \sum_i \frac{Y_i}{\rho_i} \right)^{-1}$	
Conductivité thermique $\lambda_v$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	$\lambda_v = \sum_i \frac{x_i \lambda_i}{\sum_j x_j A_{ij}}$ <p>avec</p> $A_{ij} = \frac{\left( 1 + (M_i \mu_i / (M_j \mu_j)) \right)^{1/2} (M_i / M_j)^{1/4}}{\left( 8(1 + M_i / M_j) \right)^{1/2}}$	Wassiljewa [33]
Viscosité dynamique $\mu_v$	$Pa.s$	$\mu_v = \sum_i \frac{x_i \mu_i}{\sum_j x_j A_{ij}}$ <p>avec</p> $A_{ij} = \frac{\left( 1 + (M_i \mu_i / (M_j \mu_j)) \right)^{1/2} (M_i / M_j)^{1/4}}{\left( 8(1 + M_i / M_j) \right)^{1/2}}$	Wilke [34]

Diffusivité moléculaire $D_v$	$cm^2.s^{-1}$	$D_{AB} = \frac{[3,03 - (0,98 / M_{AB}^{1/2})](10^{-3})T^{3/2}}{PM_{AB}^{1/2}\sigma_{AB}^{1/2}\Omega_D}$ <p>avec <math>M_{AB} = 2[(1/M_A) + (1/M_B)]^{-1}</math> et</p> $\sigma_{AB} = \frac{\sigma_A + \sigma_B}{2}$ avec $\sigma = 1,18V_b^{1/3}$ et $\Omega_D = \left\{ \begin{array}{l} \frac{A}{(T^*)^B} + \frac{C}{\exp(DT^*)} + \frac{E}{\exp(FT^*)} \\ + \frac{G}{\exp(HT^*)^B} \end{array} \right.$ <p>avec <math>T^* = \frac{kT}{\epsilon_{AB}}</math> avec <math>\left\{ \begin{array}{l} \epsilon_{AB} = (\epsilon_A \epsilon_B)^{1/2} \\ \frac{\epsilon}{k} = 1,15T_b \end{array} \right.</math> et</p> $\left\{ \begin{array}{l} A = 1,06036 \quad B = 0,15610 \quad C = 0,19300 \\ D = 0,47635 \quad E = 1,03587 \quad F = 1,52996 \\ G = 1,76474 \quad H = 3,89411 \end{array} \right.$	Wilke et Lee [31]
-------------------------------	---------------	---	-------------------

**Tableau 1.3 :** Lois de mélange utilisées pour la modélisation dans le cas de combustibles multicomposant pour la phase gazeuse avec  $Y_i$  la fraction massique et  $x_i$  la fraction molaire de l'espèce gazeuse.

### Phase liquide

Propriétés physiques	Unités	Loi de mélange	Référence
Capacité calorifique $C_{p,l,m}$	$J.Kg^{-1}.K^{-1}$	$C_{p,m} = \sum_i Y_i C_{p,i}$	
Masse volumique $\rho_{l,m}$	$Kg.m^{-3}$	$\rho_m = \left( \sum_i \frac{Y_i}{\rho_i} \right)^{-1}$	
Conductivité thermique $\lambda_{l,m}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	$\lambda_m = \sum_i \sum_j \phi_i \phi_j \lambda_{ij}$ <p>avec <math>\lambda_{ij} = 2(\lambda_i^{-1} + \lambda_j^{-1})^{-1}</math> et</p> $\phi_i = \frac{x_i V_i}{\sum_j x_j V_j}$	Li [31]
Viscosité dynamique $\nu_{l,m}$	$Pa.s$	$\ln(\mu_m) = \sum_i x_{i,l} \ln(\mu_{i,l})$	Grundberg et al. [35] et [36]

Diffusivité moléculaire $D_{l,m}$	$cm^2.s^{-1}$	$D_{AB} = \frac{(\mu_B D_{AB}^0)^{x_B} (\mu_A D_{BA}^0)^{x_A}}{\mu_m}$ <p>avec <math>D_{AB}^0 = \frac{K' T}{\mu_B V_{bA}^{1/3}}</math></p> <p><math>K' = 17,5.10^{-8}</math> si <math>V_{bA} &lt; 2,5V_{bB}</math></p> <p><math>K' = 8,2.10^{-8} \left( 1 + \left( 3 \frac{V_{bB}}{V_{bA}} \right)^{2/3} \right)</math> sinon</p>	Scheibel [37]
-----------------------------------	---------------	---	---------------

**Tableau 1.4 :** Lois de mélange utilisées pour la modélisation dans le cas de combustibles multicomposant pour la phase liquide avec  $Y_i$  la fraction massique et  $x_i$  la fraction molaire de l'espèce liquide.

## 2.7. Prise en compte des interactions aérodynamiques

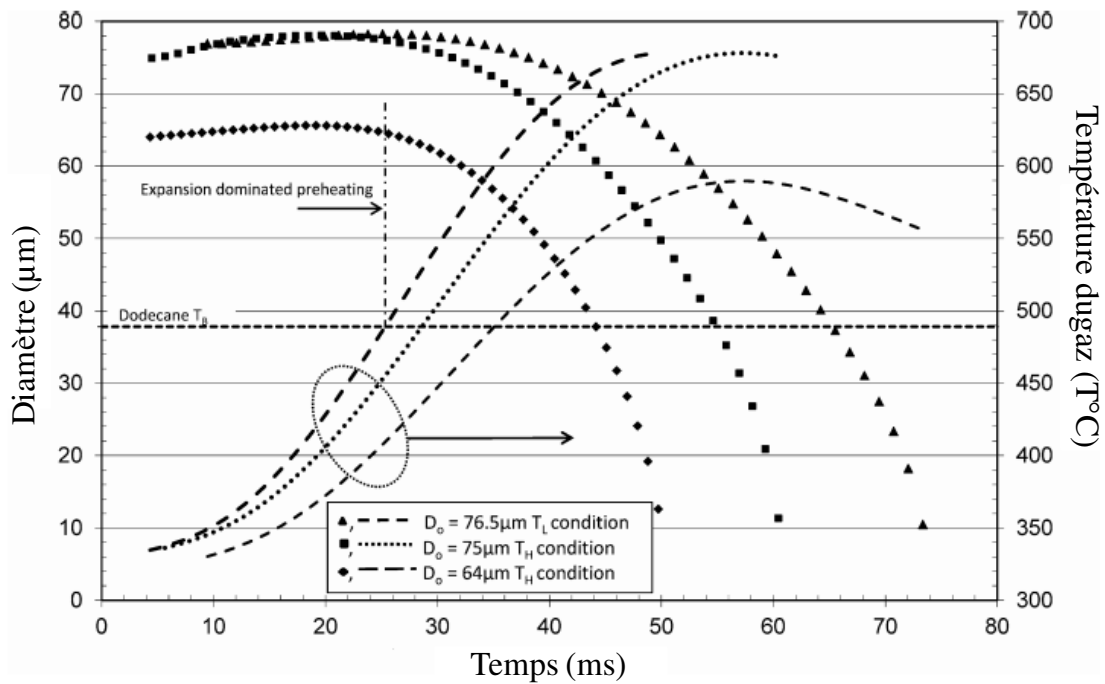
Généralement, peu d'expériences concernant le comportement de la goutte isolée en évaporation sont disponibles dans la littérature. Un exemple récent concerne les travaux de Honnery et al. [38] qui ont développé une expérience de goutte isolée injectée dans un gaz à haute température (température maximum comprise entre 550 K et 670 K). L'intérêt de cette expérience est de pouvoir suivre la goutte pratiquement tout au long de sa vie, le temps d'observation étant de l'ordre de 50 ms. La goutte est générée par un système piézoélectrique contrôlée (diamètres initiaux compris entre 60  $\mu m$  et 75  $\mu m$ ) puis lâchée dans une enceinte de grande dimension chauffée à l'aide d'un brûleur à gaz. La faible vitesse de chute conduit à des conditions d'écoulement à la limite entre la convection naturelle et la convection forcée.

L'évolution du diamètre et de la vitesse est mesurée le long de la trajectoire par PIV micro-holographique, ce qui offre l'avantage de pouvoir localiser la goutte de manière continue sur sa trajectoire.

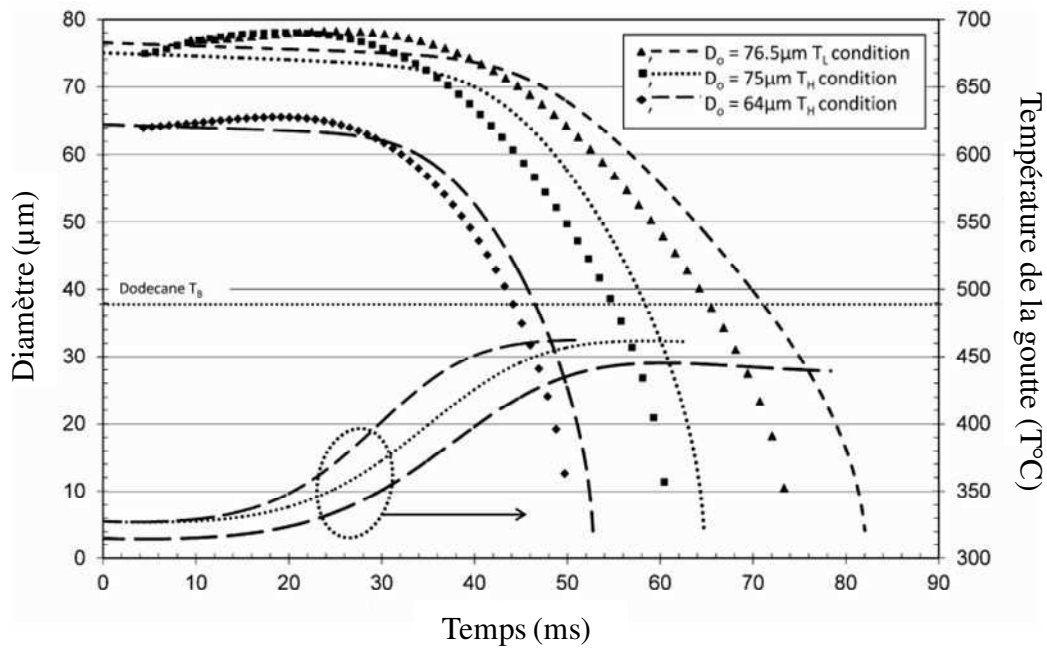
Plusieurs combustibles ont été testés (n-nonane, n-décane, n-dodécane), ainsi que deux diamètres de goutte initiaux (64  $\mu m$  et 75  $\mu m$ ). Les mesures sont comparées à une simulation numérique en utilisant le modèle d'Abramzon et Sirignano [15] basé sur la théorie du film. La simulation est menée à l'aide du modèle de conduction infinie, l'accent n'étant pas mis sur la phase transitoire d'échauffement.

Comme le montre la Figure 1.13-a (cas du n-dodécane), la phase de préchauffage de la goutte est dominée par une dilatation du diamètre due au phénomène d'expansion thermique, une phase transitoire correspondant à un taux d'évaporation qui s'accroît (en lien avec l'accroissement de la température de la phase gazeuse imposée) et ensuite une troisième phase d'évaporation établie (évaporation quasi-stationnaire). La Figure 1.13-b compare les résultats expérimentaux aux simulations numériques ; la température des gouttes simulée est également portée sur la figure (en fonction de la température de la phase gazeuse). Il apparaît que la

troisième phase, correspondant à l'évaporation quasi-stationnaire apparaît correctement simulée, avec des écarts n'excédant pas 10% sur le temps de vie total de la goutte.



a)



b)

**Figure 1.13-a:** Evolution temporelle du diamètre d'une goutte de n-dodécane et de la température ambiante associée pour trois différents cas, en **-b** comparaison entre l'évolution temporelle du diamètre d'une goutte de dodécane simulée et expérimentale pour trois différents cas. L'évolution de la température moyenne des gouttes est aussi superposée pour les différents cas.



En revanche, bien que ce domaine demeure très complexe, davantage de travaux existent dans la littérature pour des gouttes non isolées aérodynamiquement, dites « en interaction ».

La modélisation des interactions entre gouttes à l'intérieur d'un spray reste un véritable défi à l'heure actuelle étant donné la complexité des phénomènes physiques mis en jeu. D'une part, la nature poly-disperse d'un spray (taille et distance entre gouttes) et d'autre part les différences de vitesses et de trajectoires de chacune des gouttes ne permettent pas d'isoler les différents paramètres qui influencent l'évaporation. De plus des phénomènes de coalescence peuvent apparaître dans les zones denses de spray. Pour ces raisons, les études se portent sur une configuration plus simple telle que le train de gouttes monodisperse. Dans ce cas, les gouttes sont parfaitement calibrées et présentent toute, à une position donnée, la même histoire, ainsi donc le même diamètre, la même vitesse, le même écartement avec leurs voisines, la même température et les mêmes propriétés physiques.

Lorsque des gouttes sont dites en interactions, leur comportement en terme dynamique et de transfert de chaleur et de masse s'éloigne de celui d'une goutte isolée. En particulier, plus l'écartement entre gouttes est faible, plus leur taux d'évaporation diminue. En effet la vapeur dégagée par une goutte va modifier le champ de vapeur de la goutte suiveuse ; ainsi le milieu entourant celle-ci sera plus riche en vapeur, ce qui aura pour conséquence une diminution du flux de matière entre la phase liquide et la phase gazeuse. Afin de caractériser ces interactions dans le cas d'un train de gouttes monodisperse, le paramètre de distance  $C$  défini comme étant le rapport de la distance entre gouttes noté  $L$  et diamètre  $D$  est introduit :

$$C=L/D \quad (1.104)$$

Le modèle de la goutte isolée en évaporation sert en général de référence. Il est considéré que pour des gouttes en interaction, un facteur  $\eta$  permet de tenir compte de la réduction des transferts de masse et de chaleur par rapport au cas de la goutte isolée:

$$\begin{aligned} Nu &= \eta_T(C)Nu_{iso} \\ Sh &= \eta_M(C)Sh_{iso} \end{aligned} \quad (1.105)$$

$\eta_T$  se référant au transfert de chaleur et  $\eta_M$  au transfert de masse.

Les études expérimentales de Sangiovanni et Labowsky [39], Labowsky [40], Marberry [41] constituent des travaux pionniers au regard de l'influence du paramètre de distance. Des corrélations ont été formulées numériquement dans le cas de deux et trois gouttes alignés en évaporation par Chiang et Sirignano [42]. Ils ont démontré que la goutte de tête a tendance à se comporter comme une goutte isolée au regard des transferts de chaleur et de masse mais aussi pour la traînée aérodynamique. Par ailleurs, cette étude numérique montre que les interactions entre gouttes non voisines ont une influence sur les transferts de chaleur même si elles restent difficiles à interpréter.

Virepinte et al. [43] ont étudié le cas d'un jet monodisperse vertical ascendant de gouttes d'éthanol en combustion, la combustion résultant de la vapeur produite par l'évaporation des gouttes. Le paramètre de correction pour décrire la réduction du transfert de masse peut s'écrire :

$$\eta_M(C) = \frac{Sh}{Sh_{iso}} = 1 - 0,42 \left( 1 - \frac{e^{-0,19(C-5)} - e^{-0,6(C-5)}}{e^{-0,19(C-5)} + e^{-0,6(C-5)}} \right) \quad (1.106) \quad \text{pour } C > 2 \text{ et } 5 < Re < 55$$

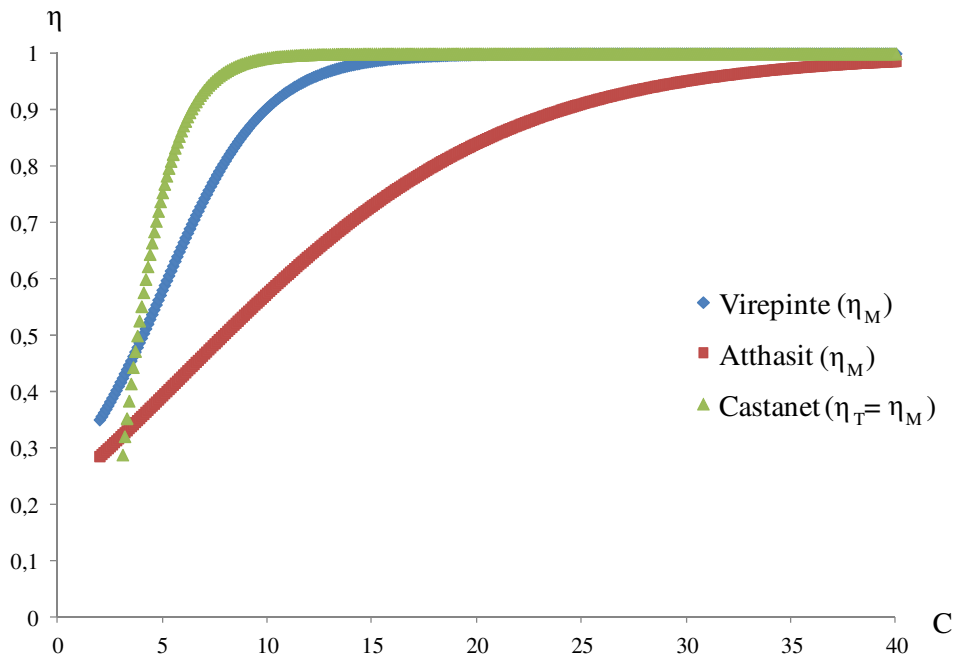
Castanet [44] a effectué une étude complète pour la même configuration et propose une correction simultanée des nombres de Nusselt et de Sherwood du type :

$$\eta(C) = \frac{Nu}{Nu_{iso}} = \frac{Sh}{Sh_{iso}} = \tanh(0,36C - 0,82) \quad (1.107) \quad \text{pour } 2 < C < 16 \text{ et } 12 < Re < 25$$

Dans le cas de l'évaporation pure, Atthasit [45] a étudié un jet monodisperse constitué aussi de gouttes d'éthanol et a obtenu une correction du nombre de Sherwood de la forme :

$$\eta_M(C) = \frac{Sh}{Sh_{iso}} = 1 - 0,57 \left( 1 - \frac{1 - e^{-0,13(C-6)}}{1 + e^{-0,13(C-6)}} \right) \quad (1.108) \quad \text{pour } 2 < C < 16 \text{ et } 12 < Re < 25$$

Sur la Figure 1.14, les modèles de Virepinte et al. [43] et de Castanet [44] présentent des tendances similaires bien que la corrélation de Virepinte situe la goutte isolée aux environs d'un paramètre de distance  $C=12$  alors que la corrélation de Castanet prévoit plutôt  $C=8$ . La corrélation d'Atthasit [45], toutefois valable jusqu'à un paramètre  $C$  de 16, prédit une position de l'asymptote beaucoup plus éloignée. Ces différences peuvent être attribuées au fait que la corrélation d'Atthasit a été obtenue dans le cas d'une évaporation pure, ce qui n'est certainement pas suffisant pour expliquer ces différences qui peuvent être attribuées à d'autres facteurs non pris en compte dans la corrélation tel que le nombre de Spalding ou encore le nombre de Reynolds.



**Figure 1.14 :** Evolution du paramètre de correction des transferts de masse  $\eta$  en fonction du paramètre de distance  $C$ .

Les travaux de Deprédurand [17] ont montré que le seul paramètre de distance n'était pas suffisant pour rendre compte des conséquences des phénomènes d'interactions entre gouttes sur les transferts de masse et de chaleur. Ces travaux ont consisté à injecter un train de gouttes monodisperse dans une enceinte parcourue par un écoulement d'air à très faible vitesse, à une température de 350°C. En particulier l'influence de la volatilité du combustible a été étudiée en utilisant plusieurs combustibles de points d'ébullition différents : acétone, éthanol, n-heptane, 3-pentanone, n-décane et n-dodécane. Pour rendre compte de ce phénomène, la vitesse de Stephan  $u_g$  qui est bien représentative de la volatilité du combustible est considérée en plus du paramètre de distance afin d'établir la correction des nombres de Nusselt et de Sherwood du fait des interactions. Pour ce faire, un temps adimensionnel  $t^*$  a été introduit :

$$t^* = \frac{\delta f}{V_{Step}} \quad (1.109)$$

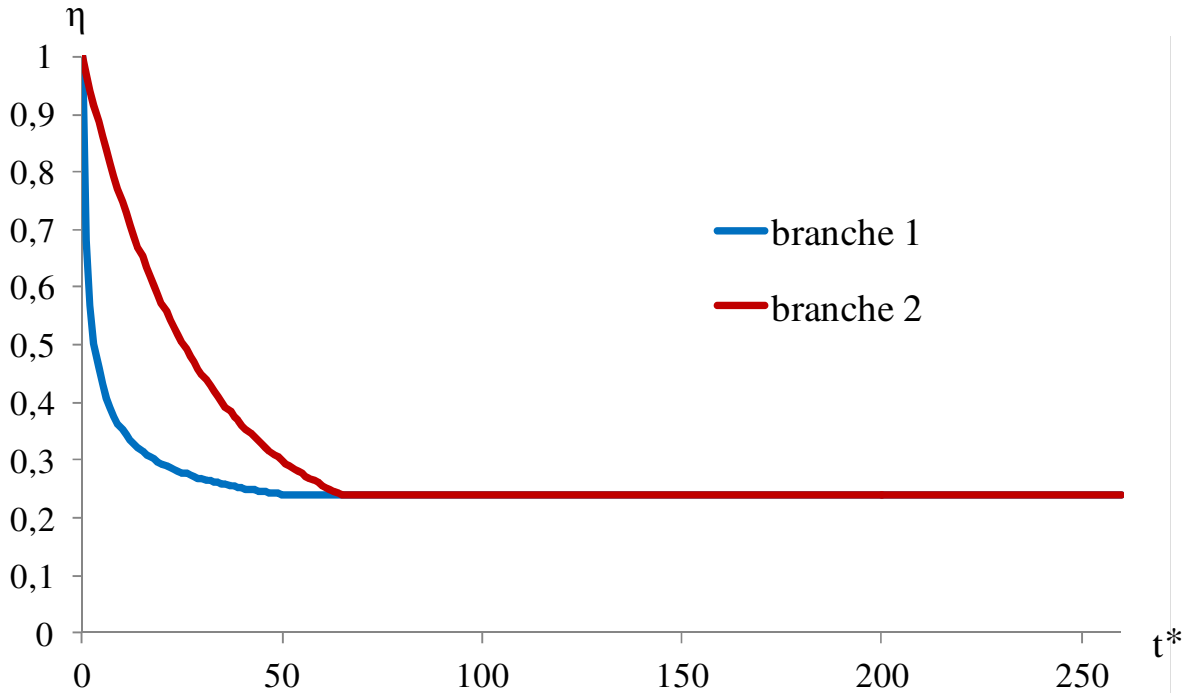
Ce paramètre étant dépendant de l'épaisseur du film défini par Abramson et Sirignano [15]  $\delta = \delta_M$  et  $\delta = \delta_T$ , une différentiation est ainsi effectuée entre les nombres de Nusselt et de Sherwood. Ce paramètre représente le rapport entre le temps caractéristique lié à la distance séparant deux gouttes successives et le temps lié au déplacement de la vapeur, animée de la vitesse de Stephan, dans le film défini par Abramson et Sirignano. Basée sur ce paramètre, Deprédurand [17] propose la correction suivante :

$$\eta(t^*) = \frac{1-A}{(Bt^*+1)^C} + A \quad (1.110)$$

Cependant, les résultats laissent malgré l'utilisation de ce paramètre apparaître deux branches concernant l'évolution du paramètre de correction  $\eta$  en fonction de  $t^*$ , visible sur la Figure 1.14 :

- pour la branche 1 :  $A=0,155335$ ,  $B=1,416767$ ,  $C=0.535026$
- pour la branche 2 :  $A=0,155335$ ,  $B=6,503406 \cdot 10^{-7}$ ,  $C=54302,36$

La première branche correspond au paramètre  $\eta_T$  de tous les combustibles testés ainsi qu'au paramètre  $\eta_M$  pour l'acétone. La seconde branche est composée des paramètres  $\eta_M$  de l'éthanol, du n-heptane et du 3-pentanone. Le domaine de validité de cette loi correspond à  $t^* \leq 50$ , valeur à partir de laquelle les deux branches se rejoignent pour former une asymptote qui se poursuit jusqu'à une valeur de 260 pour des composés très peu volatiles uniquement (n-décane et n-dodécane). Toutefois, le relativement faible niveau de température auquel les expériences ont été réalisées ne permet pas réellement de conclure sur l'évaporation des combustibles faiblement volatiles (très faible régression du diamètre de la goutte) et sur l'échauffement des combustibles fortement volatiles (faible évolution de température). De plus, cette corrélation empirique ne porte que sur une gamme assez limitée de paramètres de distance (entre 2,5 et 6).



**Figure 1.15 :** Paramètre de correction des transferts de chaleur et de masse  $\eta$  en fonction du paramètre du temps adimensionnel  $t^*$ , d'après les travaux de Deprédurand [17].

Plus récemment, Chen et Lin [46] se sont intéressés à l'effet des interactions pour des gouttes en combustion. Un train de gouttes monodisperse (taille initiale, environ 500  $\mu\text{m}$ ) de n-dodécane est lâché dans un tube en quartz de longueur 1m, dans un écoulement descendant (vitesse de l'écoulement: 2 à 3 m/s) chauffé à 950°C à l'aide d'un brûleur à méthane. La concentration en oxygène peut être ajustée dans le tube. L'aspect de la flamme est visualisé par une caméra rapide et la taille des gouttes est mesurée par ombroscopie. La distance entre les gouttes et ainsi le paramètre de distance peuvent être modifiés dans une large gamme, comprise entre 2,5 et 100.

L'observation directe de la flamme lorsque la goutte est lâchée montre une transition entre une flamme de bord d'attaque, une flamme sphérique enveloppant la goutte (traduisant l'équilibre entre la convection naturelle et la convection forcée imposée par la vitesse relative entre la goutte et la phase gazeuse), puis une flamme de sillage. Lorsque le paramètre de distance est diminué, la flamme est stabilisée dans le sillage de la goutte et lorsque le paramètre de distance est compris entre 2,5 et 5, une flamme colonne s'établit.

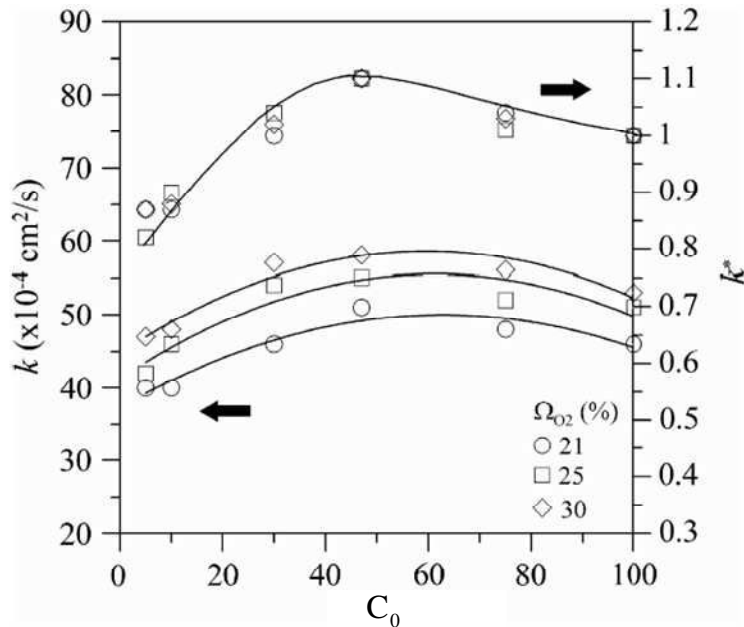
Chen et Lin [46] se sont intéressés à la mesure du taux d'évaporation  $k$ , défini par :

$$\left(\frac{D}{D_0}\right)^2 = 1 - k \frac{t}{D_0^2} \quad (1.111)$$

De plus, étant donné que l'étude est menée pour de très grands paramètres de distance, les auteurs ont considérés qu'un paramètre de distance de 100 équivalait à celui d'une goutte isolé et ont donc introduit un taux de combustion normalisé :

$$k^* = \frac{k(C)}{k(C=100)} \quad (1.112)$$

Ainsi, il est possible de déterminer expérimentalement l'effet du paramètre de distance sur le taux de combustion représenté sur la Figure 1.16.



**Figure 1.16 :** Evolution du taux d'évaporation  $k$  en fonction du paramètre de distance initial  $C_0$  pour trois fractions volumiques d'oxygène  $\Omega_{O_2}$  (Chen et Lin [46]).

Lorsque  $C_0$  varie dans la gamme 5-30,  $k^* < 1$ , ce qui signifie que la goutte s'évapore moins qu'une goutte isolée. Selon les auteurs, lorsque  $C_0=5$ , le nombre de goutte par unité de longueur est plus important et ainsi une plus grande quantité de vapeur est libérée en phase gazeuse. Cette vapeur est brûlée dans la flamme tubulaire entourant le train de gouttes, mais sa surface n'augmentant pas significativement, elle devient rapidement déficitaire en oxygène : il s'ensuit une accumulation de vapeur en phase gazeuse d'où une réduction du taux d'évaporation. Cette tendance se poursuit pour des paramètres de distances atteignant 30 environ, où le taux d'évaporation de la goutte isolée est atteint.

Lorsque  $C_0$  varie dans la gamme 30-75, le taux d'évaporation dépasse celui de la goutte isolée (environ 110% à  $C_0=46$ ) : selon les auteurs, ce comportement singulier peut s'expliquer par le fait que le transfert de chaleur entre deux gouttes voisines influence fortement l'évaporation, notamment lorsque les gouttes présentent une flamme de sillage. La diminution ensuite observée peut s'expliquer par l'éloignement croissant des gouttes.

Imaoka et Sirignano [47] se sont intéressés à la modélisation de l'évaporation et de la combustion d'arrangements de gouttes plus complexes, notamment d'un ensemble tridimensionnel de gouttelettes à l'aide d'une méthode des potentiels. Dans le cas d'un nombre de Lewis unitaire, ces ensembles tridimensionnels peuvent être symétriques ou asymétriques et comporter différentes tailles de gouttes et différents écartements entre les gouttes. Imaoka

et Sirignano [47] ont introduits un coefficient de réduction  $\eta_A$  du taux d'évaporation des gouttes en interaction par rapport à celui d'une goutte isolée.

Les résultats sur les ensembles 3D symétriques ont montrés, que, dans le cas de gouttes identiques et pour des simulations réalisées sur des réseaux de 8 à 216 gouttes, lorsque le diamètre de chacune des gouttes composant le réseau est identique ainsi que l'espacement entre gouttes, un paramètre de similitude  $\xi\left(\frac{L}{R}, N\right)$  peut être défini:

$$\xi\left(\frac{L}{R}, N\right) = \frac{L}{RN^{0,72}} \quad (1.113)$$

où  $N$  est le nombre de goutte dans le réseau,  $R$  est le rayon d'une goutte,  $L$  l'espacement entre gouttes.

En considérant le paramètre de similitude de l'équation (1.113), il est possible de déterminer  $\eta_A$  sous la forme :

$$\eta_A(\xi) = 1 - \frac{1}{1 + 0,725671\xi^{0,971716}} \quad (1.114)$$

Une approche complémentaire des mêmes auteurs a permis de prendre en compte dans l'analyse l'échauffement de la phase liquide en résolvant l'équation de diffusion de la chaleur dans la goutte.

Lorsque le réseau de gouttes est asymétrique et que le diamètre des gouttes ainsi que la distance entre gouttes ne sont pas homogènes pour tout le réseau, le paramètre  $\xi$  modifié peut être substitué à celui de l'équation (1.113) :

$$\xi = \frac{\left[\frac{4\pi V_A N}{3V_1}\right]^{1/3}}{\left[N^{1/3} - 1\right] N^{0,72}} \quad (1.115)$$

avec  $V_A$  et  $V_I$  étant respectivement le volume total du réseau et le volume total de liquide inclus dans le réseau.

Cette approche a également fait l'objet d'une extension aux nombres de Lewis non unitaires (Sirignano [48]).

## 2.8. Aspect dynamique : modélisation de la traînée

Une goutte présentant un mouvement relatif par rapport à son environnement perturbe l'écoulement du gaz autour d'elle, notamment par la formation d'un sillage. Ainsi, la proximité des gouttes peut conduire à des interactions de sillages susceptibles de modifier le mouvement de la goutte. Lorsque de plus, la goutte s'évapore, le phénomène de soufflage de la couche limite modifie également l'écoulement du gaz autour de la goutte. Ces différents phénomènes doivent donc être pris en compte et modélisés.

Lorsque la masse volumique du liquide est très supérieure à celle du gaz l'équation du mouvement appliquée à une goutte sphérique se déplaçant dans l'air s'écrit :

$$m \frac{d\bar{V}}{dt} = \bar{F}_t + \bar{F}_g \quad (1.116)$$

Dans cette expression,  $m$  représente la masse de la goutte et  $V$  sa vitesse. La force de traînée  $\bar{F}_t$  et la force de gravité  $\bar{F}_g$  freinent le mouvement de la goutte lorsque celle-ci est injectée verticalement vers le haut.

La force de traînée peut être exprimée en fonction d'un coefficient de traînée  $Cd$  par :

$$Cd = \frac{F_t}{\frac{1}{2} \rho_g \|\bar{V} - \bar{V}_\infty\|^2 \frac{\pi D^2}{4}} \quad (1.117)$$

Par rapport à une particule solide sans évaporation, le cas de la goutte liquide présente des difficultés supplémentaires. En effet, pour une goutte liquide sans évaporation, les frottements présents à la surface de la goutte induisent la recirculation de l'interface liquide-gaz ce qui a pour effet de réduire la valeur du coefficient de traînée. Le nombre de Reynolds particulaire est alors suffisant pour caractériser le coefficient de traînée dans le cas de particule solide ou liquide sans évaporation :

$$Re = \frac{\rho_\infty \|\bar{V} - \bar{V}_\infty\| D}{\mu_\infty} \quad (1.118)$$

Ce nombre compare les effets de viscosité et d'inertie et prend en compte les propriétés physiques du gaz environnant avec la masse volumique  $\rho_\infty$  et la viscosité dynamique  $\mu_\infty$ ,  $D$  représente le diamètre de la particule et  $V-V_\infty$  la vitesse relative des gouttes.

### Gouttes isolée

Pour une goutte isolée sans évaporation, Virepinte [49] propose pour  $20 \leq Re \leq 120$  :

$$Cd = \frac{24}{Re} (1 + 0.12 Re^{0.687}) \quad (1.119)$$

Pour une goutte en évaporation, l'expulsion de vapeur à la surface de la goutte va réduire considérablement les effets de son sillage. Le nombre de transfert de Spalding est le paramètre communément utilisé afin de prendre en compte ce phénomène. De nombreuses études portent sur le cas de la goutte isolée en évaporation comme celles d'Eisenklam et al. [50] en combustion, Yuen et Chen [51] et Hubbard et al. [12]. Le nombre de Reynolds est alors défini dans les conditions du film :

$$Re_{film} = \frac{\rho_{film} VD}{\mu_{film}} \quad (1.120)$$

Renksizbulut et Haywood [52], à l'aide d'une étude numérique, ont proposés:

$$Cd \left(1 + B_{T, film}\right)^{0.2} = \frac{24}{Re_{film}} \left(1 + 0.2 Re_{film}^{0.63}\right) \quad (1.121)$$

Cette corrélation s'applique dans les conditions de film pour  $10 \leq Re_{film} \leq 300$ , le nombre de Spalding étant défini par :

$$B_{T, film} = \frac{Cp_{film}(T_{\infty} - T_s)}{L_v + \frac{Q_l}{m}} \quad (1.122)$$

### Gouttes en interaction

La proximité des gouttes va fortement influencer la force de traînée. La connaissance du coefficient de traînée  $Cd$  est alors essentielle à la modélisation de la trajectoire de gouttes en interactions. Dans le cas d'un train de gouttes monodisperse, afin de caractériser l'influence des interactions sur le coefficient de traînée, le paramètre de distance  $C$  défini par la relation (1.104) est introduit. Néanmoins, quelques corrélations ont été établies dans le cas d'une ligne de gouttes.

Chiang et Sirignano ont étudié numériquement le coefficient de traînée pour le cas de deux gouttes en interaction de taille quelconque [42] et pour un alignement de trois gouttes de taille identique mais d'écartement quelconque [53]. Ils ont montré pour ce dernier cas que le coefficient de traînée de la goutte de tête dépend peu de la position de la troisième, l'inverse étant moins vrai. Ils ont ainsi montré grâce à ces deux configurations que le nombre de gouttes réduisait le coefficient de traînée par rapport à une goutte isolée et que cette réduction est modifiée par le nombre de gouttes considérées. Ces études demeurent donc insuffisantes pour rendre compte de la réduction de la traînée dans le cas d'un jet de goutte monodisperse de dimension infinie.

Basées sur des mesures expérimentales, plusieurs corrélations existent pour décrire le cas d'une ligne de goutte infinie injectée verticalement vers le haut. Dans le cas de l'évaporation, Virepinte [43] propose une corrélation du coefficient de traînée formulée avec un nombre de Reynolds notée  $Re_p$  qui diffère légèrement de celui du film défini par l'équation (1.120):

$$\frac{Cd}{Cd_{iso, Renksizbulut}} = 0.67 \left[1 - \exp(-(a + b(C - 1)))\right]$$

$$a = 0.0039 Re_p + 0.0988$$

$$b = 0.0956 - 0.00236 Re_p \quad (1.123)$$

$$\text{avec } Re_p = \frac{\rho_{amb} V D}{\mu_{ref}}$$

$Cd_{iso, Renksizbulut}$  est issu de l'équation (1.121).

Pour un train de gouttes monodisperse en évaporation, injecté dans la couche limite d'une plaque chauffée, Atthasit [45] propose une corrélation basée sur le coefficient de traînée valable pour  $8 \leq Re_{film} \leq 19$  et  $2,5 \leq C \leq 16$  :



$$\frac{Cd}{Cd_{iso, Renksizbulut}} = a \ln(C) + b \quad (1.124)$$

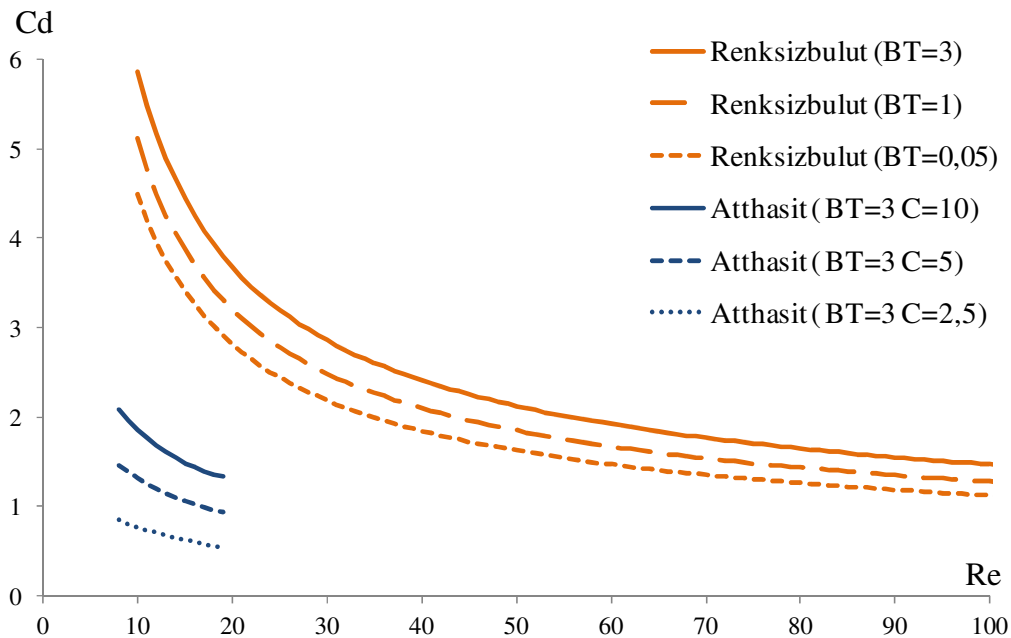
avec

$$a = 3.43 \times 10^{-5} Re_{film}^3 - 1.359 \times 10^{-3} Re_{film}^2 + 1.8753 \times 10^{-2} Re_{film} + 0.0484016$$

$$b = -1.07 \times 10^{-5} Re_{film}^3 + 2.106 \times 10^{-4} Re_{film}^2 + 7.668 \times 10^{-4} Re_{film} - 0.0100236$$

Atthasit [45] recommande d'utiliser uniquement le paramètre de distance initiale sans le réactualiser au cours du temps. Ceci est justifié par le fait que la décroissance du paramètre de distance est une conséquence directe du coefficient de traînée.

Sur la Figure 1.17, l'augmentation du nombre de Spalding thermique  $B_T$ , représentative de l'évaporation, entraîne un accroissement du coefficient de traînée. La figure montre aussi que le coefficient de traînée est bien moins important lorsque des interactions sont mises en jeu (Atthasit [45]) que dans le cas de la goutte isolée (Renksizbulut [52]) pour un nombre de Spalding thermique identique ( $B_T=3$ ). Dans le cas où les interactions sont présentes, les valeurs du coefficient de traînée diminuent lorsque le nombre de Reynolds augmente et tombe entre 10% et 30% de la valeur caractéristique de la goutte isolée (Renksizbulut), preuve de l'importance du phénomène. Il peut également être observé que le coefficient de traînée chute lorsque le paramètre de distance diminue, du fait des interactions de sillages, s'éloignant ainsi du cas de la goutte isolée. Lorsque le train de goutte est en combustion, le coefficient de traînée augmente par rapport au cas de l'évaporation pure. Ceci s'explique par une évaporation plus importante dans le cas de la flamme qui est causée par une température ambiante plus élevée, l'influence de l'évaporation étant représentée par le paramètre de Spalding qui est plus élevé en combustion qu'en évaporation.

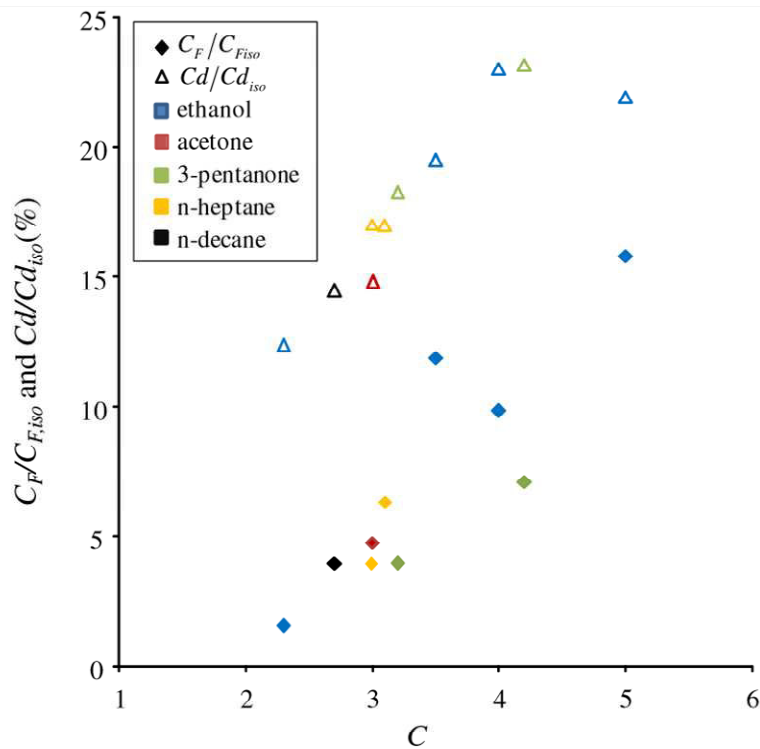


**Figure 1.17 :** Evolution du coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynold dans les conditions du film pour deux modèles (Renksizbulut [52], Atthasit [45]).

Castanet et al. [54], à l'aide de la mesure du champ de température à l'intérieur de la goutte par fluorescence induite par laser à deux couleurs, a estimé la valeur du coefficient de frottement interfacial en utilisant le modèle du vortex de Hill pour décrire l'écoulement à l'intérieur de la goutte, ceci en fonction du paramètre de distance  $C$ . Ces auteurs ont montré que le coefficient de frottement avait un comportement similaire au coefficient de traînée lorsque ces coefficients sont rapportés au cas de la goutte isolée, comme l'illustre la Figure 1.18.

Un décalage absolu de 10% peut être constaté entre les courbes de  $C_F/C_{F,iso}$  et  $C_d/C_{d,iso}$ , quelque soit le paramètre de distance  $C$ , ce qui permet d'écrire simplement le coefficient de frottement interfacial  $C_F$  à partir du coefficient de traînée dans le cas où les interactions entre les gouttes doivent être prises en compte :

$$\frac{C_d}{C_{d,iso}} = \frac{C_F}{C_{F,iso}} + 0,1 \quad (1.125)$$



**Figure 1.18 :**  $C_F/C_{F,iso}$  et  $C_d/C_{d,iso}$  fonctions du paramètre de distance  $C$  pour différents combustibles.

Les auteurs émettent l'hypothèse, sans toutefois pouvoir le démontrer directement, que la différence entre les deux coefficients est liée la non prise en compte de l'effet Marangoni dans l'analyse. En effet, l'effet Marangoni diminue fortement la vitesse de l'écoulement à l'intérieur de la goutte, en ajoutant une contrainte surfacique supplémentaire qui s'oppose à la force de frottement. Frackowiak et al. [29] ont montré pour les cas considérés précédemment que l'effet Marangoni n'est pas négligeable et justifie cette hypothèse, puis Castanet et al. [54] ont montrés quantitativement l'influence de cet effet par comparaison des champs de température interne mesurés et de simulations numériques directes.

Les auteurs diffèrent sur le choix des conditions dans lesquelles doit être déterminé le nombre de Reynolds. Suivant les corrélations, celles-ci prennent en compte les conditions de référence ou de film. Certains auteurs utilisent différents types de conditions pour définir les différentes propriétés physiques pour un même nombre de Reynolds. Par exemple, pour le nombre de Reynolds utilisé dans la corrélation de Virepinte [43], la viscosité est prise dans les conditions de référence, car les frottements qu'elle engendre avec la goutte s'effectue à sa surface alors que la masse volumique est calculée à la température ambiante du fait que l'écoulement de l'air ambiant trouve son origine loin de la goutte.

De plus, le gradient de température pouvant être important entre la surface de la goutte et le milieu ambiant, les différences sur les propriétés physiques en fonction des conditions choisies peuvent être significatives. En conséquence, il demeure difficile de comparer directement ces corrélations entre elles.

Au regard de la viscosité, la condition de référence semble être la plus appropriée car elle favorise la température de surface par rapport à la température ambiante, ce qui semble le plus adapté à décrire les propriétés au sein de la couche limite entourant les gouttes, bien qu'il ne soit pas possible de trancher clairement sur les conditions les plus adéquates à utiliser.

### 3. Conclusions

Les études expérimentales et numériques effectuées sur des jets monodisperse ont démontré l'influence importante des phénomènes d'interaction, notamment du fait des aspects géométriques sur les transferts de chaleur et de masse. L'influence de la nature du combustible a aussi été mise en évidence. Ainsi les études menées sur les interactions s'accordent sur les paramètres importants à prendre en compte. En revanche, elles présentent des différences notables sur les aspects quantitatifs reliant les transferts de chaleur et de masse au cas de la goutte isolée, les paramètres susceptibles d'influer étant nombreux et difficiles à isoler. Des études complémentaires sont alors nécessaires à l'amélioration de ces modèles et à la compréhension globale des phénomènes d'évaporation.

Dans cette optique, des mesures expérimentales portant sur des trains de gouttes monodisperse seront effectuées dans ces travaux afin d'étudier séparément les paramètres influençant l'évaporation. Ceci permettra clairement d'améliorer la compréhension de leur influence tant du point de vue du transfert de masse que de chaleur. La précision des mesures étant alors fondamentale, des techniques sophistiquées sont utilisées tel l'ombroscopie quantitative rapide afin de déterminer la vitesse et la taille des gouttes ainsi que la technique de fluorescence induite par laser à deux couleurs développée au LEMTA pour la détermination de la température de la goutte, seront mises en œuvre. De plus l'évaporation des gouttes fera l'objet d'une étude à des températures ambiantes notablement supérieures à celles référencées dans la littérature.

## **Chapitre 2**

### **Installations expérimentales et métrologie**

# Chapitre 2. Installations expérimentales et métrologie

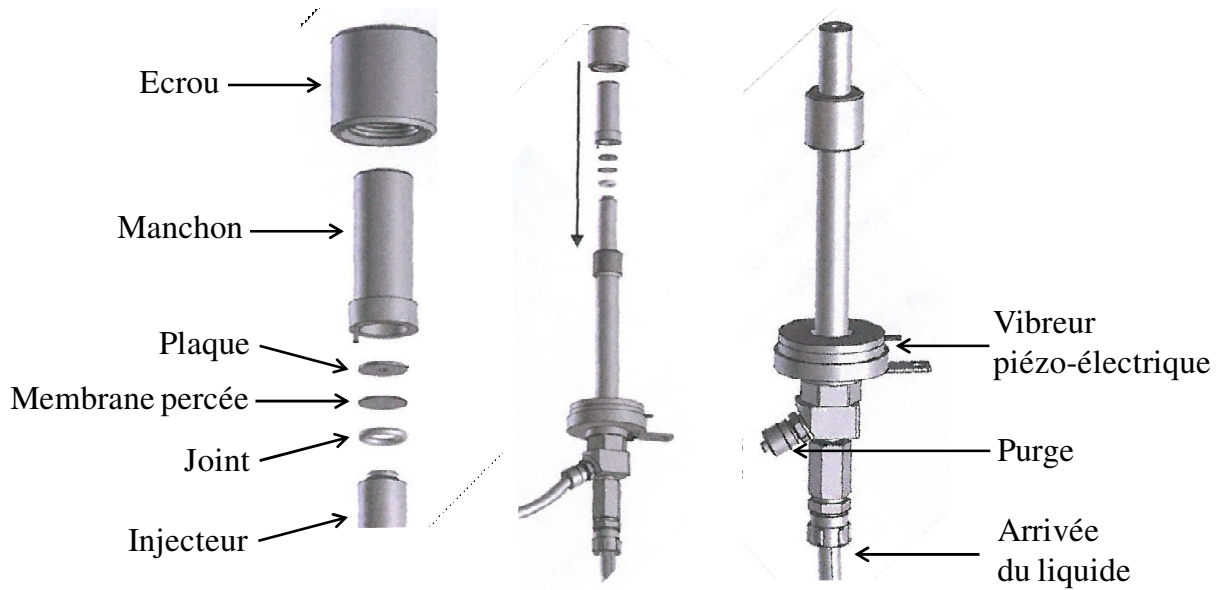
## 1. Dispositifs expérimentaux

### 1.1. Le jet de gouttes monodisperse

#### 1.1.1. Caractéristiques

Un jet de gouttes est dit monodispersé lorsque toutes les gouttes qui le composent sont émises dans la même direction et présentent, pour une position donnée, une taille, une vitesse, un écartement entre gouttes, une composition et une température identiques. Ainsi, à une hauteur donnée par rapport au point d'injection, les gouttes ont donc toutes la même histoire. L'aspect périodique de cette configuration permet d'effectuer des moyennes statistiques sur un grand nombre de gouttes et ainsi d'obtenir des valeurs très précises sur des grandeurs mesurées. Enfin, l'étude de l'évolution temporelle est ramenée à une étude spatiale à l'aide de la connaissance de la vitesse locale, éliminant ainsi toutes les difficultés liées au suivi des gouttes. Au regard de ces avantages, cette forme simplifiée de spray a été largement utilisée (Sangiovanni et Labowsky [39], Virepinte et al. [43], Castanet et al. [55], Maqua et al. [56], Ammigan et Clack [57], Devarakonda et Ray [58]).

L'injecteur de goutte monodisperse (Figure 2.1) a été conçu par la société FMP Technology, basée à Erlangen en Allemagne. Le combustible, injecté dans le corps de l'injecteur sous pression, passe à travers une membrane en platine rhodié dont le centre est percé par un trou calibré de petites dimensions (de 50 à 100  $\mu\text{m}$  pour les expériences réalisées). A la sortie de l'injecteur, le jet liquide cylindrique instable se désintègre naturellement en gouttes de tailles différentes. Une céramique piézo-électrique est utilisée afin de contrôler cette désintégration et générer un jet de gouttes monodisperse. Le fonctionnement est le suivant : la céramique placée à la base de l'injecteur est reliée à un générateur de fréquence délivrant un champ électrique oscillant de forme carré à haute fréquence, comprise entre 8 kHz et 40kHz. La céramique entre alors en vibration sous l'effet de ce champ électrique périodique. Ces vibrations se propagent le long du corps de l'injecteur jusqu'à son extrémité où elles sont transmises au liquide en sortie.



**Figure 2.1 :** Schéma de l'injecteur de gouttes monodisperse

Pour un jet liquide de faible diamètre, les vibrations induisent à la surface du liquide des instabilités hydrodynamiques de type Rayleigh. L'instabilité s'amplifie le long du jet jusqu'à fragmentation de celui-ci en une série de gouttes (Figure 2.2). L'utilisation d'une fréquence de vibration proche d'une fréquence naturelle de désintégration du jet entraîne l'ondulation régulière du jet et ainsi le développement de l'instabilité le long du jet permet d'obtenir des gouttes parfaitement calibrées et périodiques. La fréquence de génération des gouttes est alors la même que celle impulsée à la céramique par le générateur de fréquence.



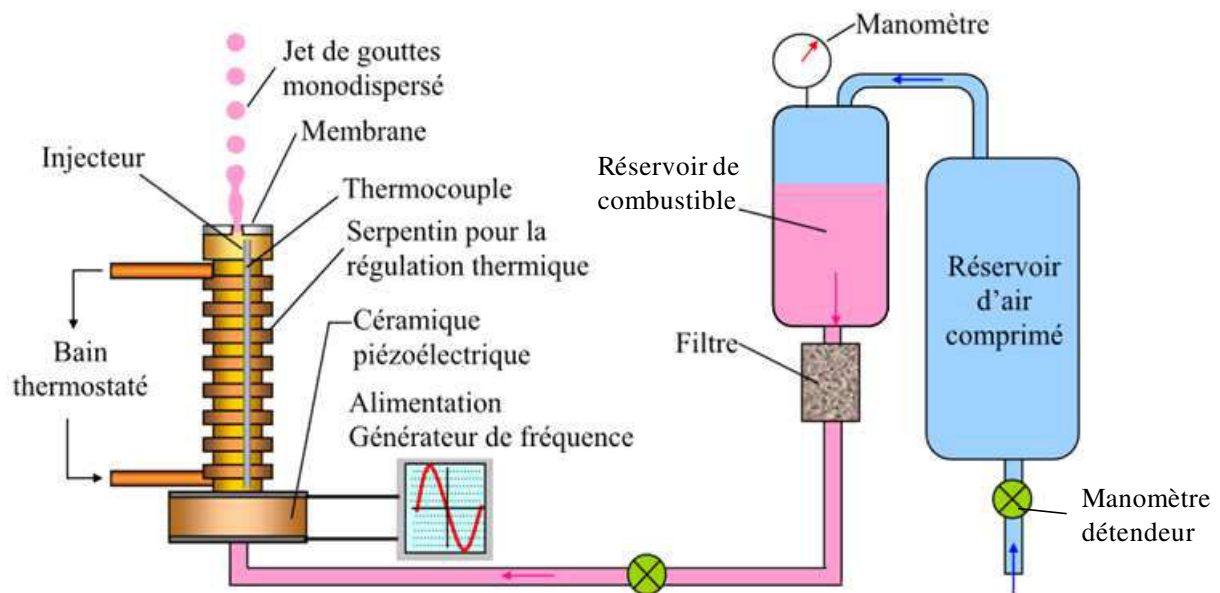
**Figure 2.2:** Succession d'images prises par ombroscopie de la désintégration du jet à la sortie de l'injecteur.

La distance (ou le temps) nécessaire à la désintégration de la nappe en un jet de goutte monodispersé varie suivant l'importance des effets de la tension superficielle du liquide par rapport aux forces d'inerties, caractérisé par le nombre adimensionnel de Weber. En moyenne, cette longueur de la nappe cylindrique, avant désintégration, est d'environ 1cm. Puis en fonction de la taille des gouttes, environ un centimètre supplémentaire est nécessaire à l'obtention de gouttes parfaitement sphériques et monodispersées. En effet, comme on peut l'apercevoir sur la Figure 2.2, la fragmentation de la nappe conduit d'abord à la formation de ligaments, de gouttes déformées et polydispersées en taille, puis enfin de gouttes monodispersées.

### 1.1.2. Dispositif expérimental du jet de gouttes monodisperse

#### Principe de fonctionnement

Une différence de pression, maintenue constante grâce à un réservoir d'air comprimé de grande capacité, est appliquée à un réservoir contenant le combustible (Figure 2.3). L'alimentation de l'injecteur est alors stable en débit pendant toute la durée des expériences avec une vitesse d'injection  $V_0$  constante. Afin d'éviter l'obstruction de la membrane par d'éventuelles poussières, un filtre à particule radial présentant une porosité de  $10\ \mu\text{m}$  est placé sur le circuit de combustible, juste à la sortie du réservoir de combustible. Un thermocouple placé à l'intérieur du corps de l'injecteur jusqu'à son extrémité, dont l'élément sensible est positionné au voisinage immédiat de la membrane, mesure directement la température d'injection du liquide. Pour réguler en température le générateur de gouttes et ainsi la température d'injection du liquide, un serpentin enroulé autour de l'injecteur est relié à un bain thermostaté. La température de consigne permet alors une régulation thermique du corps de l'injecteur précise à  $\pm 0,2^\circ\text{C}$ .



**Figure 2.3:** Schéma du dispositif d'injection de gouttes monodispersées.

Un jet de gouttes monodisperse est caractérisé par le diamètre des gouttes  $D_g$ , la distance reliant le centre de deux gouttes successives  $L_0$  et leurs vitesses  $V_0$ . Il est possible de contrôler ces caractéristiques grâce aux paramètres d'injection tels que le débit volumique  $Q_v$  de combustible injecté, la fréquence  $f$  de la céramique piézo-électrique ainsi que le diamètre  $D_0$  de la membrane.

Par application de la conservation de la masse, il vient :  $Q_v = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{D_0}{2}\right)^3 f$  (2.1)

soit  $D_0 = \sqrt{\frac{6Q_v}{\pi f}}$  (2.2)

avec  $D_0$  le diamètre initial des gouttes,  $f$  la fréquence de génération des gouttes.

En supposant le jet liquide parfaitement cylindrique à la sortie de la membrane, la conservation du débit  $Q_v$  permet d'écrire :

$$Q_v = \frac{\pi D_m^2}{4} V_0 \quad (2.3)$$

avec  $D_m$  le diamètre de l'orifice de sortie de l'injecteur. La vitesse débitante du jet cylindrique à l'injecteur peut donc être calculée par :

$$V_0 = 4Q_v / (\pi D_m^2) \quad (2.4)$$

La théorie de Rayleigh permet de définir une plage de fréquence d'excitation optimale. Ainsi, la longueur d'onde optimale de la vibration imposée au jet liquide pour obtenir la désintégration du jet de manière monodisperse est donnée par :

$$\lambda_{opt} \cong 4,51 D_m \quad (2.5)$$

Associée à cette longueur d'onde optimale, le diamètre des gouttes résultant est donné par :

$$D = 1,9 D_m \quad (2.6)$$

Grâce au générateur de fonctions, il est possible d'utiliser des fréquences comprises entre 8 et 40 kHz. D'après les équations (2.5) et (2.6), il existe une fréquence optimale de désintégration du jet, permettant une désintégration du jet liquide en gouttes monodispersées qui est fonction du diamètre de l'orifice de sortie  $D_m$  et de la vitesse d'injection  $V_0$  :

$$f_{opt} \approx 0.198 \frac{V_0}{D_m} \quad (2.7)$$

Cependant, la désintégration des gouttes reste monodisperse dans une large gamme de fréquence autour de la fréquence optimale définie par l'équation (2.7).

En l'absence de coalescence, la distance entre les gouttes est donnée par la fréquence de passage des gouttes et leur vitesse  $V$  déterminée expérimentalement :

$$L = V / f \quad (2.8)$$

Pour caractériser l'espacement relatif entre deux gouttes, le paramètre de distance  $C$ , caractéristique des interactions aérodynamiques entre gouttes, est introduit:

$$C = \frac{L}{D_0} = \frac{V}{f D_0} \quad (2.9)$$

avec  $V$  la vitesse instantanée des gouttes à une position donnée.

Afin d'obtenir une large gamme de variation du paramètre  $C$ , il est possible de faire varier la fréquence d'injection, le diamètre d'injection et/ou la vitesse, ces paramètres étant reliés par ailleurs. Ainsi, la modification de l'un d'eux influencera les autres paramètres. Dans le cadre de la présente étude, la plage de variation possible du paramètre de distance s'étendra de 2 à 11.

Il est à noter que le paramètre de distance  $C$  évolue au cours du temps. En effet, le diamètre évolue au cours de la vie de la goutte par dilatation ou évaporation. De plus, du fait que le mouvement des gouttes est gouverné par le bilan des forces de traînée et de gravité auxquelles elles sont soumises, la vitesse de la goutte évolue également au cours du temps. Il est alors



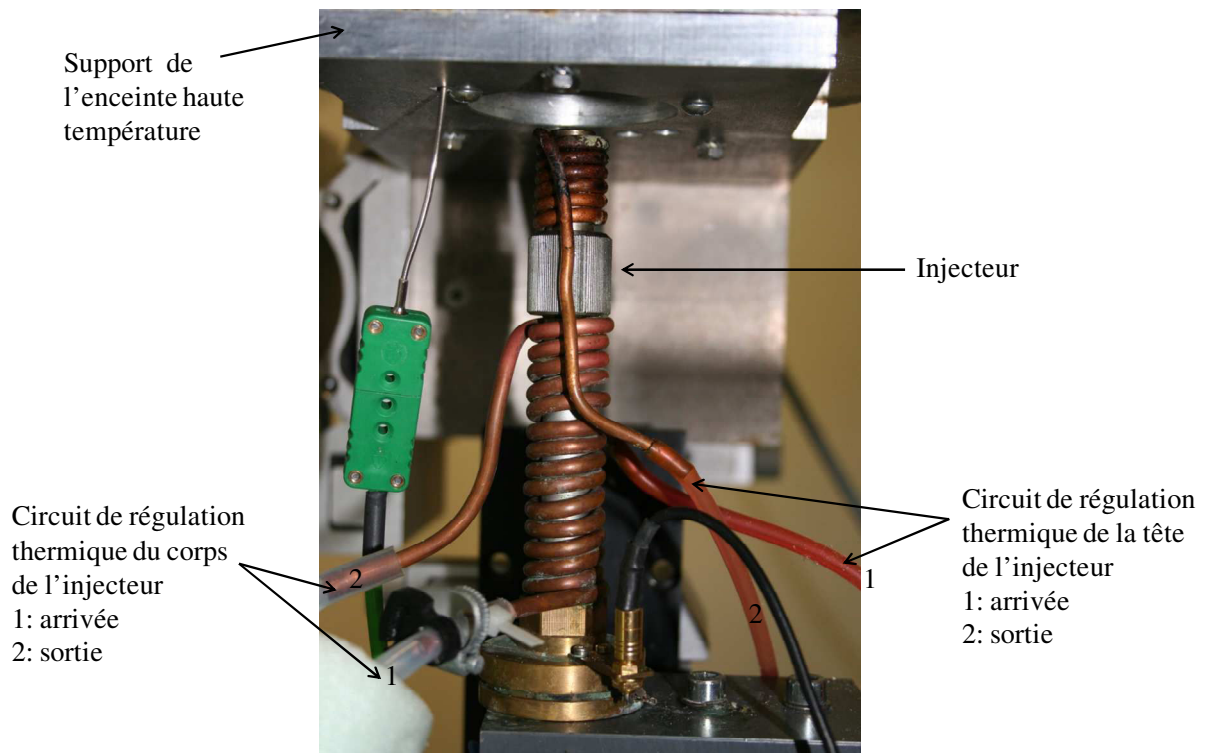
possible de connaître l'évolution précise du paramètre de distance grâce à la connaissance de la vitesse instantanée et du diamètre des gouttes. D'une manière plus générale, l'évolution temporelle d'un paramètre lié aux gouttes (diamètre, température, composition chimique) devient accessible par conversion de l'évolution spatiale de celui-ci, lorsque la vitesse locale des gouttes est connue. La distance parcourue  $h$  par une goutte depuis le point d'injection est convertie en temps pour chaque point de mesure suivant la relation :

$$t_1 = \int_0^{h_1} \frac{1}{V(h)} dh \quad (2.10)$$

### **Dispositif de refroidissement**

L'injecteur sera positionné à l'entrée d'une enceinte chauffée et par conséquent, il sera amené à subir un échauffement important par convection forcée et par rayonnement. Il devient alors nécessaire de refroidir efficacement le nez de l'injecteur et également de pouvoir régler la température d'injection, entre la température ambiante jusqu'à une température voisine de la température d'équilibre du liquide.

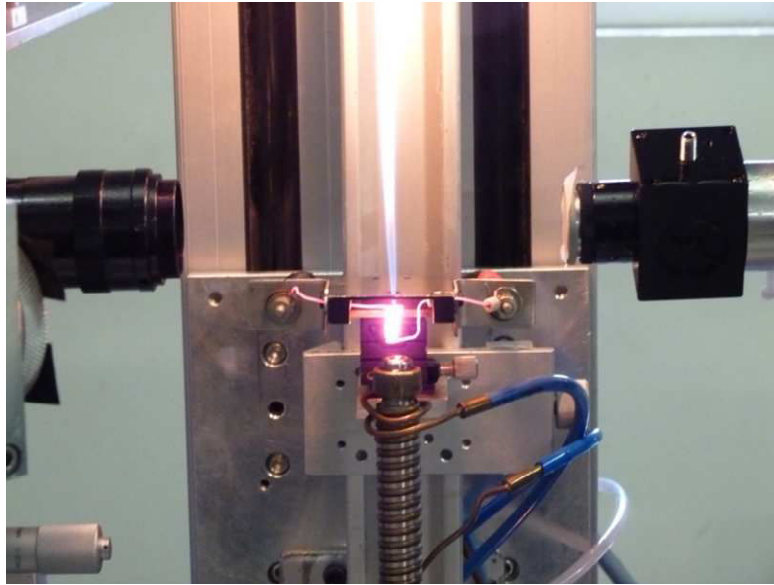
Un bain thermostatique rempli avec une huile silicone permet d'atteindre une amplitude thermique allant de  $-10^{\circ}\text{C}$  jusqu'à  $200^{\circ}\text{C}$ . Des tuyaux de liaison permettent ensuite la circulation du liquide jusqu'à un serpentin de cuivre enroulé autour de l'injecteur. Étant donné la forme de l'injecteur (Figure 2.4), un dispositif de refroidissement en deux parties a été réalisé: une première partie entoure le corps de l'injecteur et une seconde, amovible, est enroulée autour de la tête de l'injecteur. Ce dispositif de refroidissement en deux parties a l'avantage de permettre d'opérer à des températures d'injection du combustible variant dans une très large gamme. D'une part en réglant la consigne du bain thermostatique, il est possible de couvrir une plage de température d'injection du liquide allant de  $15$  à  $70^{\circ}\text{C}$ , d'autre part, en retirant la partie refroidissant la tête de l'injecteur tout en laissant l'échangeur situé au niveau du corps de l'injecteur, une température d'injection du liquide fixe voisine de  $140^{\circ}\text{C}$  peut être atteinte. Ainsi, pour des combustibles faiblement volatiles, tels le n-dodécane ou le n-décane, il sera possible d'injecter les gouttes à la température d'équilibre du combustible et d'observer le transfert de masse lorsque la goutte s'évapore à température constante.



**Figure 2.4:** Photographie du dispositif de refroidissement de l'injecteur. Les deux serpentins de cuivre pour le refroidissement du corps et de la tête de l'injecteur sont reliés à un bain thermostaté couvrant la gamme de température  $-10^{\circ}\text{C}$  à  $200^{\circ}\text{C}$ .

## 1.2. Dispositif de mise en combustion

Afin de tester et de valider les techniques de mesure en attendant la conception définitive de l'enceinte à haute température, un dispositif de mise en combustion simple du jet de gouttes monodisperse a été mis en place. La combustion de la vapeur dégagée par l'évaporation des gouttes est initiée par le passage du train de gouttes à l'intérieur d'une spire métallique en tungstène chauffée par effet joule. La spire d'un diamètre de 3mm et d'une hauteur de 8mm provoque un fort dégagement de chaleur qui, associé à la stœchiométrie entre la vapeur dégagée par les gouttes de combustible et l'oxygène de l'air, entraîne la formation d'une flamme laminaire de diffusion entourant le train de gouttes monodisperse, sous forme d'une combustion de groupe (Figure 2.5).



*Figure 2.5: Photographie du dispositif de mise en combustion du jet de gouttes monodisperse.*

Les inconvénients liés à ce dispositif concernent la difficulté de mesurer la température ambiante dans laquelle les gouttes sont immergées, même si des mesures ont déjà été réalisées par Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente (DRASC). Cette donnée est fondamentale à déterminer car elle permet l'établissement des propriétés physiques du milieu entourant la goutte et la prise en compte des transferts de chaleur par convection. L'utilisation d'une flamme permet d'obtenir une température ambiante particulièrement élevée (de l'ordre de  $1000^{\circ}\text{C}$ ) rendant particulièrement intéressante l'étude des transferts de chaleur et de masse qui sont accentués à ce niveau de température. Néanmoins, cette configuration générant un fort gradient de température entre la surface de la goutte et les conditions ambiantes, l'erreur de détermination des conditions de film ou de référence peut ainsi entraîner une mauvaise estimation des flux de masse et de chaleur.

Afin de permettre la caractérisation complète des échanges de chaleur et de masse dans le jet de gouttes en combustion, Roy et al. [59] ont déterminé le profil de température de la flamme par la technique DRASC (avec une précision de l'ordre de 20K à 50K), cette technique restant néanmoins coûteuse et délicate à mettre en œuvre. Cette technique de mesure à l'intérieur de milieu réactif ne sera pas utilisée dans le contexte de ce travail, l'étude en combustion ne représentant pas un objectif de ces travaux.

### **1.3. L'enceinte à haute température**

Une part significative de ce travail de thèse a été consacrée à la conception de l'enceinte à haute température, qui a été réalisée par les services techniques du Laboratoire.

Dans le but de fournir une température ambiante élevée autour du train de gouttes, différentes configurations ont été étudiées dans des études précédentes:

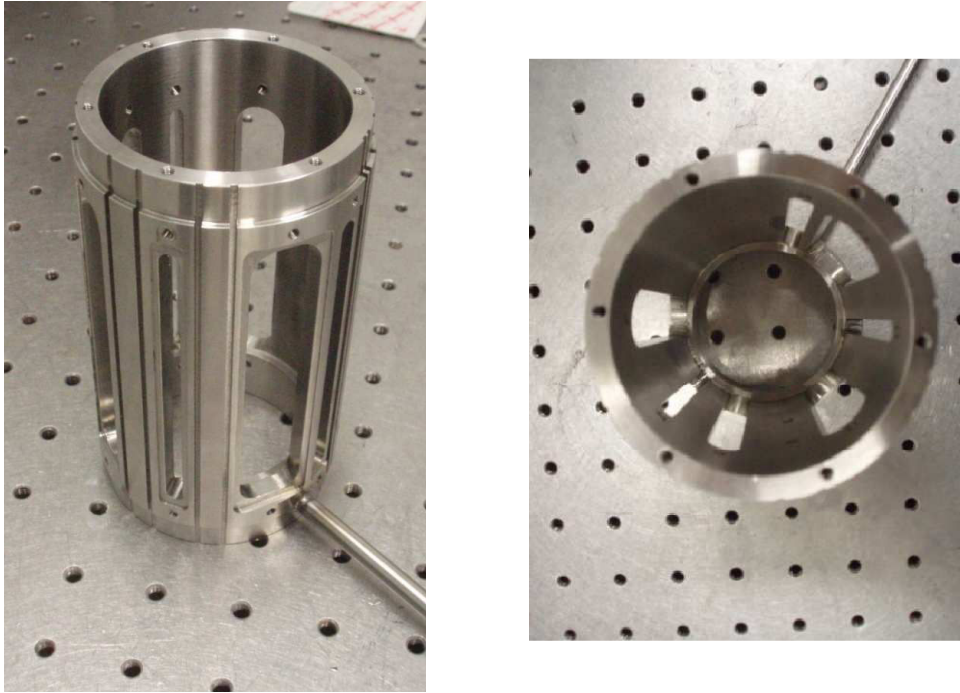
- des mesures en combustion ont été effectuées par de nombreux auteurs, la flamme étant générée par la combustion de la vapeur générée par évaporation des gouttes (Castanet et al. [44], Koshland et Bowman [60], Maqua et al. [61]).
- des configurations d'évaporation pure ont été réalisées, par injection du train de gouttes monodisperse dans la couche limite thermique d'une plaque chaude placée verticalement (Castanet [62] et Atthasit [45]) ou encore en injectant les gouttes dans un panache d'air chaud (Maqua [63] et Doué [64]). Cette dernière configuration relativement simple à mettre en œuvre présente le désavantage de générer un champ de température autour de la goutte présentant un fort gradient horizontal.

Finalement, la configuration la plus intéressante est celle utilisée par Déprédurand [17], consistant en un train de gouttes injecté dans une enceinte contrôlée en température. Ce dispositif permet d'obtenir des conditions de température homogènes et maîtrisées autour du train de gouttes sur toute la hauteur, ce qui est particulièrement intéressant puisque la température ambiante est une donnée fondamentale pour l'interprétation des données expérimentales.

#### **1.3.1. Conception de l'enceinte à haute température**

L'expérience conçue est inspirée du dispositif utilisé dans les travaux de Deprédurand [17]. Une enceinte permettant d'établir un écoulement laminaire à très basse vitesse et à haute température, dans lequel est injecté le train de gouttes monodisperse, a été conçue. L'objectif est d'atteindre une température ambiante plus élevée que celle obtenue par Deprédurand et de permettre une exploration sur une longueur importante du jet en rapprochant le nez de l'injecteur le plus près possible de l'entrée de l'enceinte.

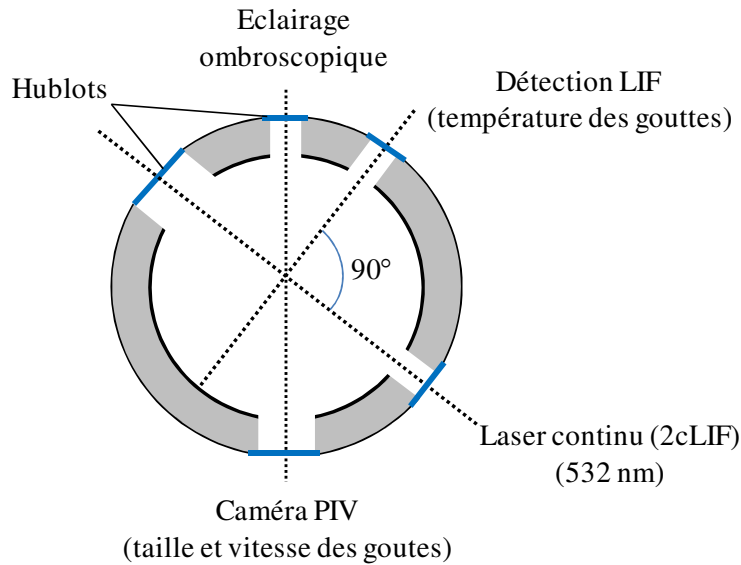
Afin d'assurer la tenue en température à près de 700°C au voisinage des parois, l'enceinte a été conçue en acier inoxydable puis fabriquée à l'atelier de mécanique du LEMTA (Figure 2.6). Les dimensions ont fait l'objet d'un compromis entre puissance de chauffage nécessaire pour maintenir une température d'air en écoulement élevée à l'intérieur de l'enceinte et les contraintes liées à l'usinage. En effet, pour une vitesse d'air identique, un diamètre important de l'enceinte implique une plus grande surface de circulation d'air donc un plus grand débit massique d'air. Le choix s'est donc orienté sur une enceinte de diamètre interne 6 cm.



**Figure 2.6:** Photographies de la partie intérieure de l'enceinte, réalisée en acier inoxydable.

Des accès optiques de 8 cm de hauteur ont été aménagés dans la paroi de l'enceinte, permettant la mise en place de diagnostics optiques non intrusifs. Ces accès optiques, destinés à l'entrée des faisceaux laser et à la détection des signaux, sont munis de hublot en quartz. Il s'est avéré que la hauteur prévue était suffisante pour la caractérisation des jets de gouttes les plus stables, correspondant aux plus grands diamètres de gouttes, avant la perte de monodispersité ou l'observation d'une fragmentation en gouttes secondaires.

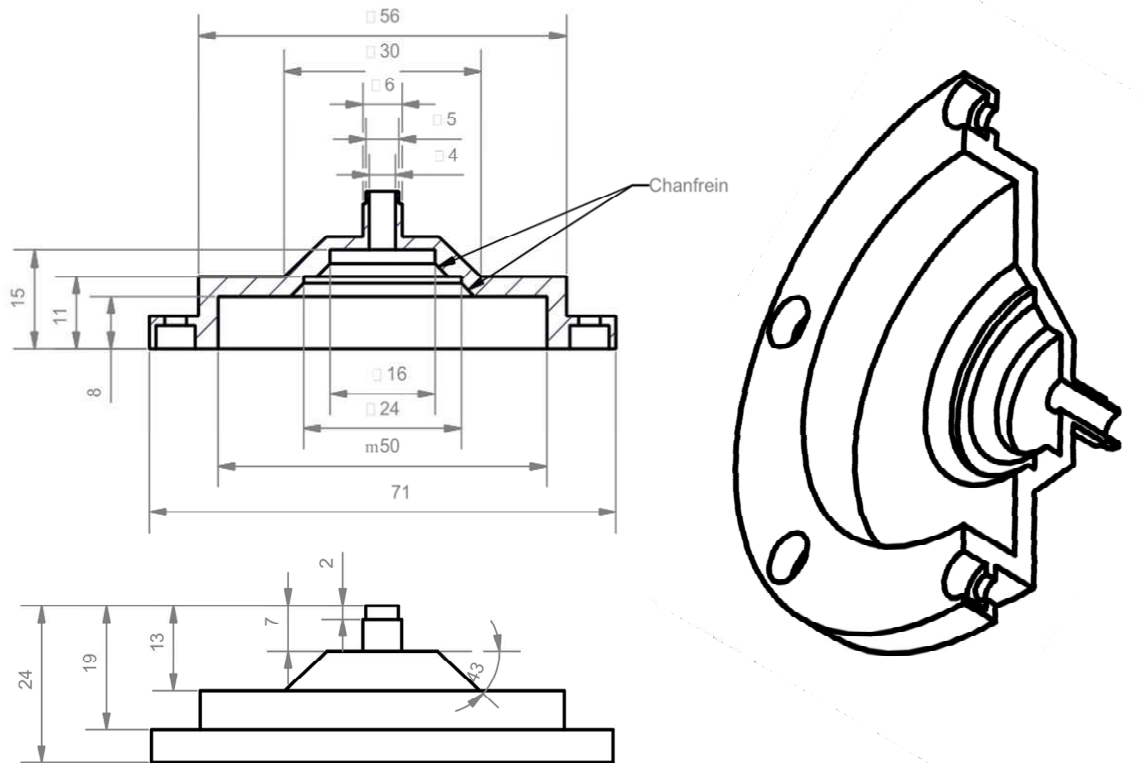
Les accès optiques sont positionnés suivant les indications de la Figure 2.7. Le choix des emplacements a été effectué de manière à optimiser la place disponible autour de l'enceinte et afin de faciliter les accès aux réglages de chaque dispositif (enceinte, injecteur, lasers et dispositifs de collection des signaux optiques). Un hublot supplémentaire a été ajouté en face de l'entrée du faisceau laser continu afin d'empêcher sa réflexion à l'intérieur de l'enceinte.



**Figure 2.7:** Schéma des accès optiques de l'enceinte pour le positionnement des différents dispositifs optiques

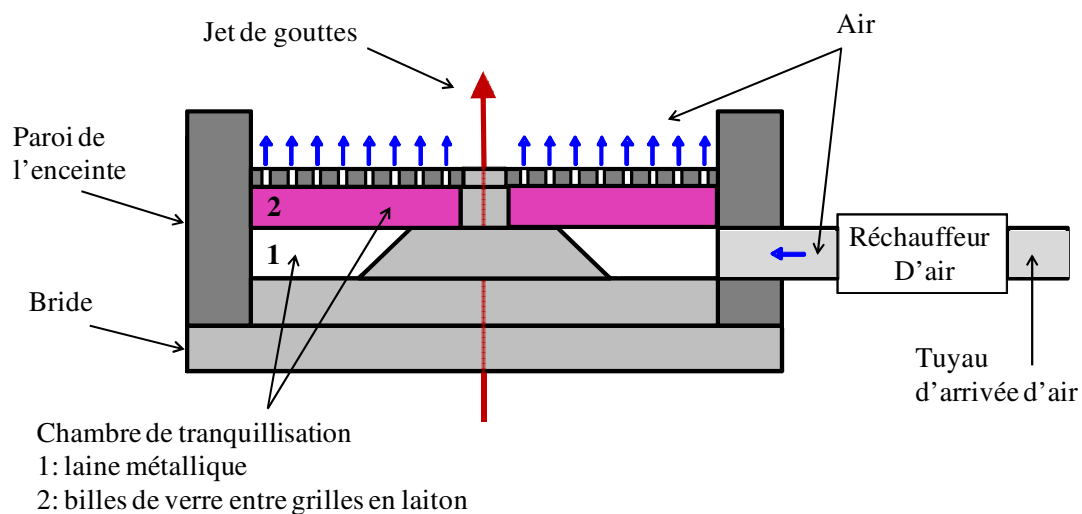
Un tuyau d'alimentation en air, visible sur la Figure 2.6, est soudé à la base de l'enceinte. La conception de l'arrivée d'air dans l'enceinte a constitué une des difficultés majeures. En effet, les petites dimensions de l'enceinte ne permettaient pas l'utilisation d'une arrivée d'air verticale comme dans la configuration de Déprédurand. En conséquence, une seule entrée d'air horizontale a été aménagée. Cependant une telle configuration nécessite à l'écoulement d'air d'effectuer une rotation de  $90^\circ$  pour pénétrer dans l'enceinte, ce qui génère un certain nombre d'instabilités aérodynamiques qui sont susceptibles de perturber le jet de gouttes, ceci s'ajoutant au caractère turbulent du jet d'air débouchant à la base de l'enceinte qu'il convient donc de tranquilliser.

Pour cela, plusieurs chambres réparties en niveaux successifs ont été aménagées à la base de l'enceinte, qui est constituée par une pièce en acier inoxydable, conçue indépendamment de l'enceinte à laquelle elle est fixée. Sur la Figure 2.8, la forme creuse de cette bride permet par ailleurs de rapprocher l'injecteur le plus près possible de la base des hublots. L'enceinte repose sur le premier plateau de la bride à laquelle elle est vissée. Le deuxième plateau constitue la base d'une chambre servant à laminariser l'écoulement d'air.



**Figure 2.8:** Coupes schématiques de la bride en acier inoxydable formant la base de l'enceinte (dimensions en mm, angle en °)

Dans cette chambre de tranquillisation, un premier étage est garni de laine métallique afin de constituer un milieu poreux, assurant une forte perte de charge et une répartition de l'air sur l'ensemble de la surface. Un deuxième étage constitué par des billes de verre insérées entre plusieurs grilles en laiton est ajouté. L'air pénètre alors à la base de l'enceinte par la chambre de tranquillisation (Figure 2.9) et est finalement distribué à l'intérieur de l'enceinte à travers une plaque perforée en acier inoxydable, dont les trous de diamètre 1 mm sont régulièrement répartis, ce qui permet une distribution relativement homogène de l'écoulement d'air chaud autour du jet de gouttes.



**Figure 2.9:** Schéma de la chambre de tranquillisation de l'écoulement de l'air.

#### 1.4. Le circuit d'air :

L'écoulement d'air chaud entourant les gouttes doit être le moins turbulent possible afin de ne pas perturber le jet de gouttes. Le débit d'air chaud servant à échauffer les gouttes et à évacuer la vapeur de l'enceinte doit être faible au regard de la vitesse des gouttes. Un débit d'air de  $20 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  (à température ambiante) représentant une vitesse dans l'enceinte à  $540^\circ\text{C}$  de  $V_\infty=0,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  ( $Re\sim 500$ ) est fixé et jugé suffisant pour empêcher l'enceinte d'être saturée en vapeur de combustible. En effet, en comparant le temps de diffusion radial de la vapeur  $\tau_1$  au temps  $\tau_2$  lié à l'advection de la vapeur par l'écoulement d'air sur la hauteur de l'enceinte  $d_e$ , il vient:

$$\frac{\tau_1}{\tau_2} = \frac{R_e^2 V_\infty}{a_v d_e} \sim 340 \quad (2.11)$$

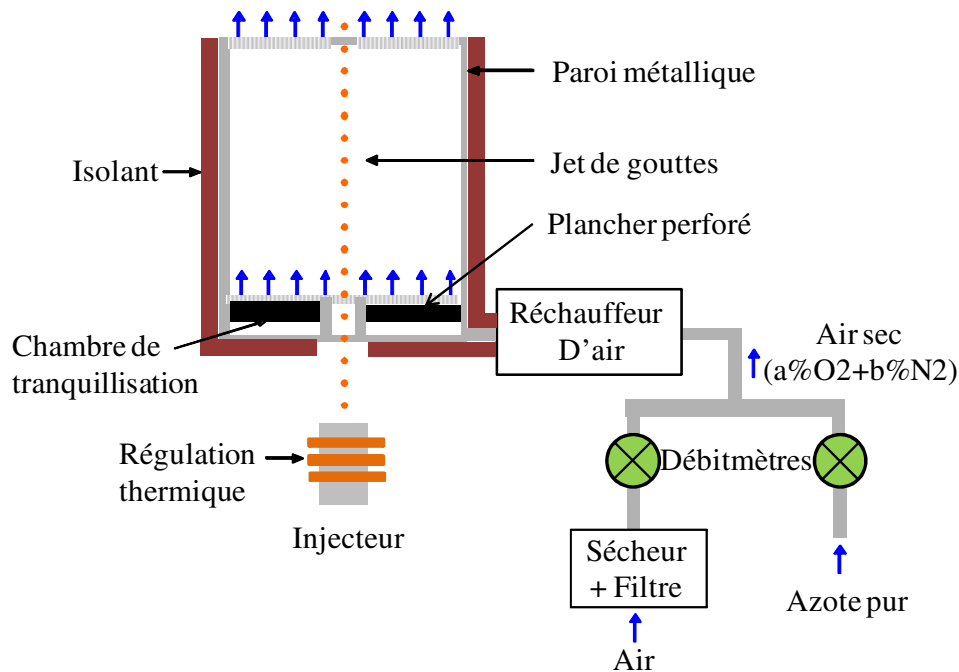
avec  $\tau_1 = R_e^2 / a_v$  et  $\tau_2 = d_e / V_\infty$  (avec).

où  $a_v$  est la diffusivité de la vapeur de combustibles dans l'air (de l'ordre de  $10^{-5} \text{ m}\cdot\text{s}^{-2}$  pour les combustibles utilisés) et  $R_e$ , le rayon de l'enceinte. Ainsi, le temps de diffusion de la vapeur dans l'enceinte est très supérieur au temps nécessaire à l'évacuation de cette vapeur par l'écoulement d'air, il n'y a donc aucun risque d'apparition d'un phénomène de saturation.

La vitesse des gouttes étant de l'ordre de  $10 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , la vitesse relative des gouttes par rapport au gaz environnant sera très proche de leur vitesse absolue.

L'air provenant du réseau d'air comprimé à 7 bars est tout d'abord séché afin de supprimer toute trace de vapeur d'eau naturellement présente et ainsi de se prémunir des variations de composition de l'air et d'éventuels problèmes liés à la condensation de la vapeur d'eau sur les gouttes de combustible. L'air ainsi séché et filtré passe par un poste de détente puis par un débitmètre régulateur permettant de régler finement le débit souhaité. De plus, un circuit d'azote pur est installé en parallèle (Figure 2.10) et permet par injection dans le circuit d'appauvrir celui-ci en oxygène pour empêcher si besoin l'inflammation du combustible injecté dans l'enceinte à haute température.





**Figure 2.10:** Schéma fonctionnel de l'enceinte à haute température et du circuit d'alimentation en air chaud.

Le chauffage de l'air est réalisé juste avant l'entrée dans l'enceinte. Un réchauffeur de marque Leister (modèle Mini Sensor) d'une puissance de 800 W permet d'amener un débit d'air d'environ  $20 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  à une température de  $700^\circ\text{C}$  grâce à une régulation en cascade. Afin de limiter les pertes thermiques, l'appareil est positionné le plus près possible de l'enceinte et l'embout du réchauffeur a été partiellement isolé afin de diminuer les pertes thermiques au niveau de l'échangeur. Le réchauffeur d'air est l'élément clé du contrôle de la température ambiante de l'enceinte, dans laquelle évolue de jet de gouttes. Néanmoins, la température de l'air peut décroître très rapidement dans l'enceinte du fait des pertes thermiques au niveau des parois. Il est ainsi nécessaire de limiter ces pertes par l'ajout d'une autre source de chaleur contrôlée provenant des parois et par une isolation thermique efficace.

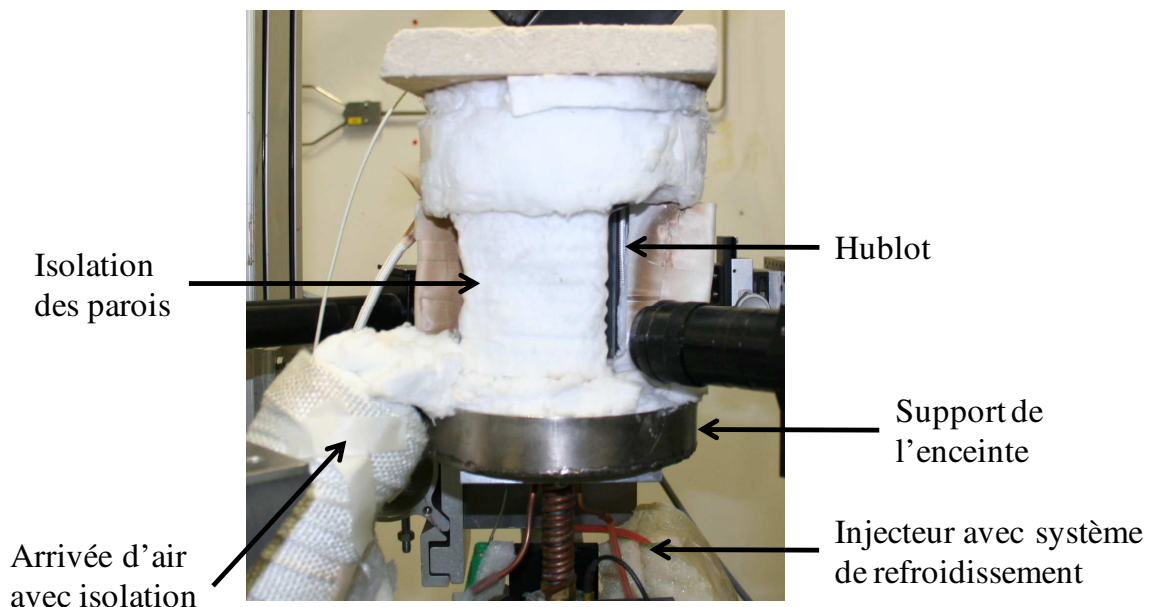
### 1.5. Dispositif de chauffage des parois et isolation thermique

Deux fils résistifs chauffants haute température ( $900^\circ\text{C}$ ) insérés dans une gaine tressée en quartz, développant chacun une puissance de 170 W pour une longueur d'un mètre ont été utilisés afin de chauffer dans un premier temps le tuyau d'arrivée d'air en sortie du réchauffeur et la base de l'enceinte puis les parois situées entre les hublots, ainsi que la partie supérieure de l'enceinte. Ces fils chauffants permettent ainsi de maintenir l'air préchauffé à une température élevée et constante et de chauffer les parois de l'enceinte de manière relativement homogène à une température de près de  $540^\circ\text{C}$ .

Afin d'obtenir un dispositif sécurisé pour l'expérimentateur qui peut être amené à effectuer un certain nombre de réglages lors des expériences et afin de limiter les pertes thermiques, il est nécessaire d'isoler le plus efficacement possible le dispositif. Déprédurand [17] avait utilisé

une enveloppe en céramique, ce type de matériau présentant de bonnes propriétés thermomécaniques. Toutefois la faible qualité d'isolation des céramiques ainsi que la difficulté de conception d'une coque cylindrique rigide présentant un faible rayon de courbure nous a contraints à rechercher une autre solution.

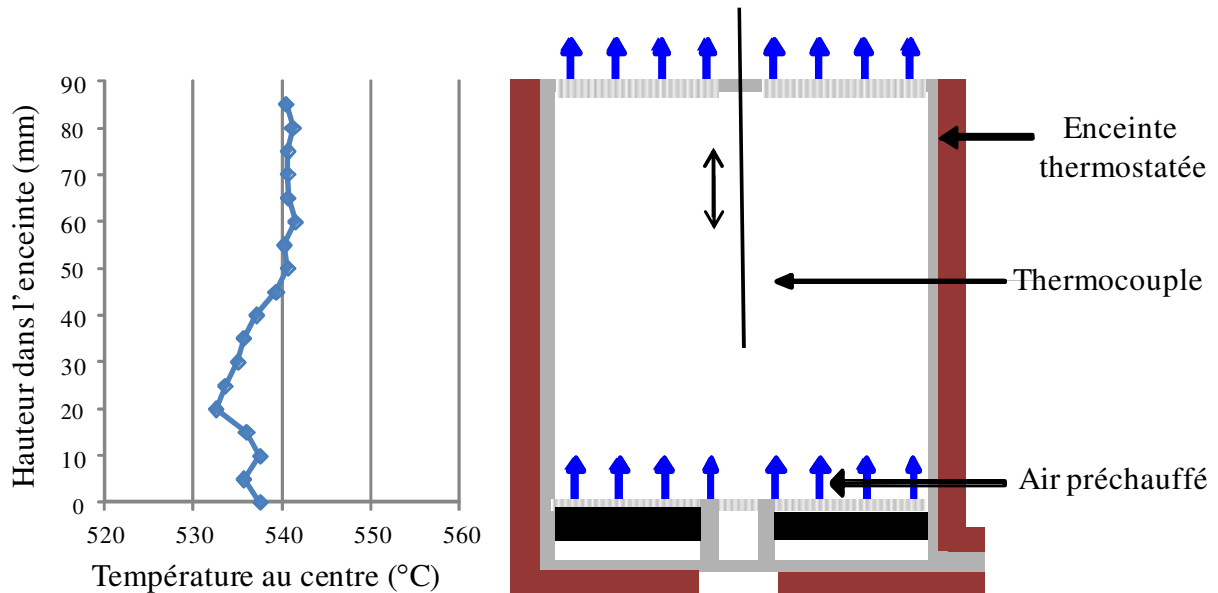
Dans le but d'obtenir une isolation performante de l'enceinte, deux types de matériaux isolants ont alors été utilisés: un premier isolant rigide (dénommé Board 607 85) de faible densité, sur lequel repose l'enceinte, peut résister à une température de 1000°C et possède une conductivité thermique de  $0,07 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  à 300°C. Il permet de limiter les pertes thermiques par conduction à travers le support de l'enceinte et de protéger ainsi les parties accessibles à l'expérimentateur. Un deuxième matériau, visible sur la Figure 2.11, dénommé Superwoolblanket 607, souple cette fois et d'épaisseur 61 mm permet d'isoler efficacement le fil chauffant en recouvrant totalement l'enceinte. Avec une température d'utilisation allant jusqu'à 1050°C, il possède une conductivité thermique variant de 0,05 à  $0,22 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  pour une plage de température allant de l'ambiante à 1000°C. Des fenêtres ont été aménagées en découpant l'isolant au niveau des hublots, laissant les accès optiques libres.



**Figure 2.11:** Photographie de l'enceinte entièrement isolée.

Dans des conditions de réglage nominale (température du réchauffeur=700°C, puissance des fils chauffants=170 W, débit d'air à l'entrée du réchauffeur=20 L.min<sup>-1</sup>), le profil de température interne à l'enceinte a été déterminé grâce à un thermocouple fixé sur un bras surplombant l'enceinte, pouvant être déplacé verticalement. Ceci permet ainsi une mesure positionnée précisément au centre de l'enceinte sur le trajet même des gouttes et ce sans limite de hauteur. Ainsi la température a été acquise tous les demis centimètres depuis la base supérieure de l'enceinte jusqu'à un centimètre au-dessus des hublots. Il a été noté que seule une température d'air à l'entrée de l'enceinte plus élevée que les parois permettaient d'obtenir un champ de température homogène à l'intérieur de l'enceinte. La chauffe des parois reste malgré tout cruciale afin de maintenir constante la température intérieure à l'enceinte.

Pour des parois à une température de 540°C et une température d'air à la sortie du réchauffeur de 700°C, il est possible d'obtenir une température de 540°C environ à l'intérieur de l'enceinte pour une vitesse débitante de 0,3 m.s<sup>-1</sup>. La très bonne homogénéité du profil (Figure 2.12) rend compte de la qualité du système mis en place et de l'efficacité du type de configuration choisi.



**Figure 2.12:** Profil de température au centre de l'enceinte, acquis à l'aide d'un thermocouple de type K.

### 1.6. Dispositif de déplacement et d'orientation:

Le positionnement de l'injecteur par rapport à l'enceinte haute température requière une précision importante, d'une part afin que la tête de l'injecteur soit le plus proche possible de l'entrée de l'enceinte mais sans qu'il y ait de contact direct et d'autre part afin d'orienter précisément le jet de gouttes à l'intérieur de l'enceinte.

A la base de l'enceinte, l'orifice par lequel pénètre le jet de gouttes présente une largeur de 3 mm, ce qui est amplement suffisante pour permettre le passage des gouttes dont le diamètre n'excède pas une centaine de microns. Cependant, comme le jet doit parcourir une hauteur de 2,5 cm entre la sortie de l'injecteur et la base de l'enceinte chauffée (Figure 2.10), un faible écart à la verticalité du jet peut entraîner son contact sur les parois intérieures. Afin de pallier à ces difficultés, l'injecteur repose sur un support composé de deux systèmes de positionnement fin d'une résolution de 10µm : un premier constitué par une platine biaxiale permet le déplacement horizontal de l'injecteur dans deux directions et ainsi l'alignement avec l'entrée de l'enceinte alors qu'un second est constitué d'une platine de rotation deux axes permettant d'orienter verticalement le jet suivant deux directions.

Afin de réaliser les différentes mesures à différentes hauteurs sur le train de gouttes (diamètre, vitesse, température), l'ensemble des dispositifs optiques est maintenu fixe afin d'obtenir la

superposition des volumes de collection des signaux optiques et des dispositifs d'excitation ou d'éclairage, ce qui garantit en chaque point de mesure des conditions optiques identiques.

L'ensemble constitué par l'injecteur, l'enceinte ainsi que l'ensemble des dispositifs assurant le chauffage de l'air (Figure 2.10) est maintenu par un même support positionné sur un robot triaxial dont la précision des déplacements est de 14  $\mu\text{m}$ . Il est donc possible, grâce à ce dispositif, de déplacer l'enceinte et le jet indépendamment des systèmes de mesure optique et par ailleurs l'injecteur indépendamment de l'enceinte. L'ensemble des dispositifs optiques et l'injecteur de gouttes monodisperse étant très sensible aux vibrations extérieures, le banc expérimental est positionné sur une table optique anti-vibration.

## 2. Choix des combustibles

L'objectif est d'étudier l'évaporation de combustibles monocomposant et multicomposant à haute température. Parmi les combustibles monocomposant, une large gamme de combustibles de volatilités différentes a été sélectionnée. En ce qui concerne les combustibles multicomposant, il est alors particulièrement intéressant de tester des mélanges de corps purs de volatilités très différentes. Dans cette optique, une large gamme de combustibles a été utilisée.

### 2.1. Composants purs

L'éthanol et différents alcanes présents dans les carburants usuels seront testés. Un composé plus singulier que l'on retrouve dans les biocarburants, le butyrate de méthyle a aussi été sélectionné.

La masse molaire et la température d'ébullition à la pression atmosphérique de ces combustibles sont rappelées dans le Tableau 2.1.

Produits	Formule chimique	Masse molaire (g/mol)	Température d'ébullition ( $^{\circ}\text{C}$ )
Acétone	$\text{C}_3\text{H}_6\text{O}$	58,08	56,1
Ethanol	$\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$	46,07	78,4
Méthyle-butyrate	$\text{C}_5\text{H}_{10}\text{O}_2$	102,13	102,0
Isohexane	$\text{C}_6\text{H}_{14}$	86,18	60,3
Heptane	$\text{C}_7\text{H}_{16}$	100,20	98,4
Octane	$\text{C}_8\text{H}_{18}$	114,23	125,7
Décane	$\text{C}_{10}\text{H}_{22}$	142,28	174,0
Dodécane	$\text{C}_{12}\text{H}_{26}$	170,33	216,3
Hexadécane	$\text{C}_{16}\text{H}_{34}$	226,44	286,9

**Tableau 2.1:** Masse molaire et température d'ébullition à pression atmosphérique des corps purs utilisés.

Lors des études effectuées, il a été observé que le traceur fluorescent qui sera utilisé pour la mise en œuvre de la technique de fluorescence induite par laser (le pyrrométhène 597-8c9)

pouvait être perturbé par la présence d'impuretés en solution. En conséquence, une attention particulière a été portée sur la qualité des composants chimiques utilisés afin d'obtenir les mesures les plus fiables possibles et de disposer d'une bonne connaissance des propriétés physiques de ceux-ci. Le Tableau 2.2 présente l'origine des composants chimiques utilisés ainsi que leur degré de pureté.

Produits	Formule chimique	Degrés de pureté	Source
Acétone	$C_3H_6O$	99% min	Fisher Scientifique
Ethanol	$C_2H_6O$	99,5% min	GPR Rectapur
Méthyle-butyrate	$C_5H_{10}O_2$	98% min	Alfa Aesar
Isohexane	$C_6H_{14}$	99% min en isomère 60% min en isohexane	Mercks
Heptane	$C_7H_{16}$	99% min	Alfa Aesar
n-Octane	$C_8H_{18}$	98% min	Alfa Aesar
Décane	$C_{10}H_{22}$	99% min	Alfa Aesar
Dodécane	$C_{12}H_{26}$	99% min	Panreac
Hexadécane	$C_{16}H_{34}$	99% min	Alfa Aesar

**Tableau 2.2:** Provenance et degré de pureté et sources des combustibles utilisés.

L'isohexane est en fait constitué par un mélange de différents isomères. Toutefois, les propriétés physiques de ceux-ci étant très proches, notamment en ce qui concerne la température d'ébullition ; ainsi, ce mélange d'isomères sera considéré par la suite comme représentatif du comportement de l'isohexane pur.

## 2.2. Mélanges binaires

Différents mélanges de composants seront étudiés. Dans tout les cas, il a été vérifié que les mélanges obtenus ne s'écartaient pas significativement de mélanges idéaux. Les mélanges considérés sont :

- isohexane/n-dodécane
- isohexane/n-heptane
- n-dodécane/n-heptane

## 2.3. Mélange ternaire

Un mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isohexane représentant en termes de volatilité, un composé lourd, un moyen et un léger a été étudié. Une fois de plus, il a été vérifié que les mélanges obtenus ne s'écartaient significativement pas de l'idéalité.

### 3. Mesure de la taille et de la vitesse des gouttes par ombroscopie quantitative

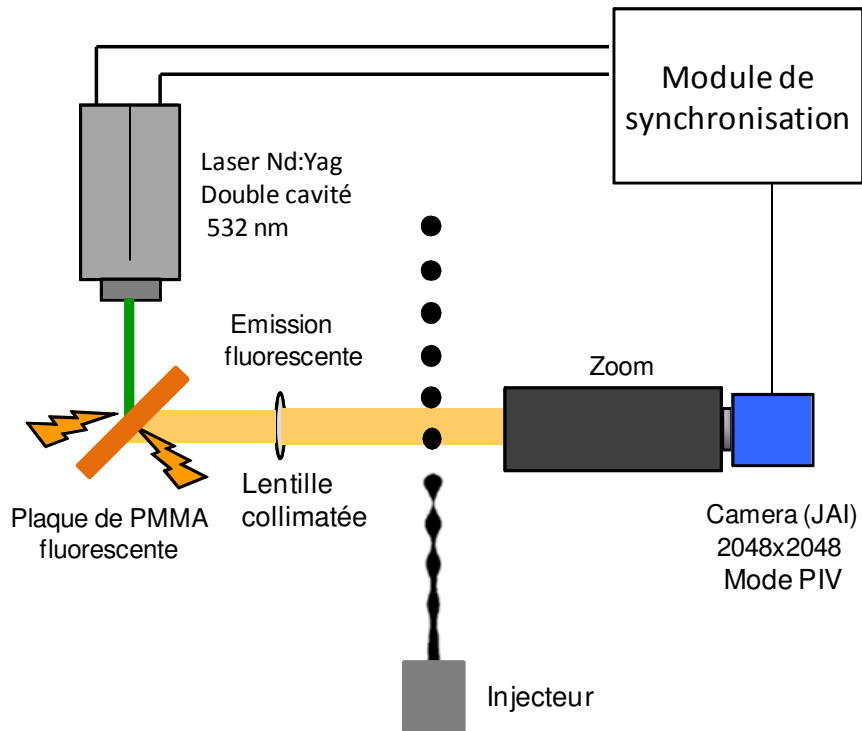
La taille et la vitesse des gouttes ont été mesurées conjointement par ombroscopie quantitative. L'intérêt réside dans l'utilisation d'un système relativement simple par rapport aux techniques couramment utilisées tels que l'interférométrie en diffusion avant, utilisée précédemment dans les travaux de Deprédurand [17] ou la granulométrie phase Doppler (Castanet [62]). Ainsi, la technique d'ombroscopie rapide permet la mesure locale et instantanée de la vitesse et du diamètre des gouttes. De plus, la technique développée ici s'avère être efficace pour déterminer ces grandeurs avec une très bonne précision, ce qui est totalement indispensable pour correctement estimer le flux de masse évaporé.

L'ombroscopie consiste à exploiter l'image de goutte éclairée par l'arrière, c'est-à-dire lorsque la source d'éclairage est placée face au dispositif d'imagerie, l'objet à imager se trouvant entre les deux. La technique peut être rendue quantitative et très précise par un traitement de l'image approprié.

#### 3.1. Dispositif optique

Le dispositif optique utilisé pour la mesure de taille et de vitesse est schématisé sur la Figure 2.13. La source d'excitation est constituée par un laser Nd-Yag doublé en fréquence ( $\lambda=532$  nm), pulsé et à double cavité, dont le diamètre du faisceau à  $1/e^2$  est de 6 mm. Ce faisceau est focalisé par une lentille convergente de courte focale sur une plaque de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) fluorescent, vendu sous la marque commerciale PERSPEX (modèle 4T56, couleur Mars Red). La plaque de PMMA fluorescent absorbe en partie le faisceau émis par le laser et réémet un flash fluorescent dont la durée est de l'ordre du temps de vie de la fluorescence, soit environ 10 ns. La plaque de PMMA et en particulier le point d'impact du faisceau laser sont positionnés à la distance focale d'une lentille convergente, ce qui permet de créer un faisceau fluorescent collimaté. Ainsi, ce faisceau collimaté permet de créer une source d'éclairage impulsionnelle des gouttes de très courte durée et exempt de tout phénomène interférométrique de type speckle. La plaque de PMMA est utilisée en réflexion, à  $45^\circ$  par rapport au faisceau laser, car au bout d'une certaine durée d'utilisation, les plaques de PMMA peuvent être percées par le faisceau laser qui risquerait alors d'atteindre directement le capteur de la caméra CCD et ainsi la détruire.

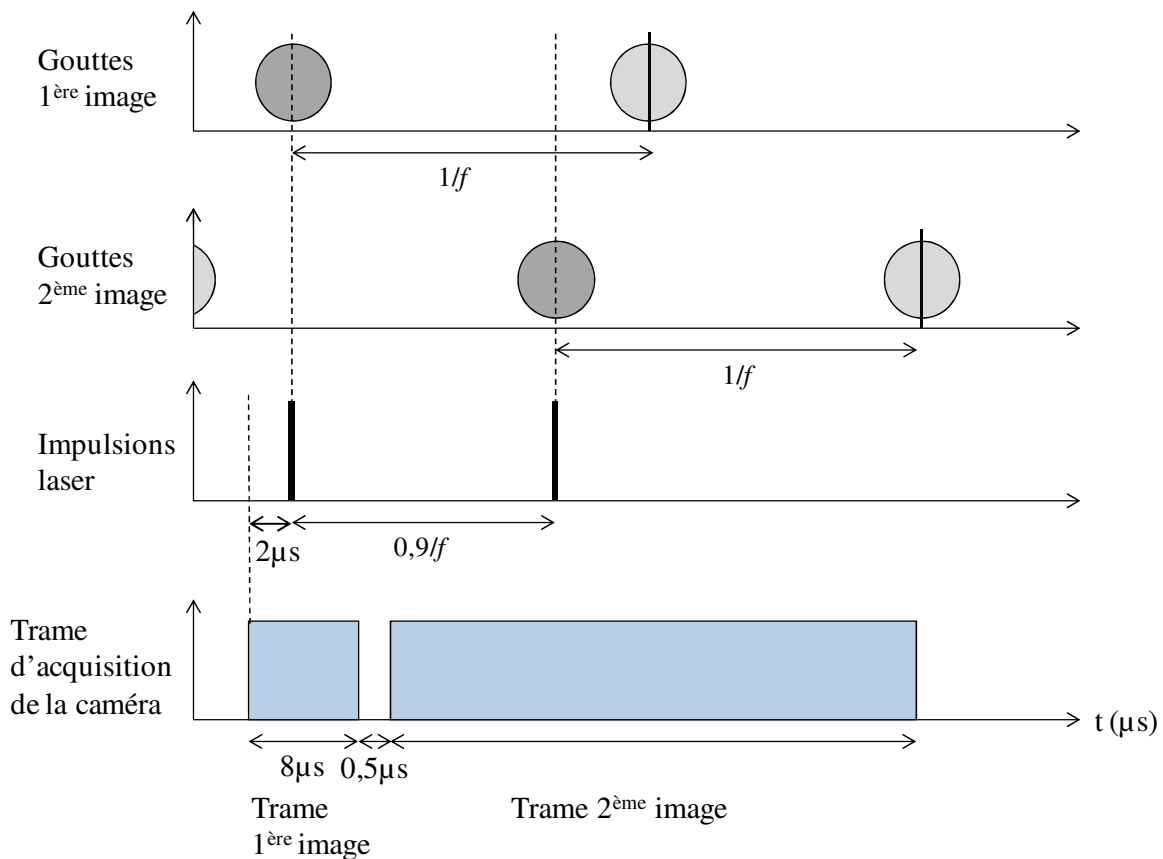
La durée du pulse laser est d'environ 5 ns et la durée de vie de fluorescence de la plaque PMMA est aussi de l'ordre d'une dizaine de nanosecondes : en conséquence, il n'y a pas d'effet de flou sur l'image des gouttes se déplaçant à une dizaine de m/s obtenue en éclairage ombroscopique à l'aide du faisceau fluorescent, quelque soit le grandissement et le temps d'intégration utilisé pour la caméra.



**Figure 2.13:** Dispositif expérimental pour la mesure de taille et de vitesse des gouttes par ombroscopie.

Un boîtier de synchronisation diviseur de fréquence permet de synchroniser les impulsions laser et la fréquence de génération des gouttes (Figure 2.14).

Sur le diagramme temporel de la Figure 2.14, le premier temps d'exposition de la caméra se déclenche  $2 \mu\text{s}$  avant le déclenchement de l'impulsion laser et dure  $8 \mu\text{s}$  pour l'acquisition de la première image. Puis après un court délai de  $500 \text{ ns}$ , un second temps d'exposition est généré pendant le transfert sur le disque dur de l'ordinateur de la première image acquise durant le premier temps d'exposition. Le deuxième temps d'exposition se poursuit jusqu'à ce que la première image soit transférée entièrement, qui est donc nettement plus long que lors de la première image. Le transfert de la deuxième image vers la mémoire de l'ordinateur commence alors.



**Figure 2.14:** Diagramme temporel de synchronisation du signal au niveau du déclenchement des impulsions laser et des temps d'acquisition de la caméra par rapport à la position des gouttes.

L'intervalle de temps  $dt$  entre les deux impulsions laser est fixé en fonction de la fréquence de génération des gouttes  $f$ . Sa valeur est calculée comme suit :

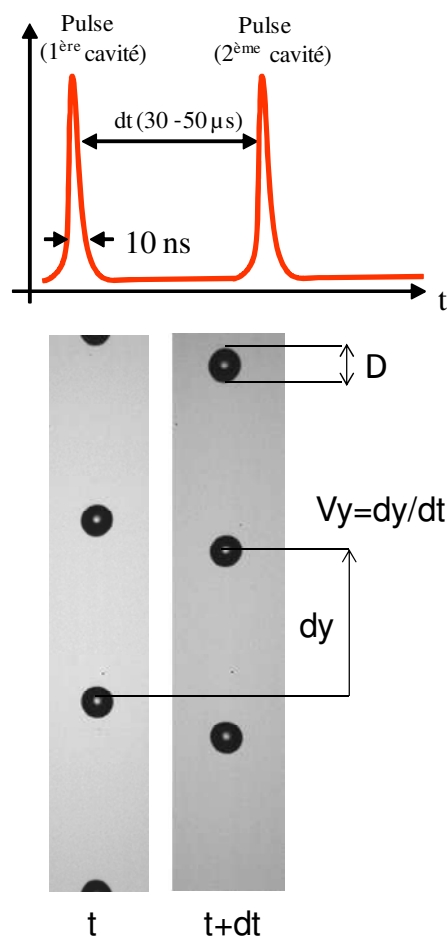
$$dt = 0,90 / f \quad (2.12)$$

Ainsi, il n'y a pas d'ambiguïté sur la position de la goutte imagée entre les deux acquisitions puisqu'elle est localisée au temps  $t_0+dt$  juste après la position de la goutte suivante au temps  $t_0$  comme il apparaît sur les figures 2.1 et 2.3. La gamme de fréquence utilisée variant de 7 à 30 kHz, le temps entre les deux pulses laser varie dans une plage allant de respectivement de 30 à 112  $\mu$ s en conséquence d'après la relation (2.12).

La fréquence de répétition des doubles impulsions laser ne dépasse pas quelques Hz, tout d'abord du fait de la limitation du laser en terme de fréquence de répétition et d'autre part du fait que l'énergie absorbée par les plaques de PMMA n'a pas le temps de relaxer, ce qui entraîne dans ce cas un vieillissement assez rapide des plaques qui peuvent devenir totalement inefficaces après l'obtention de quelques points de mesures seulement. L'intensité des impulsions laser participant aussi au vieillissement des plaques de PMMA est adaptée en fonction du grandissement utilisé pour l'image, ceci afin d'obtenir une image suffisamment nette, sans atteindre une puissance laser trop importante.



Les images en ombroscopie sont enregistrées par une caméra CCD (2048x2048 pixels), utilisée en mode PIV. Cette caméra est équipée d'un zoom OPTEM 125c avec un module doubleur qui permet d'obtenir une résolution de  $0,3 \mu\text{m}/\text{pixel}$  lorsque le grandissement maximum est utilisé. Dans la pratique, le grandissement sélectionné résulte d'un compromis entre la précision sur la mesure de taille, basée sur la comparaison de l'image ombroscopique de la goutte et d'une image de référence aux dimensions connues et celle sur la mesure de vitesse qui est basée sur la mesure du déplacement d'une goutte entre les deux impulsions (Figure 2.14). Le grandissement du zoom est ajusté de telle sorte que le déplacement de deux ou trois gouttes puisse être observé sur une même paire d'image (Figure 2.15). En général, la résolution spatiale standard est d'environ  $1\mu\text{m}/\text{pixel}$ .



**Figure 2.15:** Principe de mesure de la taille et de la vitesse des gouttes avec  $D$  le diamètre de la goutte et  $V_y$  sa vitesse

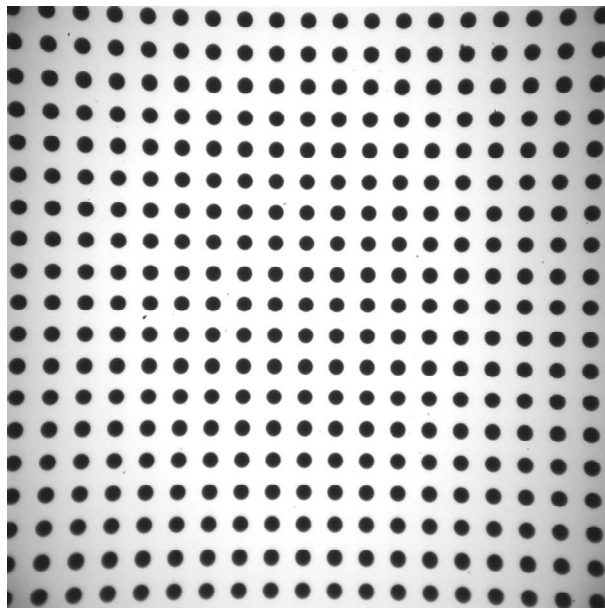
Une cinquantaine de paires d'images est acquise, ce qui permet une étude statistique des mesures du diamètre et de la vitesse sur environ 350 gouttes, 3 à 4 gouttes étant présentes sur chacune des images. Ainsi la précision de la mesure peut-être améliorée pour la détermination de la taille et de vitesse en comparaison à l'utilisation d'une seule paire d'image qui permet néanmoins d'obtenir une excellente estimation. Comme il sera vu plus loin, pour des gouttes dont la masse évaporée est faible et en compétition avec le phénomène de dilatation, cette précision sera particulièrement utile. En effet, des tendances nettes pour une évolution

temporelle du diamètre inférieure au micromètre sont ainsi observables, ceci démontrant l'efficacité du système utilisée.

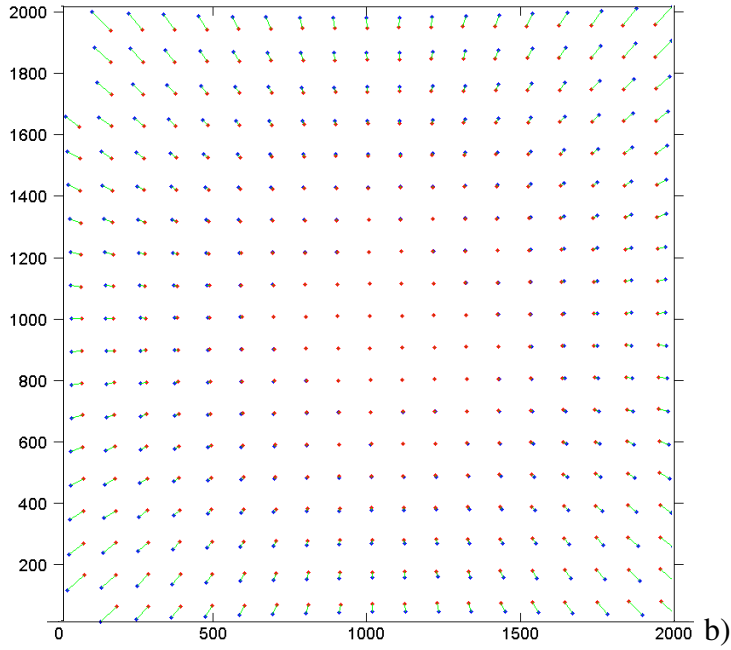
### **3.2. Traitement numérique des images pour la détermination de la vitesse et du diamètre des gouttes**

Afin d'obtenir le diamètre et la vitesse des gouttes avec une bonne précision, il est nécessaire d'effectuer un traitement numérique des images acquises par la caméra.

Pour la détermination de la vitesse et du diamètre des gouttes, le post-traitement d'images est basé sur une correction de la distorsion de l'image qui peut être importante lorsqu'un fort grandissement est utilisé. Afin de corriger ce phénomène, une grille de points périodiquement espacés est imagée par la caméra (Figure 2.16-a). Une transformation spatiale est générée à partir des coordonnées connues des points de la grille (Figure 2.16-b). Il est alors possible d'en déduire le facteur de grandissement en connaissant la distance entre les points de la grille. La distorsion de l'image n'affecte pas les points près du centre de l'image comme on peut le voir sur la Figure 2.16.



a)



**Figure 2.16-a:** Image de la grille de points régulièrement espacés de  $150 \mu\text{m}$  pour un zoom de la caméra de 4.0 en **b-** Transformation spatiale prenant en compte la distorsion pour les points de la grille de l'image a.

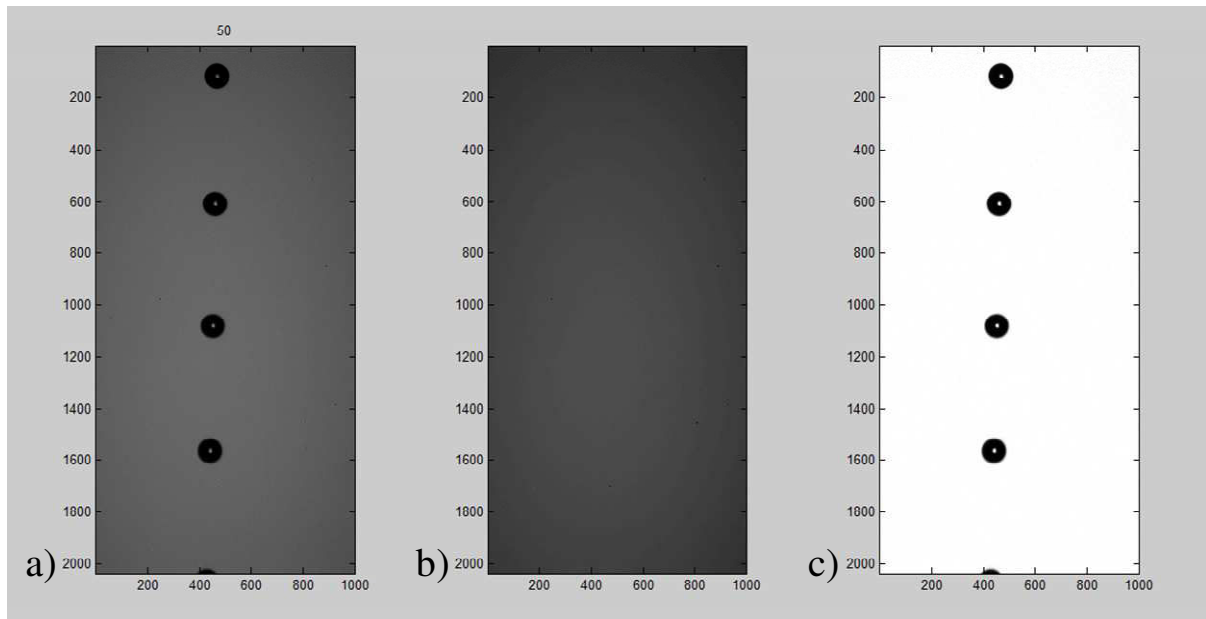
Comme les points de la grille sont régulièrement espacés, il devient possible d'estimer la position de tous les points dans le cas où il n'y a pas de distorsion. En notant  $(x_i, y_i)$ , les coordonnées du  $i^{\text{ème}}$  point de l'image de la grille et  $(u_i, v_i)$  ses coordonnées sans distorsion, il est possible d'adopter la formulation suivante :

$$\begin{bmatrix} u_i & v_i \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & x_i & y_i & x_i y_i & x_i^2 & y_i^2 & x_i^2 y_i & x_i y_i^2 & x_i^3 & y_i^3 \end{bmatrix} \cdot T \quad (2.13)$$

où la matrice de distorsion  $T$  est de dimension  $10 \times 2$ . Les éléments de la matrice  $T$  sont déterminés par utilisation de la méthode des moindres carrés. En définitif, une transformation est appliquée à chacun des pixels de l'image à l'aide d'un polynôme du troisième ordre, défini par la matrice  $T$  de l'équation (2.13). En ce qui concerne la précision de cette correction, la difficulté réside dans le positionnement de la cible de points qui doit être parfaitement perpendiculaire à l'axe optique et dans le plan focal de l'objectif.

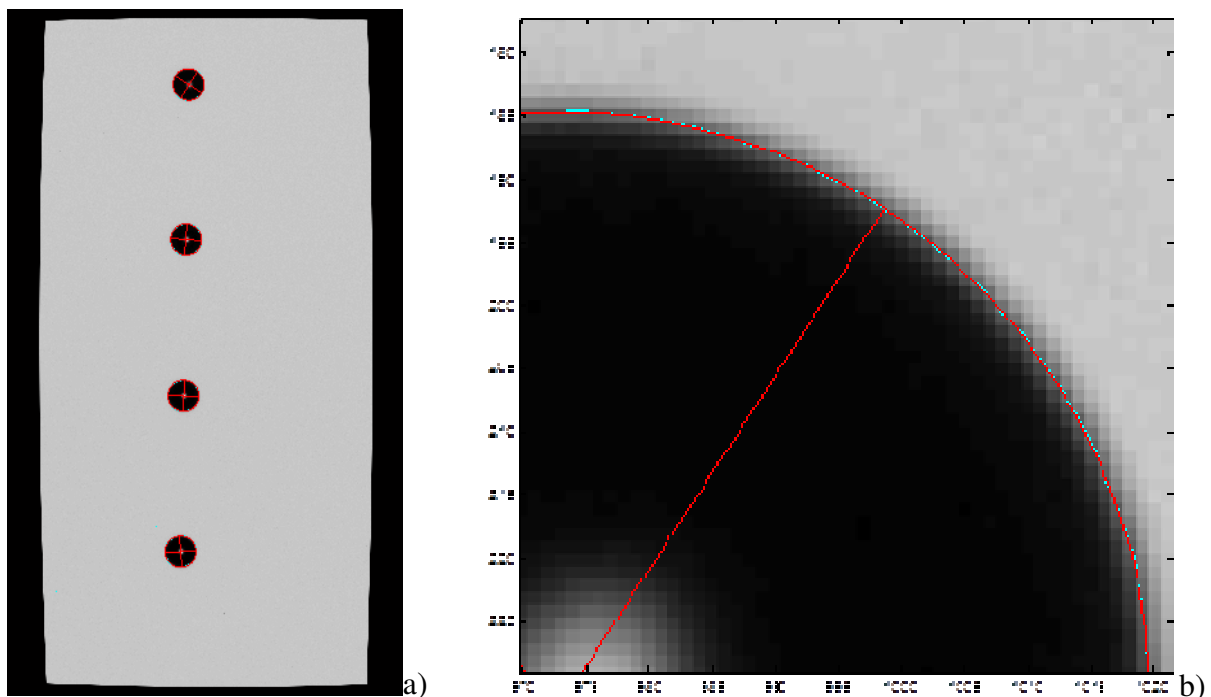
L'étape suivante consiste à corriger la non-uniformité du fond de l'image, ce qui représente la principale difficulté pour le traitement des images. De plus, des variations de niveaux de gris peuvent être causées par les instabilités de puissance des doubles impulsions laser. Ainsi, un ensemble de 50 paires d'images des gouttes est acquis en suivant le schéma chronologique décrit précédemment (Figure 2.14). Une image de fond est reconstituée à partir de ces images en moyennant pour la position d'un pixel donné les valeurs d'intensité de ce pixel provenant de chacune des images. Afin de ne pas prendre en compte les pixels les plus sombres représentant l'ombre générée par les gouttes dans le calcul du fond d'image, une condition sur les niveaux d'intensité est appliquée. Ce traitement est schématisé sur la Figure 2.17: pour chaque image comportant des gouttes (-a), l'intensité des pixels est divisée par l'intensité du pixel correspondant de l'image de fond générée (-b). Les niveaux d'intensité sont ensuite

normalisés sur une échelle de 0 à 1 (-c). Afin de repérer les gouttes sur ce fond normalisé, une valeur seuil de 0,5 est fixée pour séparer la goutte du fond de l'image.



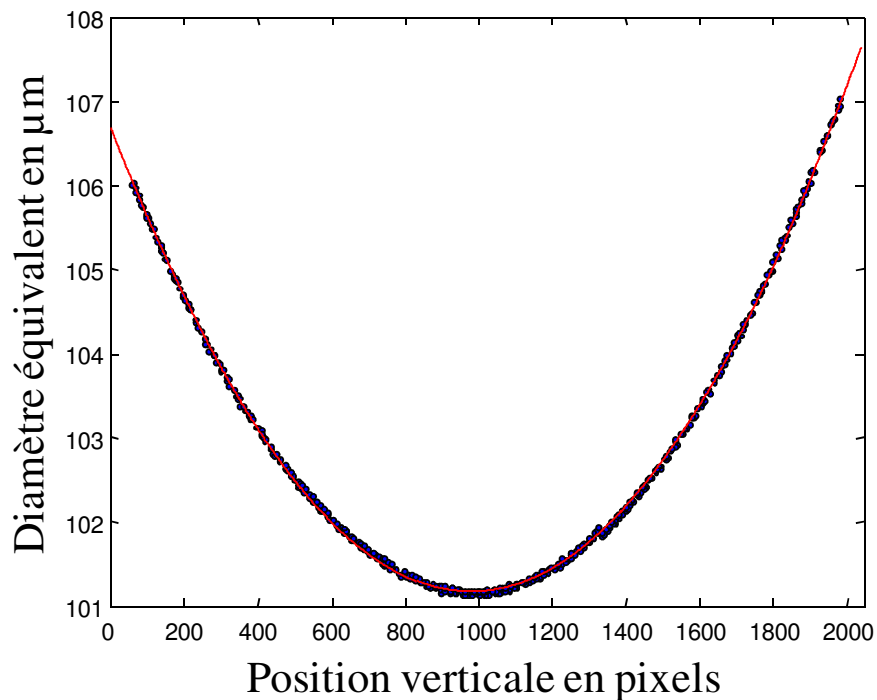
**Figure 2.17-a:** Image des gouttes. **-b** Fond de l'image moyenné d'après un échantillon de 50 paires d'images. **-c** Image normalisée sur une échelle de 0 à 1.

Dans une phase finale, l'ellipse formée par les points formant le contour de la goutte (Figure 2.18) est ensuite interpolée. Le diamètre équivalent de la goutte est basé sur le contour de la surface en supposant une goutte sphérique. Comme le contour est généralement elliptique, le diamètre est déterminé en mesurant le petit axe et le grand axe et en effectuant une moyenne.



**Figure 2.18-a:** Image des gouttes corrigée de la distorsion. **-b** Zoom du contour d'une goutte de l'image -a.

Pour un échantillon de 50 paires d'images sur une même zone de mesure, la Figure 2.19 montre que la taille apparente (sans correction de la distorsion) des gouttes peut s'exprimer sous la forme d'une fonction de la position verticale dans l'image. L'effet de la distorsion concentrique apparaît alors clairement et un polynôme d'ordre deux (en rouge sur la courbe) semble suffisant pour corriger la déformation de l'image en supposant que le train de gouttes se trouve au centre de celle-ci. Ceci constitue une deuxième méthode pour le calcul du diamètre qui est préférée pour sa plus grande précision dans le cas où la parabole apparaît clairement pour un échantillon d'image par rapport à la méthode décrite précédemment, basée sur la moyenne du petit axe et du grand axe de l'ellipse.



**Figure 2.19:** Mesure de la taille apparente des gouttes en fonction de la position verticale en pixels sur les images sans correction de la distorsion. Cette fonction est ensuite utilisée pour la correction de la distorsion.

Le calcul du diamètre se base sur l'hypothèse de gouttes sphériques. En pratique, les erreurs dues à la déformation des gouttes sont souvent très faibles. Cependant, certains cas peuvent poser problème : pour les points de mesure les plus proches du point d'injection, des gouttes de taille importante peuvent être suffisamment déformées pour ne pas permettre une interpolation précise du diamètre et ces points sont par conséquent rejetés.

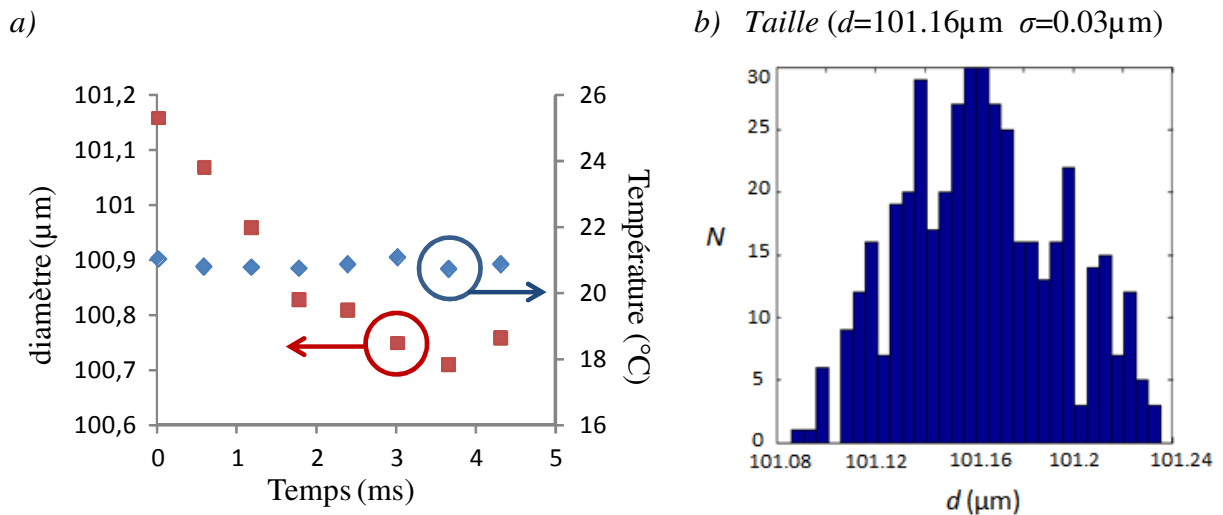
A partir de l'image corrigée de la distorsion, le centre de l'ellipse qui est considéré comme étant le centre de la goutte est utilisé pour la détermination de la vitesse. La vitesse est alors calculée par le rapport entre la distance entre le centre de l'ellipse pour la même goutte imagée sur une paire d'image et le temps entre les deux impulsions laser générant la paire d'image.

Dans la pratique, une autre méthode consiste à utiliser directement la périodicité des gouttes. En effet, connaissant la fréquence  $f$  de passage des gouttes et la distance séparant les gouttes à une position donnée, le diamètre se calcule suivant:  $Vy=fd$ .

Ainsi, il n'est pas nécessaire ici d'avoir une paire d'image, le calcul s'effectuant entre les gouttes d'une même image.

### 3.3. Précision des mesures

La précision absolue de la détermination de la taille des gouttes est directement reliée à la résolution spatiale de la technique, qui est de l'ordre de  $1\mu\text{m}$ . En revanche, la précision reliée à un ensemble d'images prises dans les mêmes conditions peut être fortement améliorée grâce à la convergence statistique. Afin de tester la précision de la mesure, la méthode a été utilisée sur un train de gouttes de dodécane injectées dans des conditions isothermes et a permis de mesurer le diamètre initial des gouttes qui est de  $101,16\mu\text{m}$  et la vitesse initiale qui est de  $8,77\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  pour le premier point de mesure. L'acquisition s'est portée sur une centaine de paires d'images, ce qui s'est révélé largement suffisant pour assurer la convergence statistique des données, avec un écart type ( $\sigma$ ) de seulement  $0,03\mu\text{m}$  pour la taille et  $0,07\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  pour la vitesse. Sur la Figure 2.20, présentant l'évolution du diamètre des gouttes de dodécane en fonction du temps (la distance entre le point de mesure et le point d'injection étant obtenue grâce à la mesure de vitesse), une très faible décroissance du diamètre (inférieure à  $1\mu\text{m}$ ) peut ainsi être observée. Cette très faible décroissance peut être attribuée à une très faible évaporation. Le profil de température (mesurée par le technique 2cLIF qui sera décrite au chapitre suivant) confirme l'hypothèse de conditions isothermes recherchées. L'histogramme des tailles construit sur 50 images de gouttes instantanées confirme cette très faible dispersion de la mesure du diamètre (Figure 2.20-b)

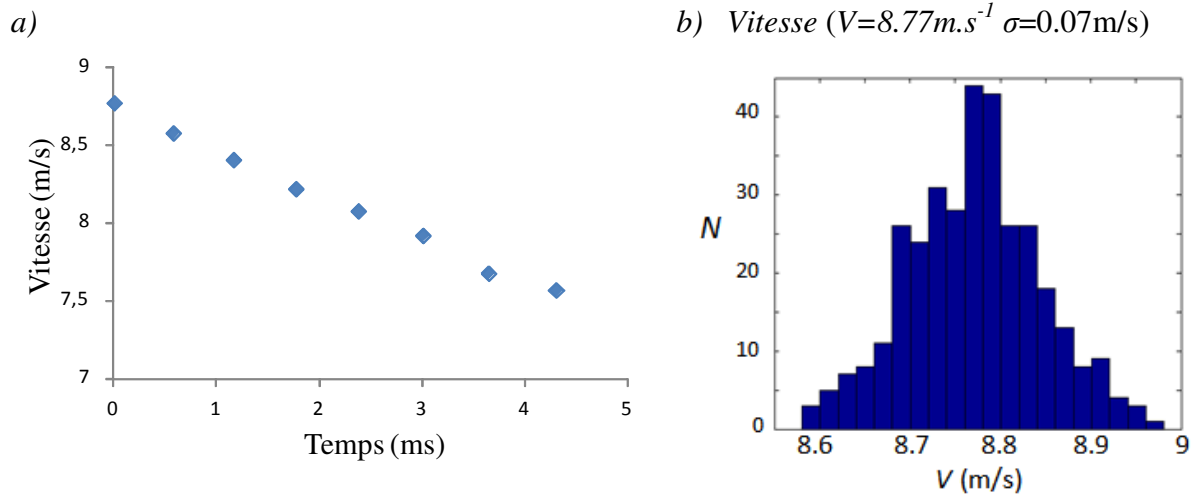


**Figure 2.20-a:** Evolution de la taille et la température des gouttes de dodécane injectées sous des conditions isothermes dans de l'air à  $21^{\circ}\text{C}$  ( $D_0= 101,2\mu\text{m}$  pour  $n$ -dodécane). **-b** Distribution des mesures de taille obtenues à la hauteur du premier point de mesure (à  $t=0$  ms) dans le cas d'un jet de goutte de dodécane présenté en -a.

La mesure de la vitesse peut être facilement obtenue grâce aux paires d'images prises en mode PIV par la caméra. Ainsi, la vitesse  $\underline{V}_y$  est déterminée par la distance  $dy$  parcourue par le

centre d'une goutte, centre qui a été précédemment repéré sur l'image lors de la mesure de taille, durant l'intervalle de temps  $dt$  séparant deux impulsions laser :  $V_y = dy/dt$ .

Enfin, une moyenne est effectuée sur toutes les gouttes dont le centre a pu être déterminé par post-traitement sur les paires d'images. Dans le cas de la Figure 2.20, la vitesse pour chaque point de mesure a été déterminée par cette méthode, ce qui permet la conversion en temps de la distance entre les points de mesure. L'évolution de la vitesse en fonction du temps est représentée sur la Figure 2.21-a. La Figure 2.21-b représente l'histogramme des vitesses construit sur 50 paires d'images.



**Figure 2.21-a:** Evolution temporelle de la vitesse de gouttes de dodécane injectées dans des conditions isothermes dans de l'air à 21°C ( $D_0 = 101.2 \mu\text{m}$ ). **-b** Distribution des mesures de vitesses obtenues à la hauteur du premier point de mesure (à  $t=0$  ms) dans le cas d'un jet de goutte de dodécane présenté en -a

Sur la Figure 2.21, la décroissance de la vitesse peut être observée, du fait de l'effet combiné des forces de gravité et de traînée, la vitesse passant de 8,8 à 7,5  $\text{m.s}^{-1}$  en un peu plus de 4  $\mu\text{s}$ .

Pour le premier point de mesure, le temps entre les deux impulsions laser est de  $dt=40\mu\text{s}$ , l'incertitude liée au déclenchement sur chaque cavité laser (jitter) étant inférieure à  $\Delta t=2$  ns. L'incertitude sur la distance entre le centre de deux gouttes successives  $\Delta d$  dépend de la détermination de l'ellipse formant le contour de la goutte dont le centre en est extrait ; dans le cas présent, cette valeur est majorée en se basant sur les incertitudes liées à la détermination du diamètre multipliées d'un facteur 2 ( $\Delta d=2\mu\text{m}$ ), les incertitudes liées à la détermination du centre des deux gouttes qui forme cette distance  $d$  s'additionnant. L'incertitude sur la détermination de la vitesse  $V_y$  est alors donnée par :

$$\frac{\Delta V_y}{V_y} = \frac{\Delta d}{d} + \frac{\Delta t}{t} \quad (2.14)$$

soit  $\Delta V_y \leq 2,5 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$

Ainsi, pour le premier point de mesure, l'incertitude sur la vitesse, représentative du cas général, est inférieure ou égale à  $2,5 \cdot 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ . Cette bonne précision est une conséquence de la précision sur la mesure de taille et sur la fiabilité de la synchronisation des deux cavités laser.

## 4. Conclusions

La technique de mesure par ombroscopie quantitative, de par sa grande précision et sa relative simplicité d'utilisation, se présente comme un dispositif particulièrement intéressant pour l'obtention de la taille et la vitesse des gouttes monodispersées dans leur mouvement. La mesure de taille est indispensable à la caractérisation du transfert de masse de la goutte vers la phase gazeuse, transfert de masse intimement lié au transfert de chaleur. Afin d'améliorer la précision sur la caractérisation des nombres de Sherwood et de Nusselt, il est nécessaire de pouvoir mesurer des réductions de diamètre parfois très faibles, de l'ordre de quelques  $\mu\text{m}$  en quelques ms.

Afin d'obtenir une étude complète des transferts, il convient de déterminer la température moyenne de la goutte, utile pour l'étude de la phase d'échauffement des gouttes et la détermination des propriétés thermophysiques du liquide considéré, qui dépendent de la température. Le chapitre suivant sera consacré à la mesure de température des gouttes par fluorescence induite par laser à deux couleurs.



## **Chapitre 3**

Mesure de la température de gouttes mono  
et multicomposant par fluorescence induite  
par laser

# Chapitre 3. Mesure de la température de gouttes mono et multicomposant par fluorescence induite par laser

## 1. La fluorescence induite par laser

### 1.1. Généralités

La mesure de température d'une goutte dont la taille n'excède pas quelques centaines de microns et pouvant se déplacer jusqu'à une vitesse de plusieurs m/s dans une atmosphère hostile (haute température, réactive) constitue un véritable défi technique. La majorité des études sur le sujet ne porte que sur la mesure expérimentale de taille et/ou de vitesse qui fait appel à un large éventail de techniques. Cependant, quelques techniques optiques non-intrusives dédiées à la mesure de température ont été développées, comme la réfractométrie arc-en-ciel, la thermométrie infrarouge, l'exploitation de la diffusion Raman ou encore les mesures fondées sur le phénomène de fluorescence : fluorescence exciplex, fluorescence induite par laser. Toutefois ces techniques présentent chacune des avantages et des inconvénients, des sensibilités différentes à différents paramètres : sphéricité de la goutte, présence de gradients de température à l'intérieur de la goutte, composition du liquide, ...

D'une manière générale, l'utilisation de la fluorescence induite par laser (LIF, pour Laser Induced Fluorescence) afin de mesurer une grandeur physique liée à un milieu ensemencé en espèces fluorescentes, présente de nombreux avantages :

- L'utilisation de la lumière laser, grâce à sa forte densité spectrale d'énergie, à sa cohérence spatiale et temporelle mais aussi à la parfaite connaissance et reproductibilité des caractéristiques de l'onde électromagnétique émise, permet d'induire efficacement la fluorescence,
- Un temps de réponse extrêmement court, du fait de la très faible durée de vie de l'état excité de la molécule fluorescente qui varie typiquement entre  $10^{-6}$  s et  $10^{-9}$  s. L'étude de phénomènes rapidement variables est alors possible,
- Le décalage fréquentiel entre le spectre d'absorption et d'émission de la fluorescence permet de séparer le rayonnement excitateur de l'émission de fluorescence grâce à l'utilisation d'un filtre optique,
- La forte section efficace d'absorption des espèces fluorescentes conduit à un faible seuil de détection, quelques ppm de molécules fluorescentes suffisent pour collecter du signal de fluorescence.

Par ailleurs, la technique LIF a permis de mesurer de nombreuses grandeurs physiques telles que la composition chimique ou la température en phase liquide (Lemoine et al. [65]), ou encore la pression (Lemoine et Leporcq [66]), la composition chimique, la teneur en oxygène en phase gazeuse. Ainsi, la technique LIF s'avère particulièrement adaptée pour répondre aux

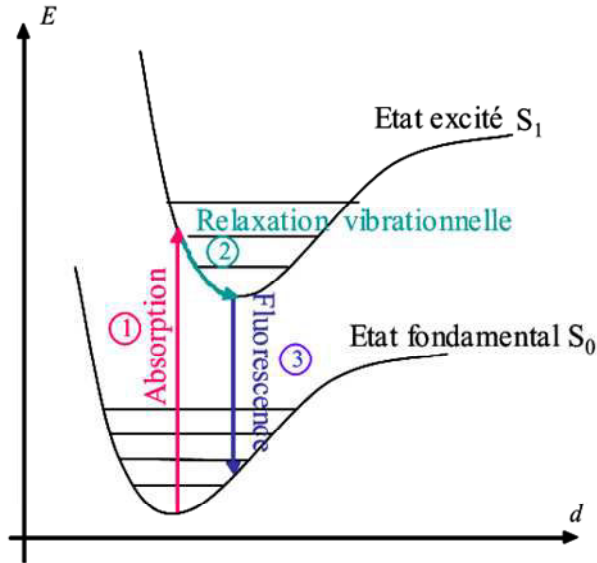
contraintes imposées par la mesure de la température de gouttes de quelques centaines de microns de diamètre en mouvement.

## **1.2.Principes de la fluorescence induite par laser**

Le phénomène de fluorescence correspond à l'émission spontanée de photons du fait de la désexcitation d'une molécule excitée vers un état d'équilibre dit fondamental.

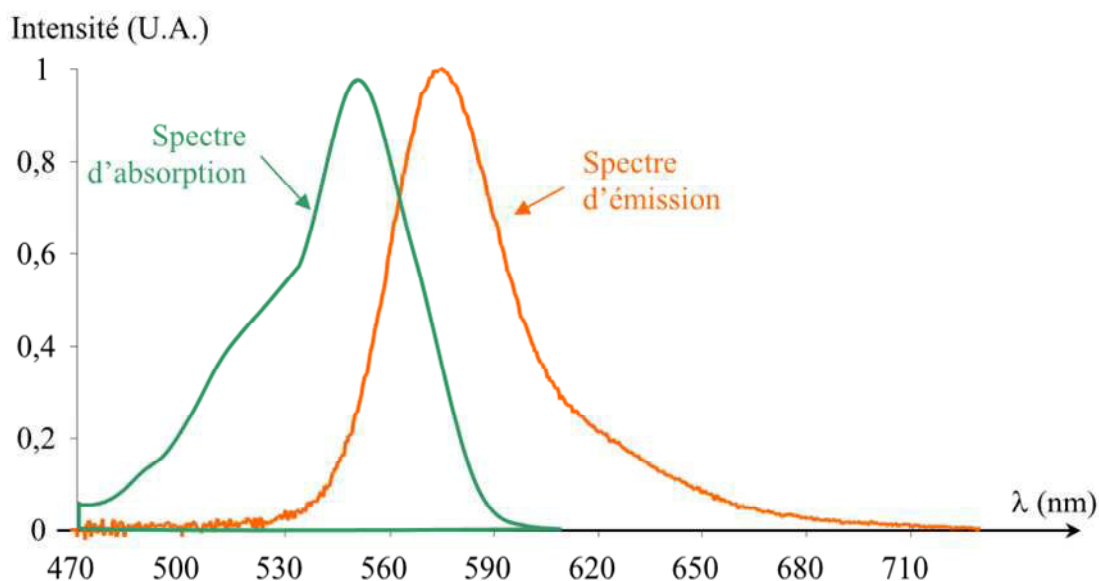
L'excitation d'une molécule peut être produite de différentes façons, par utilisation d'une décharge électrique, par réaction chimique ou encore par absorption d'un rayonnement électromagnétique. Lorsque ce rayonnement est issu d'un laser, on parle de fluorescence induite par laser. En effet, l'utilisation d'un rayonnement laser comme source excitatrice permet de fournir une forte densité d'énergie sur une bande spectrale très réduite. Cette bande spectrale est accordée sur le spectre d'absorption de la molécule fluorescente afin de générer le phénomène de fluorescence.

Après excitation par un rayonnement électromagnétique, la molécule se trouve dans un état excité de type singulet, instable par nature. Dans un premier temps, une relaxation géométrique à l'état excité permet le passage du niveau vibrationnel atteint vers le plus bas niveau vibrationnel de l'état électronique excité. En effet, selon le principe de Franck-Condon, le temps de transition de l'état fondamental vers l'état excité étant très court (de l'ordre de  $10^{-15}$  s), il n'y a pas de modification de la position géométrique des noyaux atomiques, car les mouvements de rotation et de vibration de la molécule se font avec un temps de l'ordre de  $10^{-12}$  s. Par conséquent, la molécule conserve la configuration géométrique stable de l'état fondamental, mais qui ne correspond plus à un état stable à l'état excité. Afin de retrouver une configuration géométrique stable, il s'ensuit une relaxation vibrationnelle de la molécule vers l'état vibrationnel de plus basse énergie de l'état électronique excité. Il s'en suit que les transitions radiatives vers l'état fondamental se feront avec une énergie plus faibles et donc à des longueurs d'onde plus élevées que la radiation excitatrice (principe de Franck-Condon) (Figure 3.1).



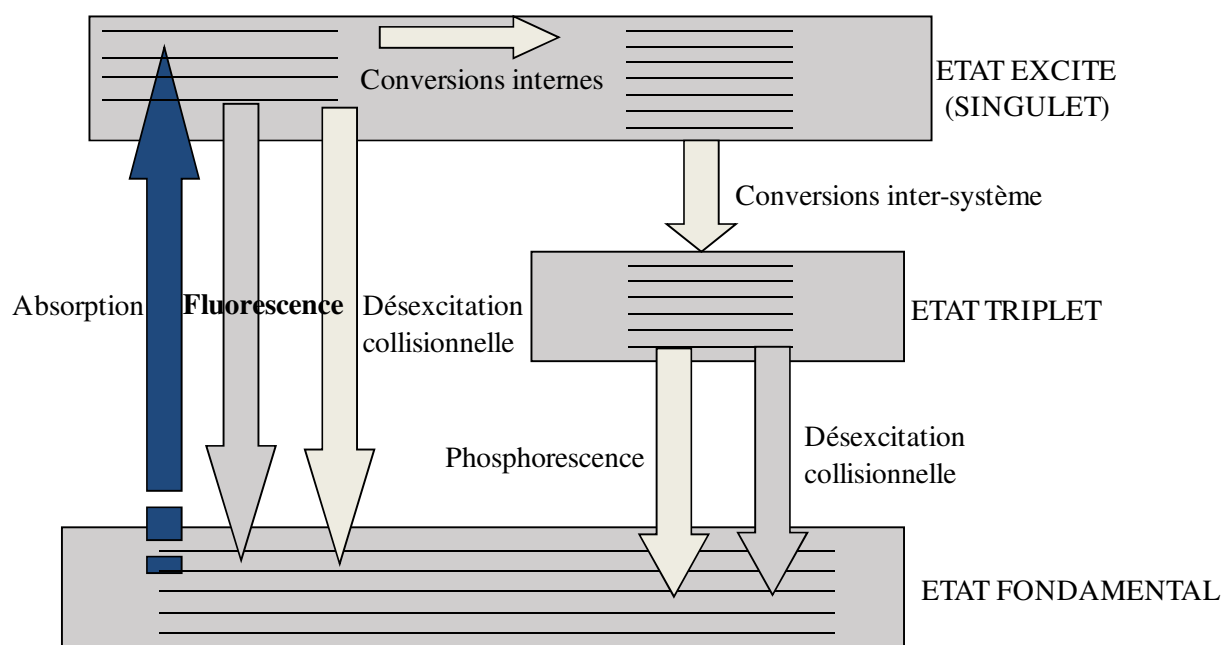
**Figure 3.1:** Schéma de principe de fluorescence et de la relaxation vibrationnelle à l'état excité.

Dans les milieux condensés, tels que les liquides, il existe en réalité un grand nombre d'états fondamentaux et d'états excités entraînant une multitude de transitions possibles, conduisant à un spectre de fluorescence polychromatique prenant la forme d'un continuum. Le décalage entre les maxima d'émission et d'absorption du fait du principe de Franck-Condon est appelé déplacement de Stokes (Figure 3.2). Cette figure présente, à titre d'exemple, le spectre d'absorption et d'émission de la rhodamine B en solution dans l'éthanol. Le décalage de Stokes entre le spectre d'absorption et celui d'émission du fait du principe de Franck-Condon est clairement visible. Lorsqu'il y a recouvrement partiel des spectres d'absorption et d'émission, comme pour la plupart des colorants fluorescents, le signal de fluorescence émis est alors partiellement absorbé par les molécules du traceur sur le trajet optique parcouru par la fluorescence émise au niveau du volume d'excitation sur la totalité du chemin optique. Il est donc utile de choisir un traceur fluorescent présentant le plus faible recouvrement possible entre l'absorption et l'émission.



**Figure 3.2:** Exemples des spectres d'absorption et d'émission normés de la rhodamine B en solution dans l'éthanol

Le retour à l'état fondamental est un phénomène très rapide, la durée de vie de l'état excité étant de l'ordre de  $10^{-6}$  à  $10^{-9}$  s, qui se produit selon différents processus compétitifs : la redistribution d'énergie à l'état excité par un processus de conversions internes, le passage à l'état triplet (celui-ci étant en particulier susceptible de conduire à une émission par phosphorescence), la fluorescence (émission spontanée), la désexcitation collisionnelle. Ces différents processus sont représentés sur le diagramme de la Figure 3.3.



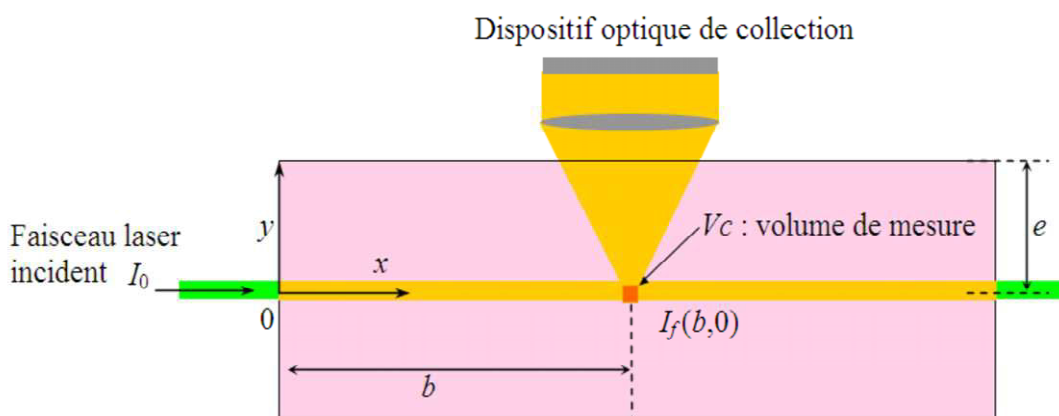
**Figure 3.3:** Mécanismes liés à un retour à l'état fondamental pour une molécule excitée par un rayonnement laser.

En phase condensée, comme dans les liquides, les deux processus de retour à l'état fondamental les plus importants sont la fluorescence et désexcitation par collisions (nommé également quenching), ce dernier processus étant majoritaire.

Le quenching provient de chocs inélastiques entre les molécules fluorescentes à l'état excité et les autres molécules présentes dans le milieu, conduisant ainsi à une dissipation d'énergie non radiative. Dans les milieux gazeux, ce phénomène dépend principalement de la température et de la pression alors que dans les milieux liquides il dépend essentiellement de la température mais aussi de la composition du liquide. Des effets de la pression ont également été observés, mais dans une gamme qui dépasse le cadre de ces travaux.

### 1.3. Modélisation du signal de fluorescence

Dans cette section, la modélisation de l'intensité de fluorescence mesurée par un dispositif optique de collection est décrite. Pour cela, une solution ensemencée en traceur fluorescent excitée par un faisceau laser incident est considérée. Sur le trajet optique, ce faisceau sera absorbé par la solution.



**Figure 3.4:** Absorption du rayonnement laser et fluorescent et détection par le dispositif optique de collection

Soit le volume de mesure  $V_c$ , correspondant à l'intersection du volume d'excitation laser et le volume collecté par le dispositif optique de détection, se trouvant à une profondeur  $b$  dans la cuve de mesure. L'intensité de lumière laser au niveau du volume de mesure  $I(b,0)$  peut être obtenue grâce à la loi de Beer-Lambert :

$$I(b,0) = I_0 e^{-\varepsilon(\lambda_{laser})C_0 b} \quad (3.1)$$

avec  $I_0$  l'intensité du faisceau laser incident,  $\varepsilon(\lambda_{laser})$  le coefficient d'extinction molaire du traceur fluorescent à la longueur d'onde du laser  $\lambda_{laser}$ , et  $C_0$  la concentration molaire du traceur.

L'énergie absorbée au niveau du volume de mesure  $V_c$  est reliée linéairement à la concentration du traceur d'après Castanet [62] par l'expression:

$$I_{abs}(\lambda_{laser}) = I(b, 0)\varepsilon(\lambda_{laser})C_0V_c \quad (3.2)$$

La conversion de l'intensité laser absorbée en signal de fluorescence peut être obtenue en introduisant le rendement quantique de fluorescence  $\eta_f$ . Il représente la proportion d'énergie émise par fluorescence pour une longueur d'onde donnée, notée  $I_{fl,i}$ , par rapport à l'énergie absorbée à la longueur d'onde laser  $I_{abs}(\lambda_{laser})$ :

$$\eta_f(\lambda) = \frac{I_{fl,i}(\lambda)}{I_{abs}(\lambda_{laser})} \quad (3.3)$$

Par la suite, une partie de l'intensité de fluorescence est absorbée sur le trajet  $e$  situé entre le volume de mesure et le dispositif de collection du signal. L'intensité de fluorescence  $I_f$  mesurée est alors ainsi exprimée :

$$I_f(\lambda) = K_{opt}(\lambda)I_{fl,i}(\lambda)e^{-\varepsilon(\lambda)C_0e} \quad (3.4)$$

avec  $\varepsilon(\lambda)$  le coefficient d'absorption du traceur fluorescent à une longueur d'onde  $\lambda$  et  $K_{opt}(\lambda)$  une constante optique caractéristique de la chaîne optique de collection et de détection du signal de fluorescence. Ce terme prend en compte les différents rendements optiques de tous les composants de la chaîne de collection et de détection, y compris les filtres spectraux et les photodétecteurs. L'absorption du solvant est considérée comme négligeable, celui-ci étant transparent à toutes les longueurs d'onde considérées.

L'équation (3.4) peut être réécrite en remplaçant le terme de l'intensité de fluorescence  $I_{fl,i}$ , émise dans le volume de mesure, en utilisant les équations (3.1), (3.2) et (3.3) :

$$I_f(\lambda) = K_{opt}(\lambda)\varepsilon(\lambda_{laser})I_0C_0V_c\eta_f(\lambda)e^{-C_0[\varepsilon(\lambda)e+\varepsilon(\lambda_{laser})b]} \quad (3.5)$$

Le diamètre des gouttes étudiées étant de l'ordre de quelques centaines de microns et dans le cas de mesures réalisées en cuve, le volume  $V_c$  étant positionné suffisamment près du bord de cuve afin de minimiser l'absorption du faisceau laser et la réabsorption de la fluorescence, les distances  $b$  et  $e$  sont donc en général petites. De plus, la concentration en traceur est faible du fait de la forte section efficace des colorants fluorescents, ce qui permet de négliger le terme exponentiel dans l'équation (3.5) :

$$I_f(\lambda) = K_{opt}(\lambda)\varepsilon(\lambda_{laser})I_0C_0V_c\eta_f(\lambda) \quad (3.6)$$

L'intensité du signal de fluorescence dépend ainsi de l'intensité du faisceau laser excitateur, du nombre de molécules fluorescentes présentes dans le volume de mesure représenté par le produit  $C_0V_c$ , de l'efficacité du traceur fluorescent à émettre de la fluorescence (rendement quantique  $\eta_f$ ) et de la chaîne optique de détection représentée par la constante  $K_{opt}$ .

## 2. Application de la fluorescence induite par laser à la mesure de température d'une goutte

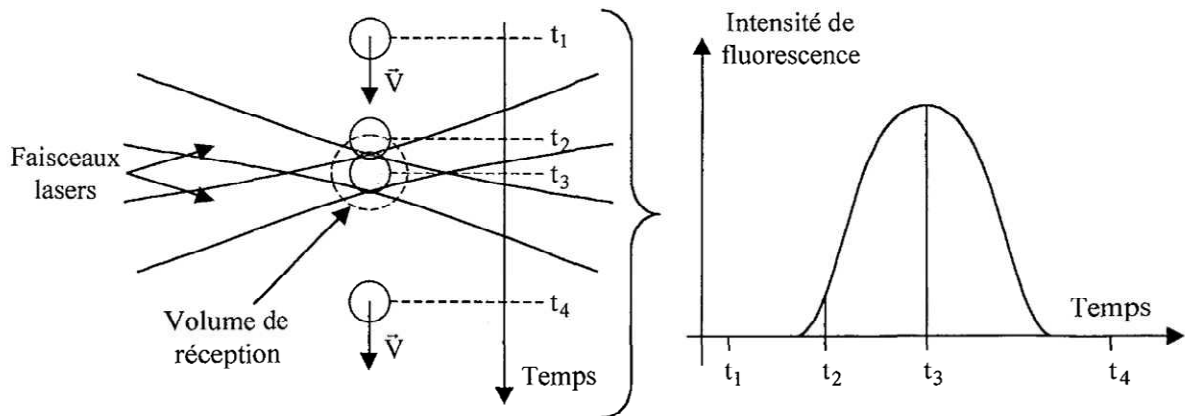
### 2.1. Contexte

La fluorescence induite par laser a largement été utilisée pour la mesure de température en situation d'écoulement monophasique, aussi bien en phase liquide que gazeuse. Le développement de cette technique a finalement permis de conduire à son application dans une configuration diphasique, avec la mesure de température à l'intérieur de gouttes.

Coolen et al. [67] ont étudié la formation de panaches de convection naturelle à l'intérieur d'une cuve remplie d'eauensemencée en Rhodamine B en utilisant la fluorescence induite par plan laser (PLIF) appliquée à la mesure de température. Lemoine et al. [65] ont fait de même sur des écoulements turbulents monophasiques, en mesurant à la fois les grandeurs moyennes et les grandeurs statistiques associées aux fluctuations turbulentes. L'utilisation d'un seul traceur fluorescent et d'une seule bande spectrale de détection ne permet pas une application directe à une goutte ou un spray. En effet, afin d'obtenir un signal de fluorescence dépendant uniquement de la température, les grandeurs telles que l'intensité laser incidente, la concentration en traceur fluorescent ainsi que le volume de collection du signal de fluorescence doivent demeurer constant au cours du temps, ce qui est impossible du fait de la présence de l'interface liquide-gaz et du mouvement de la goutte. En effet, le déplacement de la goutte par rapport au faisceau laser excitateur à plusieurs conséquences :

- la dimension du volume fluorescent, intersection du faisceau laser et de la goutte collecté par le système optique, change continument au cours du temps. On observera à cet effet le diagramme temporel de l'intensité de fluorescence traversant deux faisceaux laser focalisés (Figure 3.5) [68],
- la distribution de l'intensité laser à l'intérieur de la goutte, qui constitue le champ excitateur de la fluorescence, dépend de la position relative de la goutte par rapport à celle du faisceau laser.

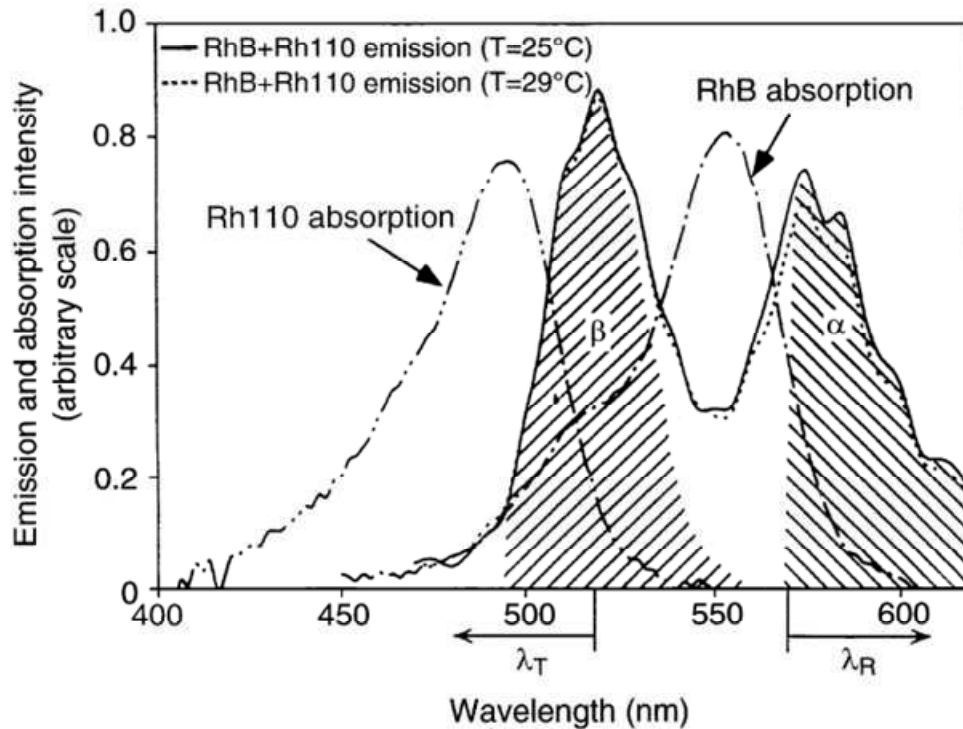




**Figure 3.5:** Evolution temporelle du signal de fluorescence lors du passage d'une goutte ensemencée en traceur fluorescent dans le volume laser excitateur (Lavieille [68]).

L'extension de cette technique à la mesure de température de gouttes a nécessité un certain nombre d'innovations.

En particulier, les travaux pionniers de Coppeta et Rogers [69] ont permis de fournir un inventaire des traceurs fluorescents sensibles à la température et proposent l'utilisation d'une technique ratiométrique afin de déterminer la température : ce type de technique repose sur la mesure du rapport des signaux de fluorescence de deux traceurs dont la sensibilité à la température diffère fortement, à condition de minimiser le recouvrement spectral, même partiel, des émissions de chacun d'entre eux. Sakakibara et Adrian [70] et [71] ont été les premiers à appliquer le principe de la LIF à deux couleurs en utilisant deux traceurs dont la rhodamine B sensible à la température et la rhodamine 110 qui est presque indépendante de ce paramètre. A titre d'illustration, la Figure 3.6 présente les spectres d'absorption et de fluorescence de la rhodamine B et de la rhodamine 110 en solution aqueuse. La région spectrale d'absorption commune aux deux traceurs se trouve entre 480 nm et 530 nm, ainsi la longueur d'onde excitatrice doit se trouver dans cet intervalle. Cependant, le maximum d'émission du mélange se situe aussi dans cette région. La nécessité de séparer la lumière excitatrice du spectre d'émission a donc conduit les auteurs à choisir une longueur d'onde excitatrice  $\lambda_{laser}=488$  nm. Par ailleurs, l'inévitable recouvrement spectral entre les émissions des deux traceurs a été pris en compte. Cette technique a été appliquée à la mesure du champ de température dans une configuration de type convection de Rayleigh-Bénard dans l'eau. Cependant, si la dépendance à l'intensité du faisceau laser incident et au volume de mesure sont supprimées par cette technique, le rapport des concentrations de chacun des traceurs doit rester constant durant la mesure car il influe sur le rapport de fluorescence permettant le calcul de la température. De même, le traitement du recouvrement spectral entre les deux traceurs fluorescence apparaît souvent relativement complexe à appréhender.



**Figure 3.6:** Spectres d'émission et d'absorption du mélange de rhodamine B et de rhodamine 110 diluées chacune à 0,2 mg.L-1 dans de l'eau déminéralisée d'après Sakakibara et Adrian [70].

Lavieille et al. [72] ont initié le développement de la fluorescence induite par laser à deux couleurs (2cLIF) dans le but de déterminer la température moyenne de gouttes monocomposant en mouvement, en régime d'évaporation ou de combustion. La technique développée repose sur l'utilisation d'un seul traceur fluorescent en exploitant la dépendance à la longueur d'onde de la sensibilité en température. Cette nouvelle technique s'inspirait des travaux précédents ([69] et [70]) basés sur l'exploitation du rapport de deux intensités de fluorescence émises par deux traceurs présentant des domaines spectraux différenciés et des sensibilités en température différentes. Par rapport à l'utilisation de deux traceurs, l'avantage de l'utilisation d'une seule molécule fluorescente est la suppression de la dépendance du rapport des intensités de fluorescence collectées sur chacune des bandes spectrales au rapport des concentrations des deux traceurs. Ainsi, la température moyenne de gouttes d'éthanol issues d'un train monodisperse,ensemencées avec de la rhodamine B, a été mesurée, tout en s'affranchissant des contraintes liés à la connaissance de l'intensité du faisceau laser, de la concentration en traceur fluorescent et du volume de mesure.

La mesure de température de gouttes multicomposant par LIF peut nécessiter l'utilisation d'une troisième bande spectrale, notamment lorsque la rhodamine B est utilisée comme traceur fluorescent, afin de séparer l'influence à la composition de celle de la température (cf paragraphe 2.2). Deprédurand [17] a montré qu'il était possible de mesurer la température de gouttes bicomposant à l'aide d'un seul traceur fluorescent (le pyrrométhène 597-8C9) peu dépendant à la composition et deux bandes spectrales de détection, le principe est alors le même que dans le cas de la 2cLIF appliquée aux liquides monocomposant. Castanet et al. [73]

et [54] ont réussi à pousser encore plus loin les limites de cette technique en mesurant le champ de température à l'intérieur d'une goutte. Certaines contraintes apparaissent tels que la lourdeur des mesures ou encore l'impossibilité de mesurer la température au voisinage de la surface du fait de la réfraction de la lumière par l'interface.

## 2.2. Mesure de la température de gouttes par 2cLIF

En phase liquide, la dépendance en température du signal de fluorescence provient essentiellement de deux paramètres physiques :

- le rendement quantique de fluorescence  $\eta_f(\lambda)$
- le coefficient d'absorption molaire de la radiation laser  $\varepsilon(\lambda_{laser})$

Le rendement quantique de fluorescence  $\eta_f(\lambda)$  représente le rapport entre le nombre de transitions par émission fluorescente  $A_{12}(\lambda)$  et le nombre total de transitions de l'état excité vers l'état fondamental, radiatives ou non. Lorsque seules les transitions par désexcitation collisionnelle et par fluorescence sont prises en compte, le rendement quantique de fluorescence s'écrit alors :

$$\eta_f(\lambda) = \frac{A_{12}(\lambda)}{A_{12}(\lambda) + Q} \quad (3.7)$$

où  $Q$  est le taux de désexcitation collisionnelle, phénomène par ailleurs très majoritaire par rapport aux transitions radiatives, en phase liquide. En conséquence:  $Q \gg A_{12}$ , soit :

$$\eta_f(\lambda) \approx \frac{A_{12}(\lambda)}{Q} \quad (3.8)$$

En phase condensée, le taux de désexcitation collisionnelle ne dépend que de la température du milieu et de la concentration en espèces désexcitatrices. Ainsi, le taux de désexcitation collisionnelle peut en général être modélisé par une loi de type Arrhenius (Lemoine et al. [74] et Lemoine et Grisch [75]) :

$$Q = [A] K e^{-E_a(\lambda)/kT} \quad (3.9)$$

où  $[A]$  représente la concentration moléculaire de l'espèce provoquant majoritairement la désexcitation,  $K$  est une constante,  $E_a(\lambda)$  représente l'énergie d'activation mise en jeu dans une collision entre la molécule fluorescente et celles du solvant. Enfin  $k$  constitue la constante de Boltzmann et  $T$  la température du milieu.

Le coefficient d'extinction molaire  $\varepsilon(\lambda_{laser})$  a été modélisé par Lemoine et Grisch [75] comme étant proportionnel à la fraction de Boltzmann  $f$  des molécules dans l'état fondamental :

$$f = \frac{g_1}{g_2} e^{(E_2-E_1)/kT} \quad (3.10)$$

où  $g_1$  et  $g_2$  sont les dégénérescences respectives de l'état fondamental et de l'état excité et  $(E_2-E_1)$  correspondant à la différence d'énergie entre l'état excité et l'état fondamental.

Ainsi, le produit du rendement quantique de fluorescence et du coefficient d'absorption molaire à la longueur d'onde laser sera de l'ordre de :

$$\eta_f(\lambda)\varepsilon(\lambda_{laser}) \approx \frac{g_1}{g_2} \frac{A_{12}(\lambda)}{K[A]} e^{\frac{(E_2-E_1)+E_a}{kT}} = \frac{g_1}{g_2} \frac{A_{12}(\lambda)}{K[A]} e^{\beta} \quad (3.11)$$

où  $\beta = \frac{(E_2-E_1)+E_a}{k}$  représente la sensibilité en température du traceur fluorescent et dépend fortement de la longueur d'onde de fluorescence [68].

Ainsi, à l'aide de l'équation (3.11), l'intensité de fluorescence (3.6) collectée pour une longueur d'onde  $\lambda$  peut être réécrite sous la forme :

$$I_f(\lambda, T) = K_{opt}(\lambda) K_{spec}(\lambda, \lambda_{laser}) I_0 C_0 V_c e^{\beta/T} \quad (3.12)$$

où  $K_{spec}(\lambda, \lambda_{laser})$  est une constante spectroscopique :  $K_{spec}(\lambda, \lambda_{laser}) = \varepsilon(\lambda_{laser}) \frac{A_{12}(\lambda)}{[A]K}$ .

Le signal de fluorescence est alors proportionnel à l'intensité laser incidente  $I_0$ , à la concentration en traceur fluorescent  $C_0$  et au volume d'émission fluorescente collecté  $V_c$ . La constante  $K_{opt}$  prend en compte le système optique dans son ensemble et  $K_{spec}$  regroupe les termes dépendant seulement des propriétés spectroscopiques du traceur fluorescent dans son solvant. Le coefficient  $\beta$  représente la sensibilité du traceur à la température et dépend fortement de la longueur d'onde d'après Lavieille [68].

Afin de collecter un nombre suffisant de photons, la fluorescence est détectée sur une bande spectrale  $i$  définie sur un intervalle  $[\lambda_{i1}, \lambda_{i2}]$  dont la largeur constitue un compromis entre l'intensité du signal et la préservation de la sensibilité en température sur la bande considérée :

$$I_{fi}(\lambda, T) = I_0 C_0 V_c \int_{\lambda_{i1}}^{\lambda_{i2}} K_{opt}(\lambda) K_{spec}(\lambda, \lambda_{laser}) e^{\beta/T} d\lambda \quad (3.13)$$

$\lambda_{laser}$  étant fixée, dès lors l'intégration de l'équation (3.13) peut se mettre sous la forme suivante (Lavieille [68]) :

$$I_{fi}(T) = I_0 C_0 V_c K_{opt,i}(\lambda) K_{spec,i}(\lambda) e^{\frac{A_i}{T^2} + \frac{B_i}{T}} \quad (3.14)$$

$K_{opt,i}$ ,  $K_{spec,i}$ ,  $A_i$  et  $B_i$  sont alors des constantes propres à la bande spectrale  $i$  considérée.

Afin d'éliminer la dépendance du signal de fluorescence à l'intensité laser incidente, à la concentration du traceur fluorescent et au volume de mesure, Lavieille [68] propose de détecter simultanément le signal de fluorescence sur deux bandes spectrales dont la différence de sensibilité en température est fortement marquée. Ainsi, les intensités  $I_{f1}$  et  $I_{f2}$  mesurées sur chacune des bandes spectrales peuvent être exprimées par :

$$I_{f1}(T) = K_{opt,1} K_{spec,1} I_0 C_0 V_c e^{\frac{A_1 + B_1}{T^2 + T}} \quad (3.15)$$

$$I_{f2}(T) = K_{opt,2} K_{spec,2} I_0 C_0 V_c e^{\frac{A_2 + B_2}{T^2 + T}} \quad (3.16)$$

Ainsi, le rapport  $R_{12}$  des intensités de fluorescence  $I_{f1}$  et  $I_{f2}$  est indépendant de l'intensité laser incidente, de la concentration du traceur fluorescent et du volume de mesure :

$$R_{12}(T) = \frac{I_{f1}(T)}{I_{f2}(T)} = \frac{K_{opt,1} K_{spec,1}}{K_{opt,2} K_{spec,2}} e^{\frac{A_1 - A_2 + B_1 - B_2}{T^2 + T}} \quad (3.17)$$

Les constantes  $K_{opt}$  et  $K_{spec}$  ne sont pas directement quantifiables et nécessiteraient d'être déterminées avant chaque série de mesure. Ainsi, la mesure du rapport  $R_{12}$  dans une condition de référence à une température  $T_{réf}$  connue permet de supprimer cette contrainte. Le rapport des intensités de fluorescence peut alors s'exprimer suivant la relation :

$$\ln\left(\frac{R_{12}(T)}{R_{12}(T_{réf})}\right) = (A_1 - A_2)\left(\frac{1}{T^2} - \frac{1}{T_{réf}^2}\right) + (B_1 - B_2)\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{réf}}\right) \quad (3.18)$$

Dans la relation (3.18), les couples  $(A_1 - A_2)$  et  $(B_1 - B_2)$  caractérisent la sensibilité du système de mesure aux variations de température. Afin d'obtenir la meilleure précision sur la mesure de température, il est nécessaire de sélectionner la plus forte différence de sensibilité en température entre les deux bandes spectrales de détection.

Une variante de la 2cLIF a été développée afin de mesurer la température de gouttes composées d'un liquide multicomposant. En effet, pour certains traceurs fluorescents, le signal dépend à la fois de la température et de la composition chimique du milieu. Pour cela, la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs (3cLIF) a été développée par Maqua et al. [56].

Ces auteurs proposent l'utilisation d'une troisième bande spectrale qui permet en calculant un second rapport de fluorescence de séparer l'influence de la composition du mélange et de la température. En utilisant la rhodamine B en tant que traceur fluorescent, ils ont ainsi pu déterminer la température d'un mélange binaire d'éthanol et d'acétone avec une précision de  $\pm 1^\circ\text{C}$  ainsi qu'une estimation de la composition, qui reste toutefois qualitative.

L'expression du signal de fluorescence collecté sur une bande spectrale  $i$  d'intervalle de longueur d'onde  $[\lambda_{i1}, \lambda_{i2}]$ , dans le cas d'une goutte binaire, s'écrit [63] :

$$I_i(\lambda, T, Z_e) = K_{opt,i}(\lambda) K_{spec,i}(\lambda, \lambda_{laser}) I_0 C_0 V_c \gamma_i(Z_e) e^{\beta(Z_e)/T} \quad (3.19)$$

Les fonctions  $\beta$  et  $\gamma$  sont propres au mélange étudié et dépendent de la fraction volumique de l'un des deux composants noté  $Z_e$  ainsi qu'aux bandes spectrales de détection  $i$  utilisées. Cette technique nécessite, comme pour la 2cLIF, l'utilisation d'une référence afin d'éliminer les constantes  $K_{opt}$  et  $K_{spec}$  où la température mais aussi la composition doivent être connues. De plus, la sensibilité en température du mélange  $\beta$  dépend également de la composition, ce qui nécessite une calibration préliminaire minutieuse en fonction de la température et de la composition chimique du solvant. Ainsi, l'addition d'une troisième bande spectrale permet d'obtenir la température et un ordre de grandeur de la composition d'une goutte composée d'un mélange binaire de combustibles. Cependant, cette méthode s'avère assez complexe à mettre en œuvre et nécessite une phase d'étalonnage en température et en composition relativement délicate.

Afin de simplifier le protocole expérimental, Déprédurand [17] a utilisé un traceur fluorescent dont l'émission dépend peu de la composition, le pyrrométhène 597-8C9. Par ce moyen, des mesures de température de gouttes bicomposant de mélanges éthanol/3-pentanone et n-décane/3-pentanone ont été réalisées.

## **2.3. Le traceur fluorescent utilisé : le pyrrométhène 597-8C9**

### **2.3.1. Caractéristiques du pyrrométhène 597-8C9**

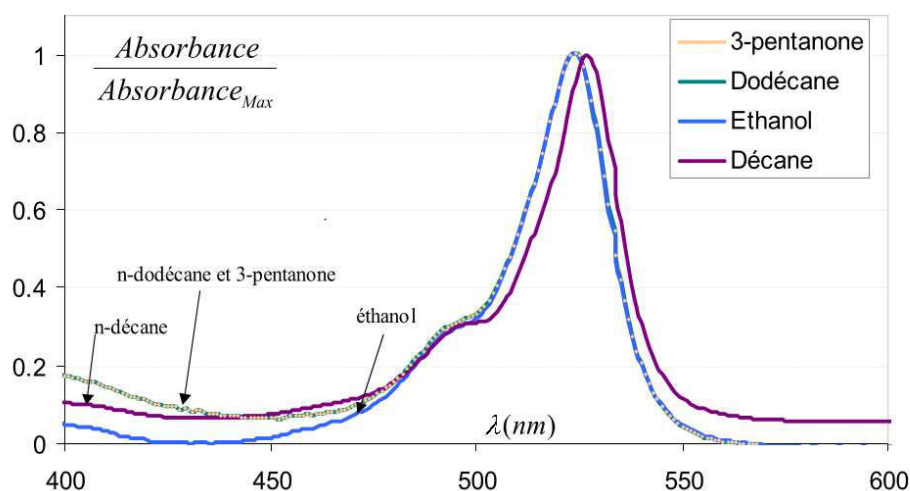
Le choix du traceur fluorescent est crucial pour pouvoir effectuer des mesures de températures présentant une bonne précision dans les solvants utilisés. Pour cela, des caractéristiques spécifiques sont nécessaires. Le traceur doit tout d'abord avoir un large spectre d'absorption et celui-ci doit être suffisamment décalé du spectre de fluorescence afin de pouvoir séparer aisément émission laser de l'intensité de fluorescence lors de la mesure à l'aide d'un filtre optique. Il sera alors possible de choisir, parmi les longueurs d'onde laser disponibles dans le commerce, celle qui se rapproche le plus du maximum d'absorption du traceur fluorescent. Le traceur doit aussi posséder un rendement quantique de fluorescence élevé à la longueur d'onde d'excitation laser choisie. Par ailleurs, étant donnée l'application, son émission doit être suffisamment sensible à la température.

Le pyrrométhène 597-8C9 ( $C_{30}H_{49}N_2BF_2$ ) est une molécule fluorescente distribuée par la société Exciton. Il a été choisi pour ses diverses propriétés adaptées aux besoins. Parmi ses propriétés les plus intéressantes, figurent une bonne sensibilité à la température qui permettra d'obtenir des mesures de bonne précision. Il présente aussi une forte solubilité dans une large gamme de solvants tels que les alcools, les cétones, les alcanes ainsi que dans leurs mélanges afin de permettre l'étude de combustibles multicomposant. Il est à noter que ces travaux seront principalement orientés sur l'étude d'alcanes présents majoritairement dans les combustibles utilisés dans les moteurs à combustion interne.

L'étude de combustibles multicomposant présente des contraintes supplémentaires, notamment liées à la miscibilité du traceur fluorescent dans le cas de mélanges de corps purs. A cela s'ajoute la nécessité de choisir un traceur fluorescent dont la dépendance à la

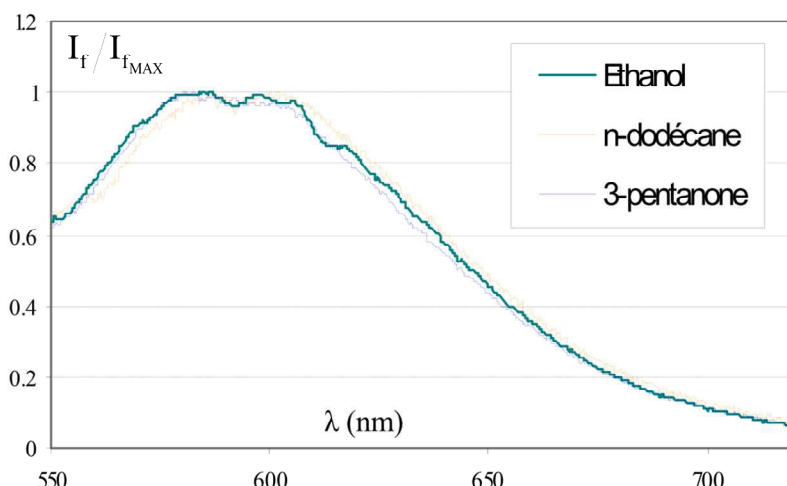
composition du solvant est limitée afin de conserver une configuration relativement simple à deux bandes spectrales pour la collection du signal de fluorescence. Les travaux de Deprédurand [17] ont permis de fournir une base solide concernant l'étude de ces différentes caractéristiques.

La Figure 3.7 présente le spectre d'absorption du pyrrométhène, qui dépend peu du solvant avec une absorption maximale autour de 525 nm pour les quatre solvants envisagés (éthanol, 3-pentanone, n-décane et n-dodécane). En conséquence, la fluorescence peut facilement être induite à l'aide du laser Nd-Yag doublé en fréquence à 532 nm, laser couramment disponible dans le commerce.



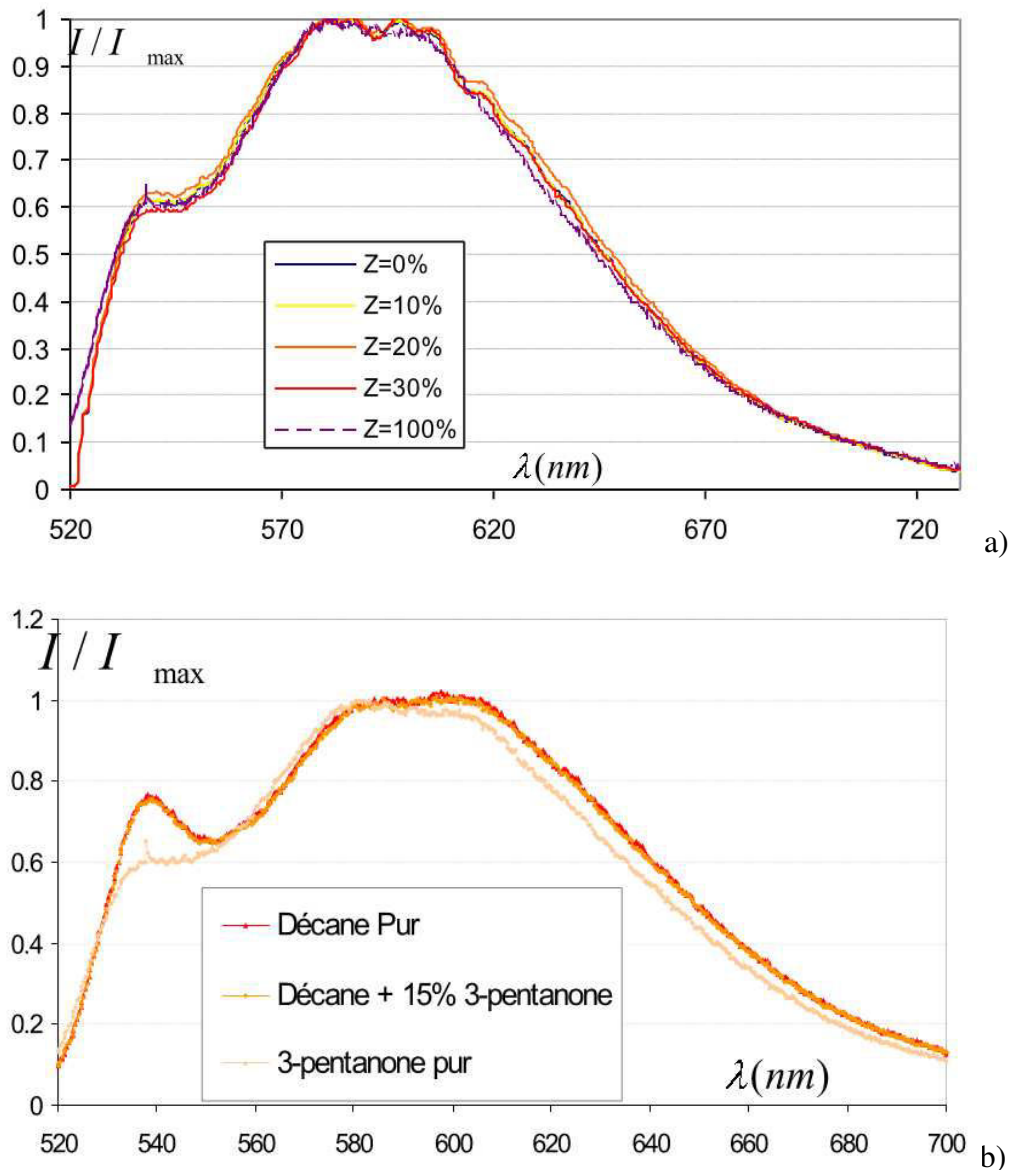
**Figure 3.7:** Spectres d'absorption du pyrrométhène 597-8C9 en solution dans l'éthanol, le 3-pentanone, le n-décane et le n-dodécane à 25°C, d'après Deprédurand [17].

La Figure 3.8 montre la superposition des spectres d'émission normalisés du pyrrométhène 597-8C9, obtenus par excitation à la longueur d'onde 514,5 nm, dilué dans trois solvants purs appartenant à des familles différentes: un alcool, une cétone et un alcane. Un maximum d'émission d'intensité fluorescente, aux alentours de 600 nm, ainsi qu'une faible dépendance du traceur à la nature du solvant peuvent être observés.



**Figure 3.8:** Spectre d'émission fluorescente du pyrrométhène 597-8C9 dissous dans l'éthanol, le n-dodécane et le 3-pentanone à  $T=25^{\circ}\text{C}$ , excité à  $\lambda=514,5\text{ nm}$ .

Les travaux de Déprédurand [17] ont permis d'étudier la sensibilité de l'émission fluorescente à la composition pour les mélanges binaires éthanol/3-pentanone (Figure 3.9-a) et n-décane/3-pentanone (Figure 3.9-b), ensemencé en pyrrométhène 597-8C9, excité à 514,5 nm.



**Figure 3.9 :** Influence de la composition du mélange binaire sur le spectre de fluorescence du pyrrométhène 597-8C9 : **a-** éthanol/3-pentanone avec ( $Z$  : fraction volumique de 3-pentanone) et **b-** n-décane/3-pentanone à  $T=25^{\circ}\text{C}$  (excitation à  $\lambda=514,5$  nm).

Le mélange éthanol/3-pentanone est peu sensible à la composition quelque soient les proportions envisagées alors que le mélange n-décane/3-pentanone ne dépend pas de la composition jusqu'à une fraction volumique en 3-pentanone d'au moins 15 %.

En plus de ces propriétés intéressantes, le pyrrométhène 597-8C9, comparé à d'autres traceurs fluorescents, est insensible aux variations de pH. A titre d'exemple, dans le cas de la Rhodamine B diluée dans de l'éthanol ou dans de l'eau (Lavieille [68] et Castanet [62]), le spectre d'émission des gouttes récupérées à partir d'un jet monodisperse en combustion était



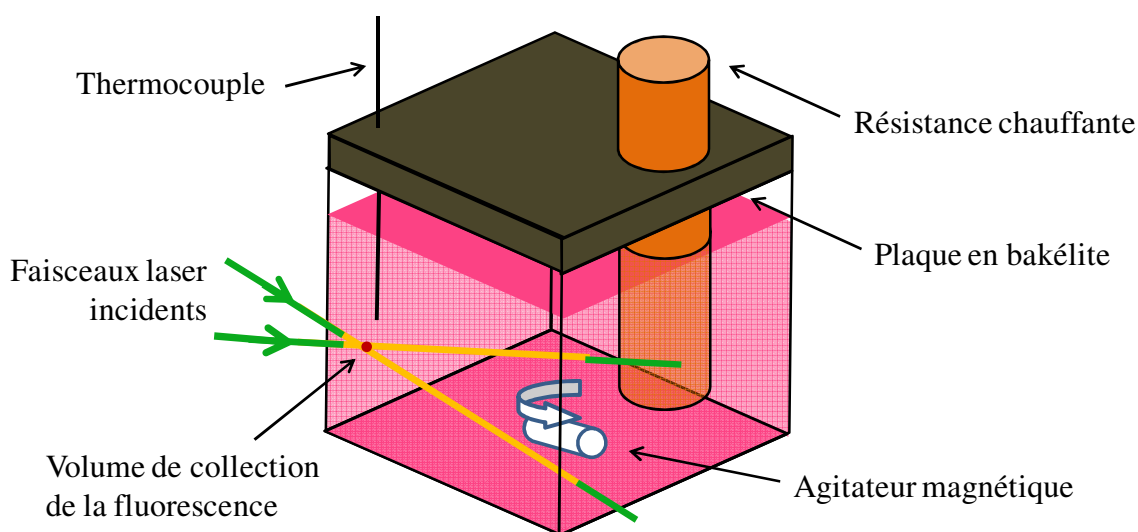
décalé vers de plus fortes longueurs d'onde, ceci du fait d'une variation du pH vers le domaine acide. L'ajout de soude est alors nécessaire afin d'obtenir un rapport de fluorescence stable lorsque le pH était susceptible de varier.

Déprédurand [17] a étudié le comportement spectral du pyrrométhène 597-8C9 en solution dans des combustibles qui seront en partie investigués dans ces travaux, mais avec comme source excitatrice un laser à argon ionisé à  $\lambda=514,5$  nm. Il convient donc de réeffectuer par la suite l'étude des spectres du pyrrométhène 597-8C9 en solution dans différents combustibles qui peuvent différer du fait de l'utilisation d'une excitation à 532 nm et ainsi conduire à des choix différents des bandes spectrales de détection.

## 2.3.2. Propriétés spectroscopiques des solutions de pyrrométhène 597-8C9

### 2.3.2.1. Dispositif expérimental de calibration

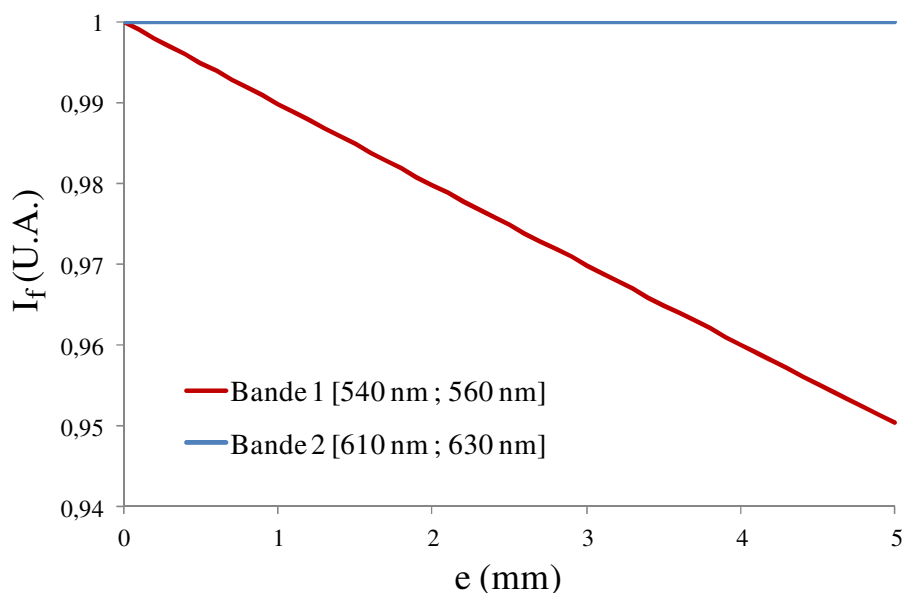
Afin d'effectuer les différentes mesures spectrales et les calibrations en température, une solution ensemencée en traceur fluorescent est placée dans une cellule en verre optique aux quatre faces transparentes (Figure 3.10). La concentration en pyrrométhène est fixée à  $5.10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup> pour les expériences.



**Figure 3.10** : Schéma de principe de la cuve de calibration.

Le volume de mesure, localisé à l'intersection de deux faisceaux laser focalisés produit par une optique de vélocimétrie laser Doppler, est positionné au voisinage de la paroi transparente à travers laquelle est collecté le signal de fluorescence. En effet, il est souhaitable de minimiser la réabsorption du signal de fluorescence qui est différente pour chacune des bandes spectrales utilisées, ce qui risque ainsi de modifier le rapport des intensités de fluorescence. La Figure 3.11 montre l'influence de la réabsorption sur l'intensité de fluorescence pour les deux bandes spectrales de détection en fonction de la profondeur  $e$  dans

la cuve. La réabsorption sur la seconde bande spectrale est totalement négligeable, elle est plus significative sur la première bande spectrale. Ainsi, le rapport de fluorescence sera uniquement impacté par la réabsorption sur la bande [540 nm ; 560 nm], de l'ordre de 1% pour un chemin optique de 1 mm, lorsque la concentration du pyrrométhène 597-8C9 est de  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ .



**Figure 3.11** : Réabsorption de l'intensité de fluorescence pour deux bandes spectrales différentes en fonction du chemin optique  $e$  et de la fluorescence dans la cuve de  $n$ -dodécane ensemencé en pyrrométhène 597-8C9 à  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ .

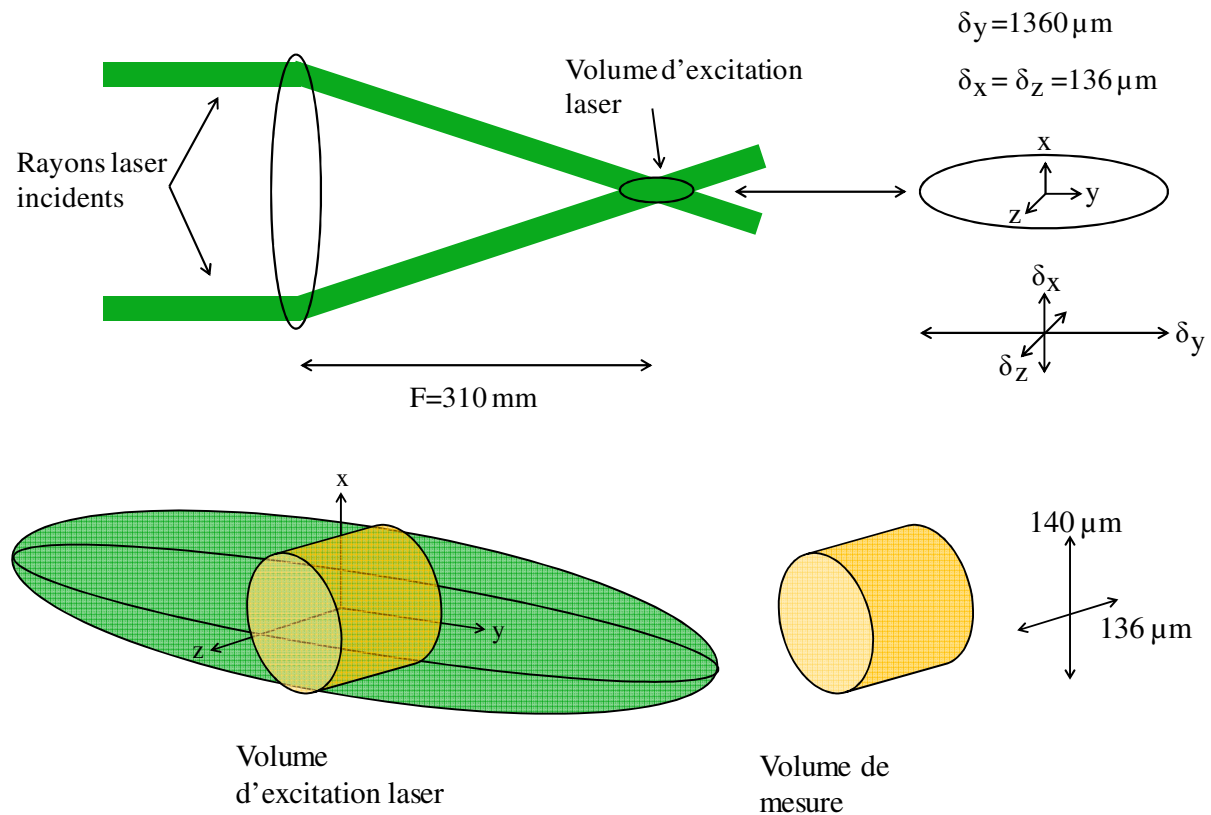
La cuve est constamment agitée à l'aide d'un agitateur magnétique pour assurer une homogénéisation de la solution en température et également permettre un renouvellement du liquide, ceci afin de limiter les phénomènes de photobleaching. Un shutter mécanique piloté par le système d'acquisition des données permet d'illuminer par le laser la solution uniquement lors de la prise de mesure. Une résistance chauffante en cuivre plongée dans l'enceinte est maintenue par une plaque en bakélite assurant la tenue en température et qui referme la cuve, limitant ainsi l'évaporation de la solution. Un thermocouple de type K placé dans la cellule et positionné près du volume de mesure laser permet d'acquérir la température de la solution au voisinage du point de mesure avec une précision de  $\pm 0,1^\circ\text{C}$ . Les mesures de spectre puis de calibration, peuvent être effectuées sur une plage de température allant de la température ambiante jusqu'à environ  $150^\circ\text{C}$ .

En ce qui concerne les mesures spectrales, la lumière fluorescente est ensuite collectée à l'aide d'un doublet achromatique puis guidée par une fibre optique sur un spectromètre BLACK-Comet (UV-VIS 190-900nm) fourni par la société Stellarnet, avec une résolution de l'ordre de 1 nm. Un filtre passe-haut à 540 nm est ajouté afin de supprimer avant la détection par le spectromètre de la composante du laser sur la forme du spectre.

### 2.3.2.2. Dispositif optique

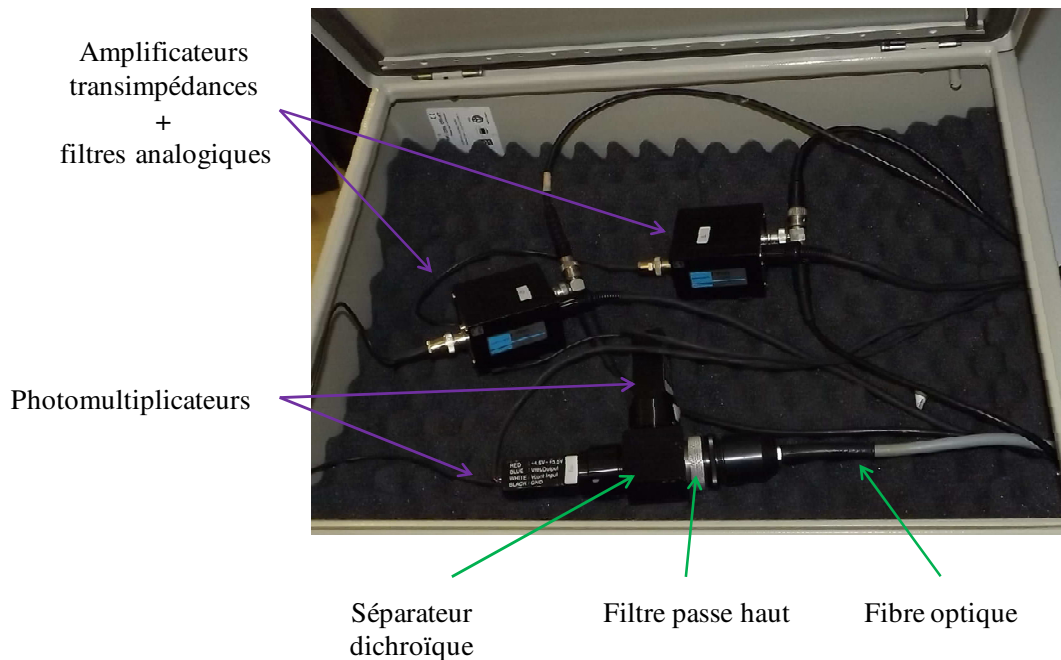
Le dispositif expérimental utilisé pour les calibrations est complètement identique à celui qui sera utilisé dans le cadre des mesures sur le jet de gouttes monodisperse. La fluorescence de la solution est induite par deux faisceaux laser croisés et focalisés issus d'une même source, consistant en un laser Nd-Yag doublé continu, de longueur d'onde  $\lambda=532$  nm. Le dispositif de génération des faisceaux laser est comparable à une sonde d'émission utilisée en vélocimétrie laser : un système de prismes et de miroirs permet d'obtenir deux faisceaux laser parallèles qui sont ensuite focalisés grâce à une lentille convergente achromatique de distance focale égale à 310 mm. L'intersection des deux faisceaux laser forme le volume d'excitation de la fluorescence. Ce volume correspond, du fait des caractéristiques des optiques utilisées, à un ellipsoïde de dimensions  $136 \times 136 \times 1360 \mu\text{m}^3$  (Figure 3.12). La taille des gouttes envisagées étant de l'ordre de  $100 \mu\text{m}$ , il est donc possible d'éclairer l'ensemble de la goutte et donc de déterminer une température prenant en compte l'ensemble du volume de la goutte.

Le signal de fluorescence est collecté à l'aide d'un doublet achromatique couplé à une fibre optique multimode, placé perpendiculairement au plan des faisceaux laser. Le rapport des distances focales du doublet achromatique étant de 2 (équivalent à un grandissement de 2), le diamètre du cœur de la fibre optique multimode étant de  $70 \mu\text{m}$  et étant donnée la grande profondeur de champ de ce dispositif, les dimensions du volume de mesure correspondent à un cylindre de rayon  $140 \mu\text{m}$  et de longueur  $136 \mu\text{m}$ .



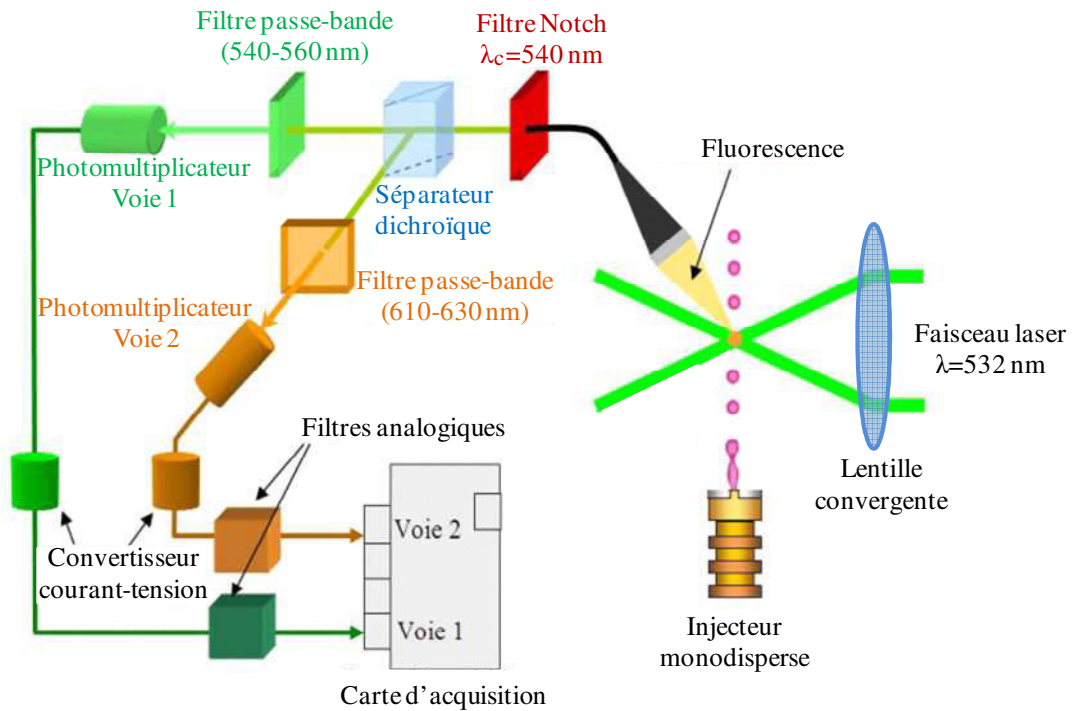
**Figure 3.12:** Schéma du volume d'excitation laser et du volume de mesure du signal de fluorescence.

Le signal optique est ensuite guidé par la fibre optique vers un filtre passe-haut présentant une longueur d'onde de coupure de 540 nm (avec une densité optique de 6 dans la bande de coupure) qui permet de filtrer la lumière laser diffusée (Figure 3.14), qui peut être très intense lorsque les mesures sont réalisées sur des gouttes. Une lame séparatrice neutre permet de séparer ce signal optique en deux parties, chacune traversant ensuite un filtre interférentiel passe-bande correspondant aux bandes de longueurs d'onde choisies pour chaque voie. Le signal optique collecté sur chacune des voies est ensuite détecté par un photomultiplicateur Hamamatsu modèle H10721-210 (Figure 3.13) qui le convertit en courant.



**Figure 3.13 :** Photographie du dispositif de détection de la fluorescence : séparateur neutre, filtres optiques, et photomultiplicateurs.

Un amplificateur transimpédance convertit ensuite ce signal de courant en tension dans une gamme utilisable par une carte d'acquisition rapide possédant 4 voies de mesure indépendantes, implantée sur un PC. Afin d'éviter les phénomènes de repliement de fréquence et de diminuer le bruit par rapport au signal de fluorescence collecté, un filtre analogique possédant une fréquence de coupure à 80 kHz est ajouté à la chaîne de détection. Le signal est finalement acquis sur deux voies et est codé sur 12 bits, soit 4096 niveaux.



**Figure 3.14 :** Schéma de la chaîne de détection et d'acquisition optoélectronique du signal de fluorescence dans le cas du train de gouttes monodisperse.

### 2.3.2.3. Influence de la température sur le spectre de fluorescence

L'objectif est ici de déterminer une méthode permettant de comparer les spectres de fluorescence entre eux en s'affranchissant des conditions de leur obtention.

En partant de l'expression de l'intensité de fluorescence définie par la relation (3.12) au paragraphe 2.2, pour  $\lambda_{laser}$  fixée :

$$I_f(\lambda, T) = K_{opt}(\lambda) K_{spec}(\lambda) I_0 C_0 V_c e^{\beta/T} \quad (3.20)$$

Le modèle physique du signal de fluorescence peut se réécrire comme le produit d'une constante spectroscopique  $K_{spec}(\lambda)$  et une fonction de sensibilité à la température  $f(T, \lambda)$  :

$$I_f(\lambda, T) = Cte(\lambda) K_{spec}(\lambda) f(T, \lambda) \quad (3.21)$$

avec  $Cte(\lambda) = I_0 C_0 V_c K_{opt}(\lambda)$  et  $f(T, \lambda) = e^{\beta(\lambda)/T}$ .

En introduisant une température de référence  $T_0$  et en multipliant le numérateur et le dénominateur de l'équation (3.21) par la fonction de sensibilité à la température  $f(T, \lambda)$  à  $T_0$ , il vient :

$$I_f(\lambda, T) = Cte(\lambda) K_{spec}(\lambda) f(T_0, \lambda) \frac{f(T, \lambda)}{f(T_0, \lambda)} \quad (3.22)$$

En posant  $K_2(\lambda, T_0) = K_{spec}(\lambda) f(T_0, \lambda)$  et  $F(\lambda, T, T_0) = \frac{f(T, \lambda)}{f(T_0, \lambda)}$ , il vient :

$$I_f(\lambda, T) = Cte(\lambda) K_2(\lambda, T_0) F(\lambda, T, T_0) \quad (3.23)$$

La constante  $K_2(\lambda, T_0)$  qui correspond à la constante  $K_{spec}$  peut être obtenue en posant  $T=T_0$  dans l'équation (3.23) :

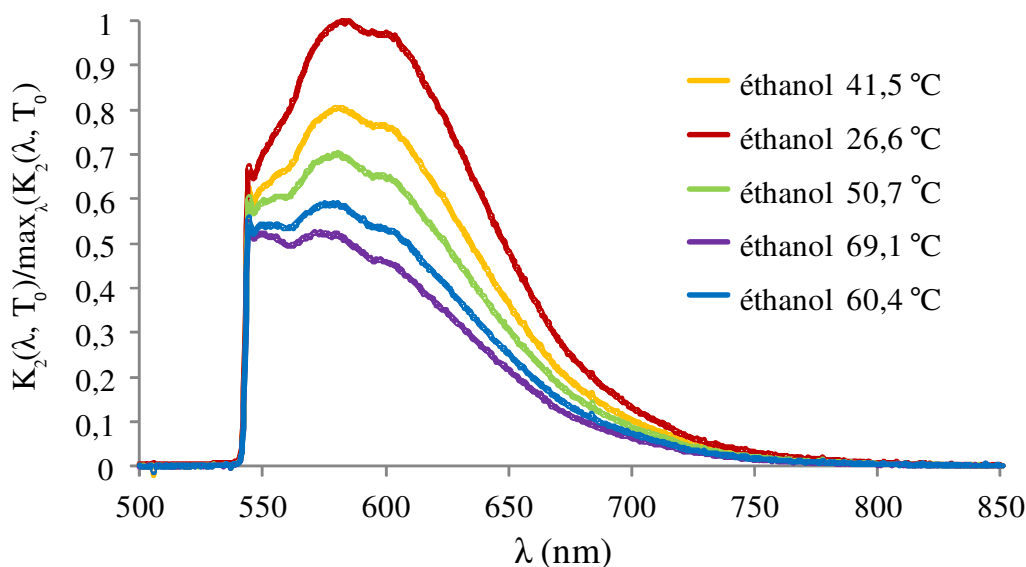
$$K_2(\lambda, T_0) = \frac{I_f(\lambda, T_0)}{Cte(\lambda)} \quad (3.24)$$

Afin de normaliser les fonctions  $K_2(\lambda, T_0)$  pour chaque solution, la valeur de  $K_2(\lambda, T_0)$  est divisée par sa valeur maximale :

$$\frac{K_2(\lambda, T_0)}{\max_{\lambda}(K_2(\lambda, T_0))} = \frac{I_f(\lambda, T_0)}{I_f(\lambda_{max}, T_0)} \quad (3.25)$$

où  $\lambda_{max}$  est la longueur d'onde pour laquelle l'intensité de fluorescence est maximale.

La Figure 3.15 présente la constante spectrale normalisée  $K_2(\lambda, T_0)$  mesurée dans la cuve de calibration à différentes températures du liquide, par excitation de la solution avec un laser Nd-Yag à 532 nm. La coupure du filtre passe-haut éliminant la lumière laser parasite est très nettement observable. A température ambiante, le maximum d'émission est situé aux environs de 580 nm, puis l'intensité décroît jusqu'à devenir très faible à partir de 720 nm. L'amplitude du spectre de fluorescence décroît clairement lorsque la température augmente mais de manière hétérogène en fonction de la longueur d'onde. En effet, la partie du spectre correspondant à des longueurs d'onde supérieures à 570 nm décroît fortement alors que la zone comprise entre 540 nm et 570 nm diminue plus faiblement en intensité. Ceci est caractéristique du comportement recherché, c'est-à-dire une différence de sensibilité à la température pour différentes zones du spectre de fluorescence.

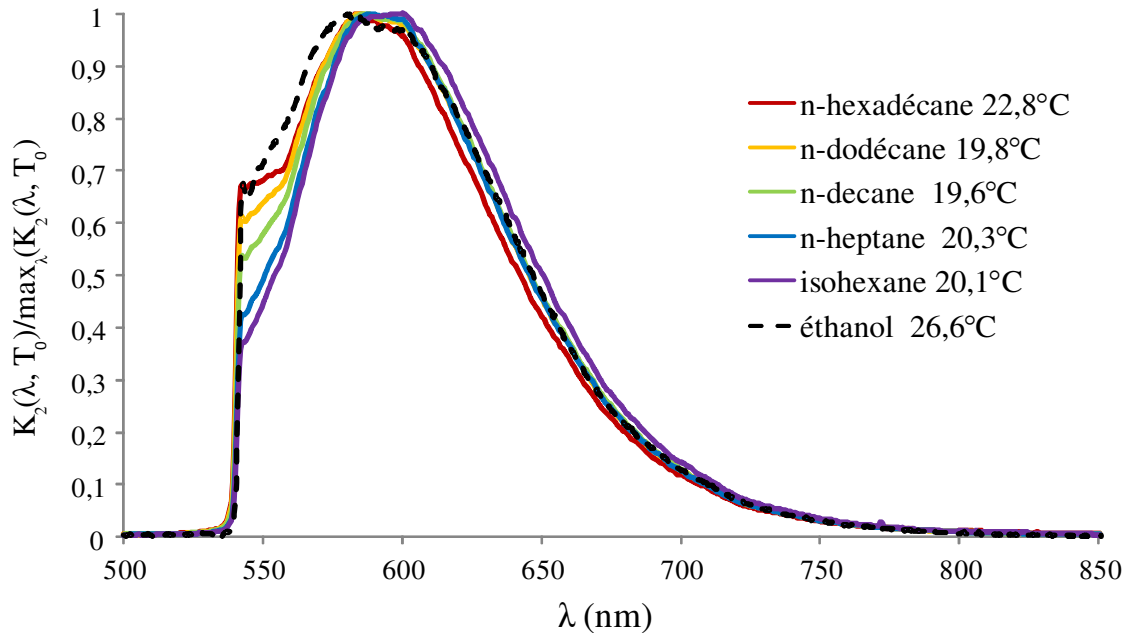


**Figure 3.15 :** Evolution du spectre de fluorescence normalisé ( $K_{spec}(\lambda)$ ) du pyrrométhène 597-8C9 en solution dans l'éthanol à une concentration  $C=5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  pour différentes températures, obtenu par excitation à 532 nm.

### 2.3.2.4. Influence de la nature du solvant

Dans le but d'étudier des mélanges de composants, il est nécessaire de comparer le comportement du pyrrométhène 597-8C9 dans chaque combustible susceptible d'être mélangés. A cette fin, des spectres à température ambiante du pyrrométhène dilué dans l'éthanol, l'isohexane, le n-heptane, le n-décane, le n-dodécane et le n-hexadécane à une concentration de  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  ont été acquis puis comparés par normalisation (Figure 3.16) en suivant la procédure décrite au paragraphe 2.3.2.3.

La Figure 3.16 montre clairement une légère influence de la nature du combustible sur l'émission de fluorescence du pyrrométhène 597-8C9, notamment sur la bande spectrale [540 nm ; 570 nm]. Il est à noter que pour les alcanes, plus la chaîne carbonée est longue et plus la pente de l'intensité fluorescente en fonction de la longueur d'onde est faible entre 540 nm et 570 nm.



**Figure 3.16:** Spectre de fluorescence normalisé du pyrrométhène 597-8C9 ( $K_{spec}(\lambda)$ ) dilué à  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  dans différents solvants ( $C=5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$ ).

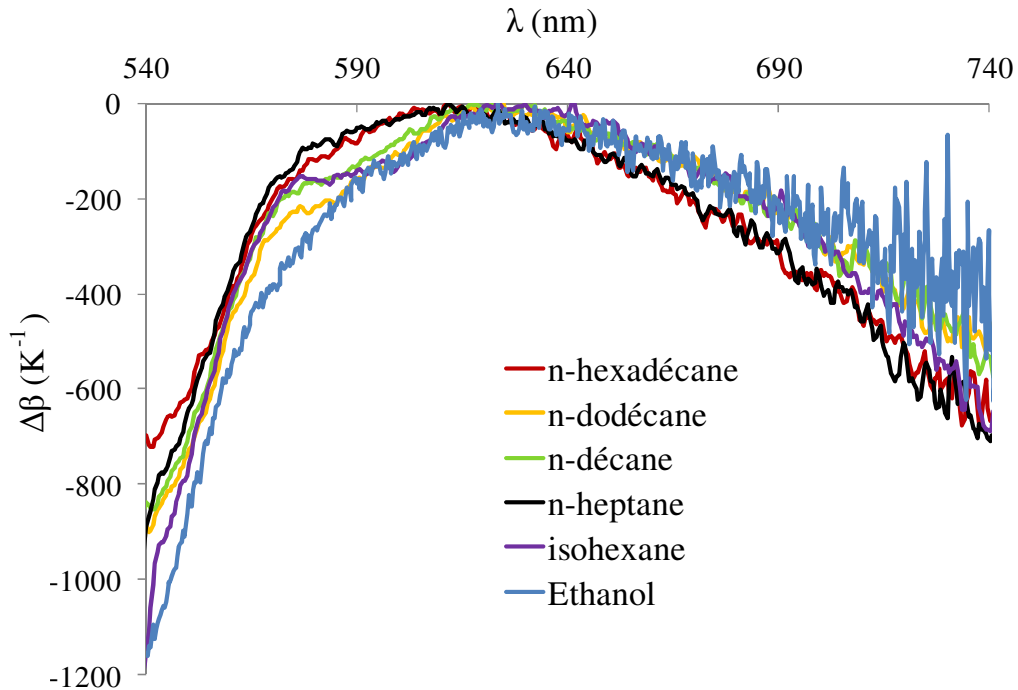
Au regard de ces résultats, la conclusion diffère sensiblement des travaux de Deprédurand [17] où les spectres d'émission de l'éthanol et du n-dodécane induits à 514,5 nm se superposaient presque parfaitement (Figure 3.8). Il semblerait ainsi que l'intensité de fluorescence du pyrrométhène 597-8C9, lorsque la longueur d'onde  $\lambda=532 \text{ nm}$  est utilisée pour l'excitation, présente une sensibilité significative à la nature du combustible.

La sensibilité en température d'un traceur fluorescent est représentée par le facteur  $\beta(\lambda)$  qui se calcule pour chaque longueur d'onde comme le rapport des intensités de fluorescence émises à une longueur d'onde donnée  $I_f(\lambda)$  provenant de deux spectres de fluorescence acquis dans les mêmes conditions expérimentales, mais pour deux températures  $T_1$  et  $T_2$  différentes :

$$\beta(\lambda) = \ln \left( \frac{I_{f1}(\lambda, T_1)}{I_{f2}(\lambda, T_2)} \right) / \left( \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) \quad (3.26)$$

La sensibilité en température  $\beta(\lambda)$  du pyrrométhène 597-8C9 en solution dans les combustibles qui seront investigués dans le cadre de ces travaux est représentée sur la Figure 3.17. Afin de pouvoir comparer les courbes entre elles, chaque valeur de  $\beta(\lambda)$  est soustraite par la valeur maximale  $\beta(\lambda_{max})$ :

$$\Delta\beta(\lambda)=\beta(\lambda)-\beta(\lambda_{max}) \quad (3.27)$$



**Figure 3.17:** Evolution de la sensibilité en température  $\Delta\beta(\lambda)$  du pyrrométhène 597-8C9 dilué dans différents solvants à  $C=5.10^{-6}mol.L^{-1}$ .

L'allure générale de  $\beta(\lambda)$  conduit à conclure à une faible sensibilité en température aux alentours de 540 nm puis une forte augmentation entre 540 nm et 610 nm ; un pallier peut être observé à partir de 610 nm environ où la sensibilité en température est la plus forte. Cette sensibilité décroît ensuite au delà de 640 nm. A partir de 660 nm, l'aspect de  $\beta(\lambda)$  devient de plus en plus bruité du fait de la faiblesse de l'intensité de fluorescence (Figure 3.16), entraînant un rapport signal sur bruit défavorable. De manière globale, la forme de la sensibilité en température est peu dépendante de la nature du solvant, même si des variations significatives peuvent être observées sur certains domaines spectraux.

### 2.3.2.5. Sélection des bandes spectrales

La technique 2cLIF repose sur le calcul du rapport des intensités de fluorescence mesurées sur 2 bandes spectrales. Afin d'accroître la sensibilité en température, il est nécessaire de sélectionner deux bandes spectrales dont la sensibilité en température diffère fortement. Par ailleurs, dans la perspective d'utiliser des mélanges composés d'espèces chimiques de nature différente, il est important de disposer d'un traceur fluorescent dont l'émission est peu



dépendante du solvant. De plus, si une telle condition est satisfaite, il ne sera pas nécessaire d'adapter les bandes spectrales de détection à chaque combustible étudié.

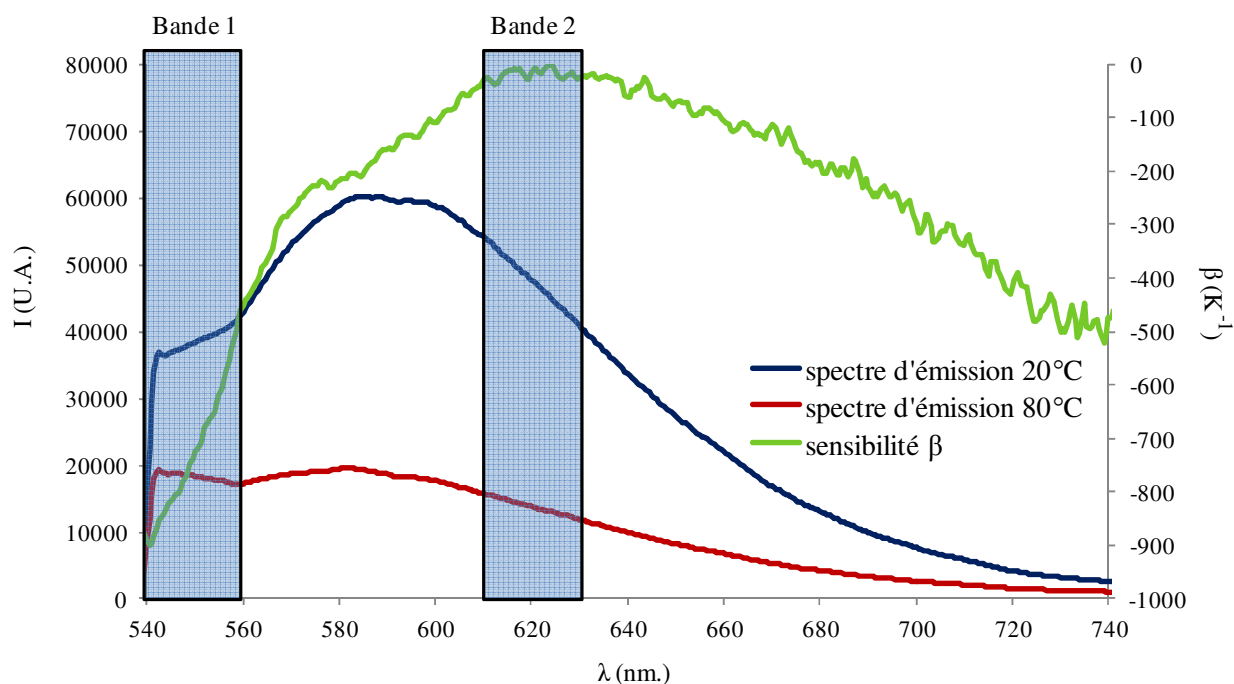
Le pyrrométhène 597-8C9 présente une sensibilité spectrale en température  $\beta(\lambda)$  qui varie légèrement en fonction du solvant utilisé (Figure 3.17). Par conséquent, les bandes spectrales sélectionnées pourront être identiques pour chaque solvant.

Le comportement de  $\beta(\lambda)$  ainsi que la disponibilité des filtres dans le commerce ont orienté le choix vers les bandes spectrales suivantes :

Bande 1 : 540 nm - 560 nm

Bande 2 : 610 nm - 630 nm

De plus, l'intensité de fluorescence correspondant aux deux bandes spectrales sélectionnées est relativement bien équilibrée en termes d'intensité. La Figure 3.18 présente l'évolution de  $\beta(\lambda)$ , soustrait de sa valeur maximale, le spectre d'émission du pyrrométhène 597-8C9 et la position des bandes spectrales sélectionnées, ainsi que leur largeur.



**Figure 3.18 :** Spectre d'émission du pyrrométhène 597-8C9 dilué à  $C=5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  dans le n-dodécane à  $20^{\circ}\text{C}$  et à  $80^{\circ}\text{C}$  et sensibilité spectrale associée. Choix des bandes spectrales de détection.

Le Tableau 3.1 présente l'ordre de grandeur de la différence de sensibilité en température calculée entre la valeur moyenne de la 1<sup>ère</sup> bande spectrale (540 nm - 560 nm) et celle de la 2<sup>ème</sup> bande spectrale (610 nm - 630 nm) pour les différents combustibles envisagés (Figure 3.17).

Solvants	Ethanol	Isohexane	n-heptane	n-décane	n-dodécane	n-hexadécane
$\Delta\beta(\lambda)$ (K <sup>-1</sup> )	739	675	571	631	663	539

**Tableau 3.1:** Différences de sensibilité en température (équation (3.27)) pour le pyrrométhène 597-8C9 en solution dans différents combustibles purs, calculées entre les bandes spectrales [540 nm-560 nm] et [610 nm-630 nm].

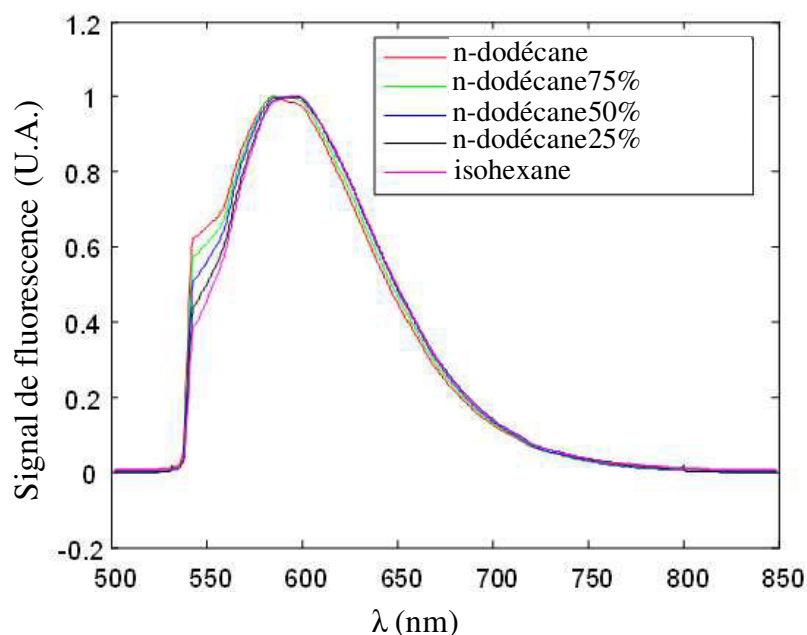
Le pyrrométhène 597-8C9 en solution dans l'éthanol présente la sensibilité à la température la plus élevée, pour les deux bandes spectrales sélectionnées. La sensibilité en température associée à l'isohexane, le n-décane et le n-dodécane présentent des sensibilités moindres et du même ordre de grandeur et enfin celle associée au n-heptane et le n-hexadécane sont les plus faibles. Cette étude a permis de déterminer le comportement spectral en température du pyrrométhène 597-8C9 en solution dans différents combustibles et de sélectionner ceux pouvant conduire à des sensibilités en température voisines afin de former des mélanges, qui serviront de base à l'étude des combustibles multicomposant. Néanmoins, il conviendra par la suite d'étalonner précisément cette sensibilité en température pour chaque composant pur ainsi que pour les mélanges de corps purs.

### 2.3.2.6. Influence de la composition du solvant sur la fluorescence du pyrrométhène 597-8C9

#### Cas d'un mélange binaire de corps purs

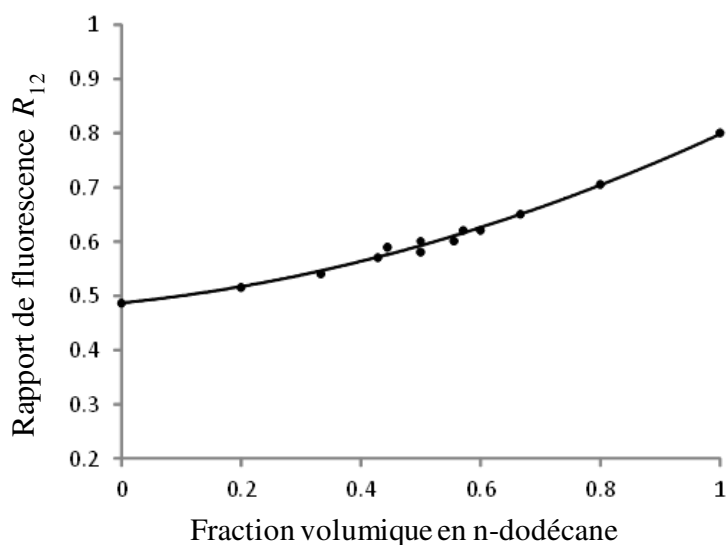
Quelques mélanges binaires ont été plus spécifiquement étudiés. Le premier est un mélange n-dodécane/isohexane. Ce mélange est intéressant du fait que la sensibilité en température  $\beta(\lambda)$  de ces deux corps purs est relativement similaire et il n'y a pas d'écart significatif à l'idéalité de ce mélange. De plus, ce mélange est constitué de deux espèces de volatilité très différentes. Un second mélange binaire isohexane/n-heptane sera aussi considéré, le n-heptane présentant une volatilité moindre que l'isohexane mais beaucoup plus forte que le n-dodécane. Enfin, le mélange binaire n-dodécane/n-heptane sera également étudié.

La Figure 3.19, présente les spectres d'émission du pyrrométhène 597-8C9 dans le mélange binaire n-dodécane/isohexane et dans le n-dodécane et l'isohexane purs à 20°C. On remarque qu'il y a une dépendance des spectres à la composition, ce qui risque d'affecter la valeur du rapport de fluorescence et donc de fausser la mesure de température si cette dépendance est ignorée. Il convient donc d'étudier cette dépendance à la composition.



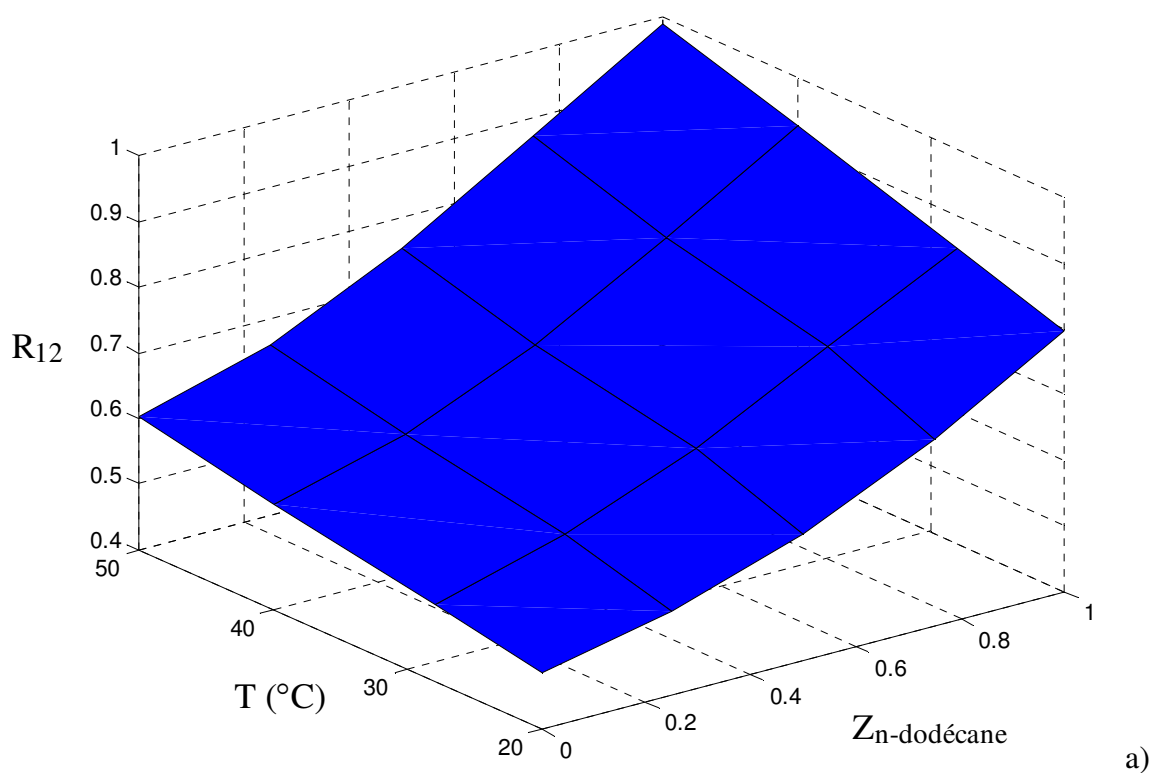
**Figure 3.19 :** Superposition des spectres des mélanges binaires n-dodécane/isohehexane en % de la fraction volumique et des spectres de deux composés pris pur à 20°C.

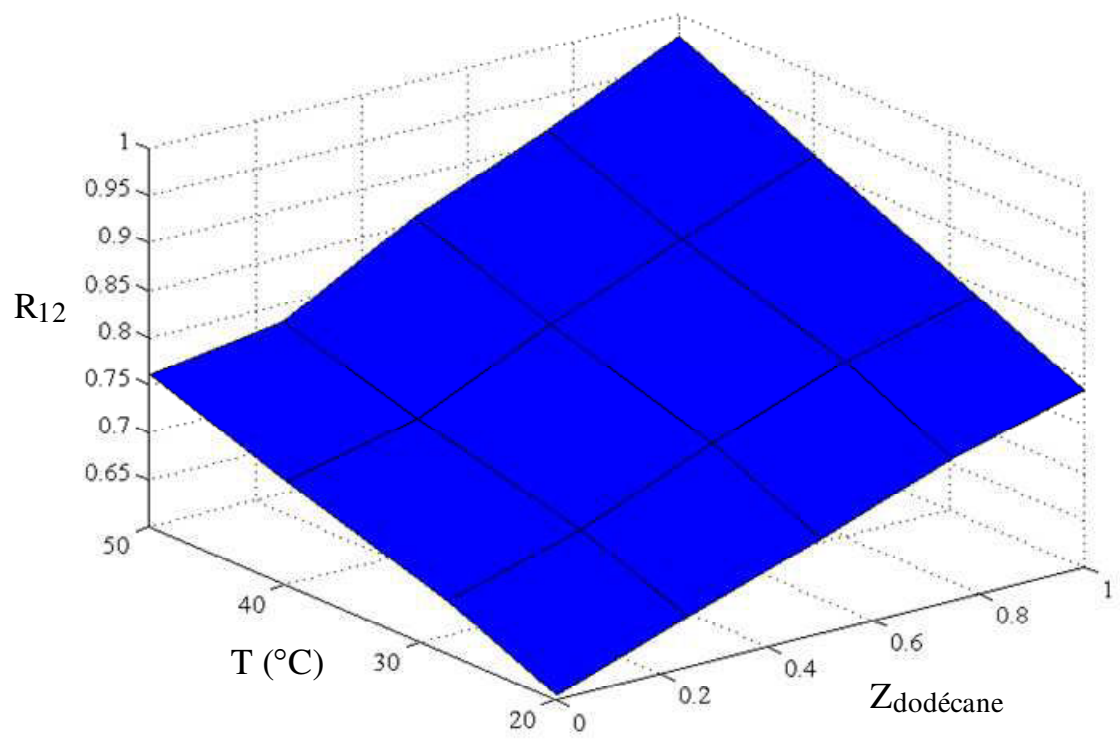
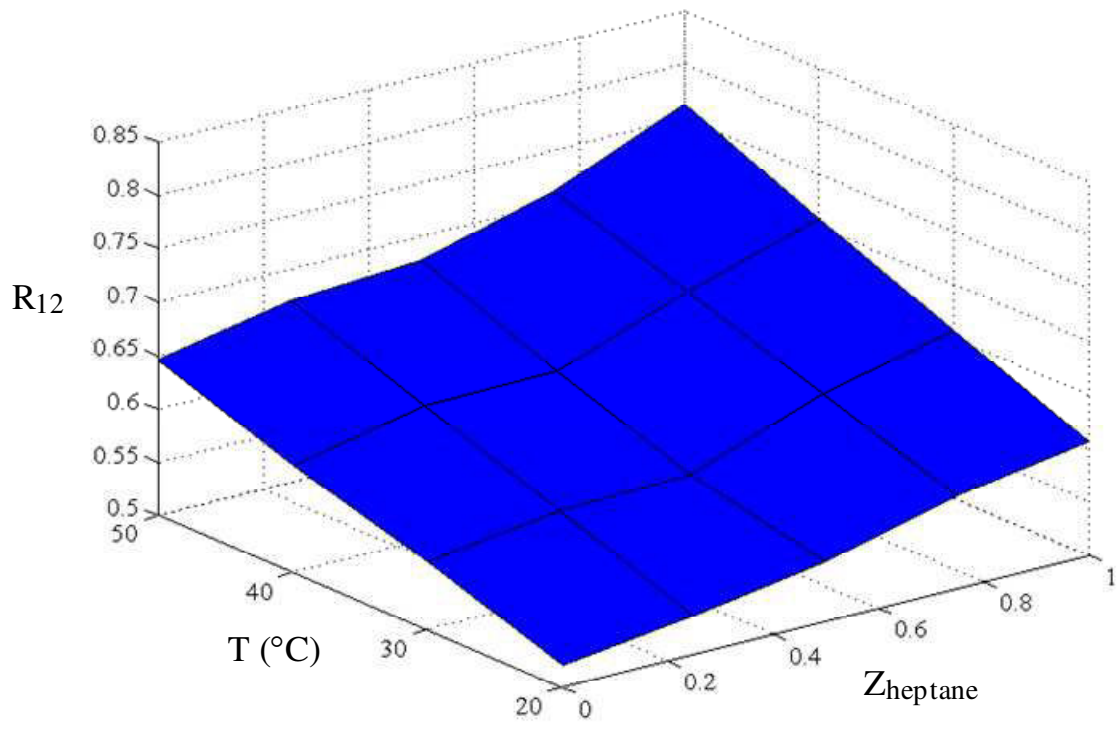
Sur la Figure 3.20, le rapport de fluorescence  $R_{12}$  correspondant aux bandes spectrales [540 nm - 560 nm] et [610 nm - 630 nm] est représenté en fonction de la fraction volumique de n-dodécane. Ce rapport a été déterminé grâce au dispositif expérimental utilisé pour les calibrations en température (Figure 3.10). Ainsi, dans une cuve contenant un volume prédéfini de n-dodécane, un volume précis d'isohehexane est ajouté et est rapidement mélangé au n-dodécane à l'aide d'un agitateur magnétique. Le rapport de fluorescence est ensuite mesuré pour chaque composition. L'expérience est refaite en versant cette fois le n-dodécane dans l'isohehexane afin de couvrir plus facilement et rapidement toute la gamme de composition. En fait, la volatilité de l'isohehexane est une contrainte pour ces mesures, car l'isohehexane peut facilement s'évaporer au cours de la mesure et ainsi modifier la composition.



**Figure 3.20 :** Evolution du rapport de fluorescence  $R_{12}$  calculé en fonction de la composition du mélange binaire n-dodécane/isohehexane à 20°C.

La Figure 3.20 montre l'influence de la composition à une température de 20°C. Il est aussi nécessaire de déterminer comment cette dépendance à la composition évolue pour d'autres températures. Ainsi, avec la même démarche que pour les mesures à 20°C, le rapport de fluorescence  $R_{12}$  a été mesuré pour chaque mélange binaire à différentes températures et différentes compositions. Dans le cas des mélanges n-dodécane/isoheptane et n-dodécane/n-heptane, les différentes fractions volumiques de n-dodécane auxquelles ont été réalisées les mesures correspondent à  $Z_{dodécane}=100\%$ , 75%, 50%, 25% et 0%. Dans le cas du mélange n-heptane/isoheptane, les fractions volumiques d'heptane sont  $Z_{heptane}=100\%$ , 75%, 50%, 25% et 0%. Les résultats de ces mesures sont représentés sur la Figure 3.21. Les données ont permis de dresser une carte de l'évolution du rapport de fluorescence  $R_{12}$  en fonction de la composition et de la température en interpolant les différents points de mesure. Dans le cas du mélange n-dodécane/isoheptane, le nombre de points est insuffisant pour décrire finement les variations du rapport de fluorescence sur une large gamme de composition, néanmoins une tendance globale se dessine et permet de considérer que la sensibilité du rapport de fluorescence à la composition et à la température peut-être séparée. Ainsi, la calibration en composition déterminée sur la Figure 3.20 à 20°C sera considérée comme suffisante pour corriger l'effet de la composition quelque soit la température de la goutte. Dès lors, une stratégie peut être proposée pour déterminer la température des gouttes de ce mélange.





**Figure 3.21:** Evolution du rapport de fluorescence  $R_{12}$  en fonction de la température et de la fraction volumique  $Z_{dodécane}$  en dodécane du mélange binaire *n*-dodécane/isoheptane (en -a) et *n*-dodécane/heptane (en -c) et de la fraction volumique  $Z_{heptane}$  pour le mélange binaire *n*-heptane/isoheptane (en -b).

Comme il sera observé lors des mesures sur les gouttes (chapitre 4), le dodécane s'évapore extrêmement peu sur les quelques ms des observations dans les conditions expérimentales généralement rencontrées à savoir  $T_0 \sim 25^\circ\text{C}$ ,  $V \sim 10$  m/s,  $D \sim 100\mu\text{m}$  et  $T_{amb} = 540^\circ\text{C}$ . Ceci n'est pas le cas de l'isohexane, qui présente une volatilité beaucoup plus importante, d'où une assez forte réduction du diamètre des gouttes d'isohexane sur ce même temps d'observation. En conséquence, dans le cas d'un mélange binaire n-dodécane/isohexane, il sera considéré que seul l'isohexane s'évapore. Il devient alors possible de déterminer la composition du mélange en chaque point de mesure connaissant la taille des gouttes. La conservation de la masse de n-dodécane à l'intérieur de la goutte s'écrit selon:

$$\rho_{dodecane}(T_i) Z_i \frac{\pi D_i^3}{6} = \rho_{dodecane}(T_0) Z_0 \frac{\pi D_0^3}{6} \quad (3.28)$$

Dans cette expression, l'indice 0 réfère à l'instant initial ici le premier point de mesure. N'étant pas directement mesurée, la valeur de  $Z_0$  est posée égale à la fraction volumique de n-dodécane à l'injection, ce qui implique une évaporation très limitée de la goutte sur le parcours entre l'injection et le premier point de mesure. Afin de déterminer la composition de la goutte au temps  $t_i$ , une procédure itérative est mise en œuvre car les valeurs de  $Z_i$  et de  $T_i$  sont tous deux à priori inconnues. Dans un premier temps,  $T_i$  est fixé comme étant la température calculée directement à partir du rapport de fluorescence sans aucune correction de la composition et l'équation (3.28) est utilisée afin de déterminer la nouvelle fraction volumique  $Z_i$ . Le rapport de fluorescence corrigé de l'effet des variations de composition est donné par:

$$R_{12,corr} = \frac{f(V_0)}{f(V_i)} R_{12} \quad (3.29)$$

où  $f(V) = 0.1986 V^2 + 0.1131 V + 0.4867$  correspond à la calibration en composition établie à la Figure 3.20. Le calcul de la fraction  $Z_i$  est répété une nouvelle fois avec la nouvelle valeur de  $T_i$  obtenue après conversion du rapport de fluorescence  $R_{12,corr}$  en température. Dans la pratique, 2 ou 3 itérations suffisent pour converger suivant ce schéma.

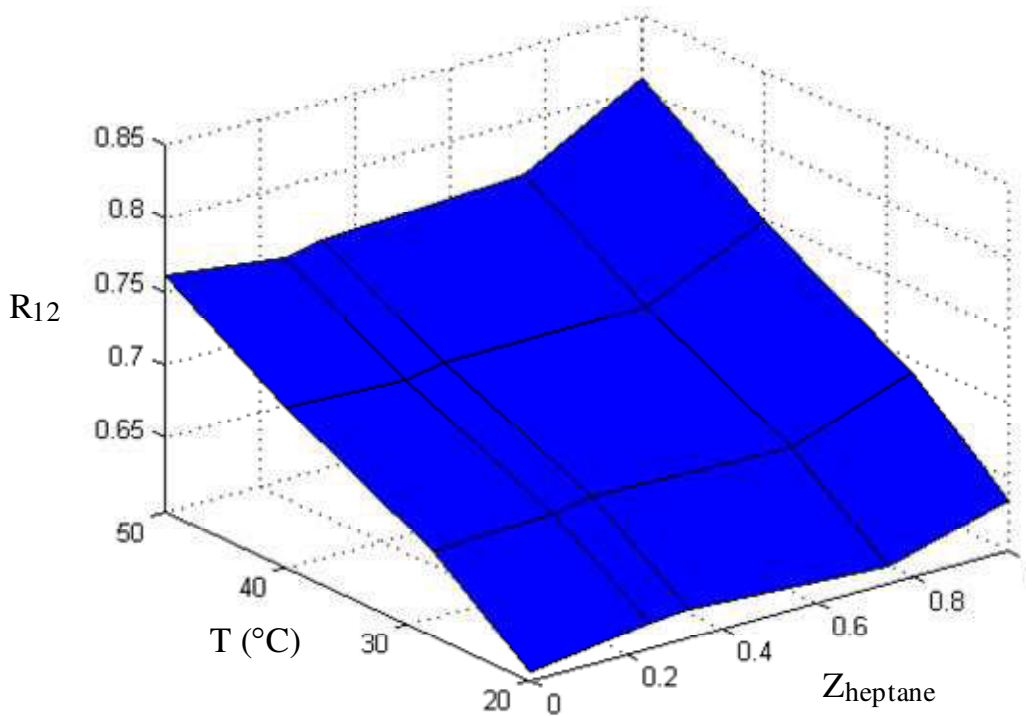
Cette correction de la température a l'avantage d'être simple à implémenter. Cependant elle n'est valable que dans le cas d'un mélange entre un composé lourd et léger. Son application doit aussi être considérée avec précaution. Comme il sera montré au chapitre 4, la température 2cLIF est surtout représentative de la région centrale de la goutte, alors que  $Z_i$  et  $T_i$  sont considérées ici comme des quantités moyennées sur le volume total de la goutte. En général, rien ne permet d'affirmer que  $Z_i$  et  $T_i$  sont uniformes dans la goutte. On sait même qu'il peut y avoir des gradients importants.

Il est donc difficile d'établir la température de gouttes binaires isohexane/n-dodécane avec la même précision que dans le cas des composés purs. Afin de vérifier la pertinence de la correction apportée pour l'effet de la variation composition, il faudrait connaître la distribution spatiale de la température et de la concentration à l'intérieur de la goutte. On peut penser que la température de la goutte est comprise entre la valeur mesurée et la valeur issue de la correction précédente.

Dans le cas d'un mélange binaire n-heptane/isoheptane, il n'est plus possible de supposer comme précédemment que seul le composé le plus volatil s'évapore durant le temps d'observation de la goutte car la volatilité de ces deux espèces est beaucoup plus proche. Il est alors possible de prendre en considération la comparaison des taux d'évaporation, dans le cas des composants pris purs, pour des conditions expérimentales identiques. Ainsi, pour des conditions identiques (température d'injection, fréquence d'injection, vitesse et taille des gouttes, température ambiante), l'influence de l'évaporation des deux combustibles mélangés sur l'évaporation globale de la goutte pourrait être considérée comme proportionnelle à celle de chacun des deux composants. Cette approximation est moins fiable que la précédente pour un mélange de composants présentant des volatilités très différentes, mais elle permet néanmoins d'obtenir de manière simple un bon ordre de grandeur de l'évolution de la composition au sein de la goutte, et ainsi de déterminer approximativement la température de la goutte, l'influence de la composition sur le rapport de fluorescence étant connue.

### **Cas des mélanges ternaires de corps purs**

L'ajout d'un composant supplémentaire rend nettement plus complexe la maîtrise de la composition du mélange. En effet, l'objectif de l'étude d'un combustible composé d'un mélange ternaire de corps purs est d'étudier le cas de corps purs dont les volatilités respectives sont très contrastées. En conséquence et au regard de l'étude sur les mélanges binaires, le mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isoheptane sera investigué. Ce mélange présente potentiellement une influence parasite de la composition sur le rapport de fluorescence, en revanche il constitue un mélange idéal. La Figure 3.22 présente l'évolution du rapport de fluorescence en fonction de la fraction volumique de n-heptane dans le mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isoheptane avec  $Z_{heptane} = 1, 0,75, 0,33, 0,25$  et  $0$  et, pour chacun des mélanges, une fraction volumique identique de n-dodécane et d'isoheptane. Une faible dépendance du rapport de fluorescence à la fraction de n-heptane est observée jusqu'à une fraction volumique de 0,75 où la dépendance à la fraction volumique en n-heptane semble plus importante, ceci jusqu'au cas n-heptane pur.



**Figure 3.22:** Evolution du rapport de fluorescence  $R_{12}$ , en fonction de la température et de la fraction volumique  $Z_{heptane}$  de n-heptane du mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isoheptane avec une fraction volumique identique de n-dodécane et d'isoheptane.

Comme dans le cas du mélange binaire isoheptane/n-dodécane, la très faible volatilité du n-dodécane permet de supposer qu'il ne s'évapore pas aux températures relativement basses auxquels les gouttes seront injectées sur le temps des observations. Néanmoins, une évaporation différentielle de l'isoheptane et du n-heptane est attendue. Cependant, en utilisant des mélanges avec une fraction volumique de n-heptane inférieure à 0,75, il peut être supposé que seul le changement de fraction volumique d'isoheptane, dû à son évaporation, par rapport au n-dodécane est susceptible d'avoir une incidence sur le rapport de fluorescence et ce de manière similaire au cas du mélange binaire isoheptane/n-dodécane. La méthode proposée pour la correction de la température est la même que celle utilisée pour le mélange binaire isoheptane/n-dodécane mais en ne considérant que la proportion volumique entre l'isoheptane et le n-dodécane pour calculer la fonction  $f(V)$  dans l'équation (3.29). Cependant, si le volume de n-dodécane dans la goutte peut facilement être déterminé en supposant qu'il ne s'évapore pas, la réduction du diamètre est liée à l'évaporation de l'isoheptane principalement mais aussi du n-heptane ce qui ne permet donc pas de connaître précisément l'évolution de la fraction volumique de ces deux composés dans la goutte. Des simulations représentatives des expériences réalisées (décrites au chapitre 4) montrent que la fraction volumique de n-heptane varie très peu comparativement à l'isoheptane. Ainsi, il devient possible d'estimer la proportion de n-dodécane dans la goutte par rapport à celle d'isoheptane et d'utiliser la correction associée à ce mélange binaire.



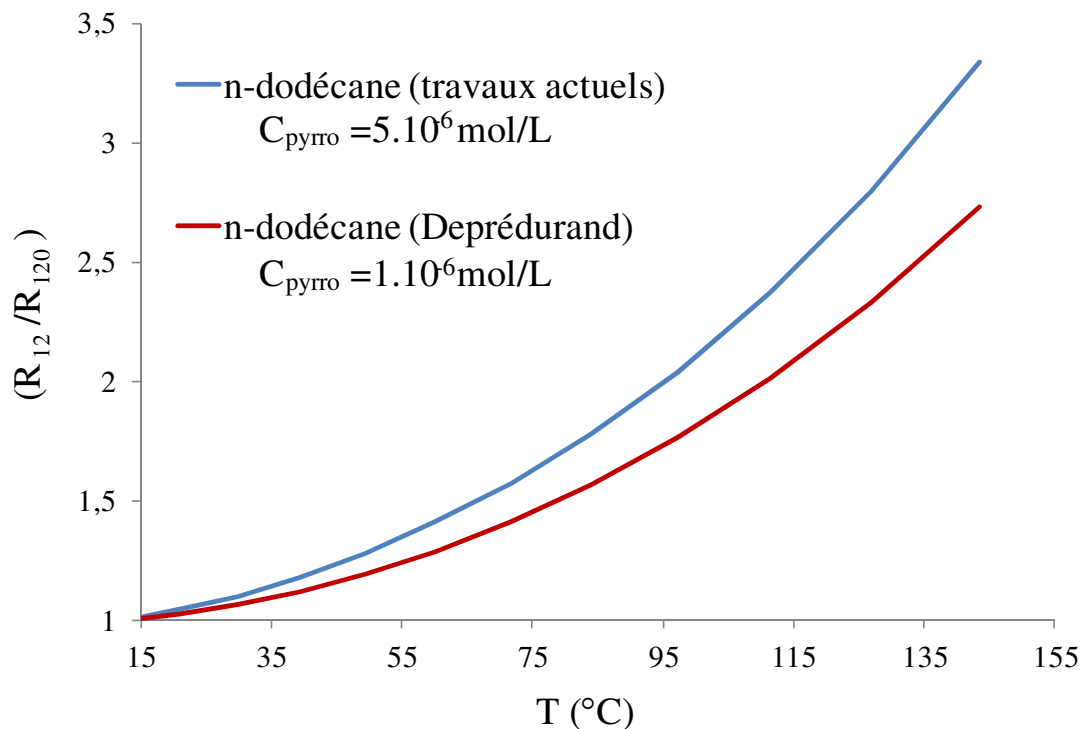
## 2.4. Calibration en température du traceur fluorescent dans son solvant

### 2.4.1. Objectifs des calibrations

L'observation des spectres d'émissions de fluorescence du pyrrométhène 597-8C9 nous a permis de sélectionner les bandes spectrales qui permettront d'assurer la meilleure précision pour la mesure de température. Afin de déterminer avec précision cette sensibilité à la température, il est nécessaire de mesurer expérimentalement la variation du rapport des signaux de fluorescence collectés sur chacune des bandes spectrales en fonction de la température. Pour cela, des calibrations sont effectuées dans la cellule contrôlée en température qui a également été utilisée pour la mesure des spectres et qui est décrite section 2.3.2.1.

### 2.4.2. Résultats expérimentaux concernant les calibrations

Comme précisé dans la section 2.3.2.5, les bandes spectrales sélectionnées diffèrent légèrement de celles choisies par Deprédurand [17]. La Figure 3.23 compare la calibration en température obtenue dans ces travaux et celle obtenue par Deprédurand [17] pour le pyrrométhène 597-8C9 en solution dans du n-dodécane.



**Figure 3.23:** Calibrations en température du pyrrométhène 597-8C9 ensemencé dans le n-dodécane mesurées dans le cadre de ces travaux avec les bandes spectrales [540 nm-560 nm] et [610 nm-630 nm] (fluorescence induite à 532 nm) et Deprédurand avec les bandes [540 nm - 560 nm] et [590-610 nm] (fluorescence induite à 514,5 nm).

Il apparaît clairement que le choix judicieux de la seconde bande spectrale et que l'excitation de la fluorescence à 532 nm améliorent significativement la sensibilité en température de la méthode.

### Calibrations dans le cas des corps purs

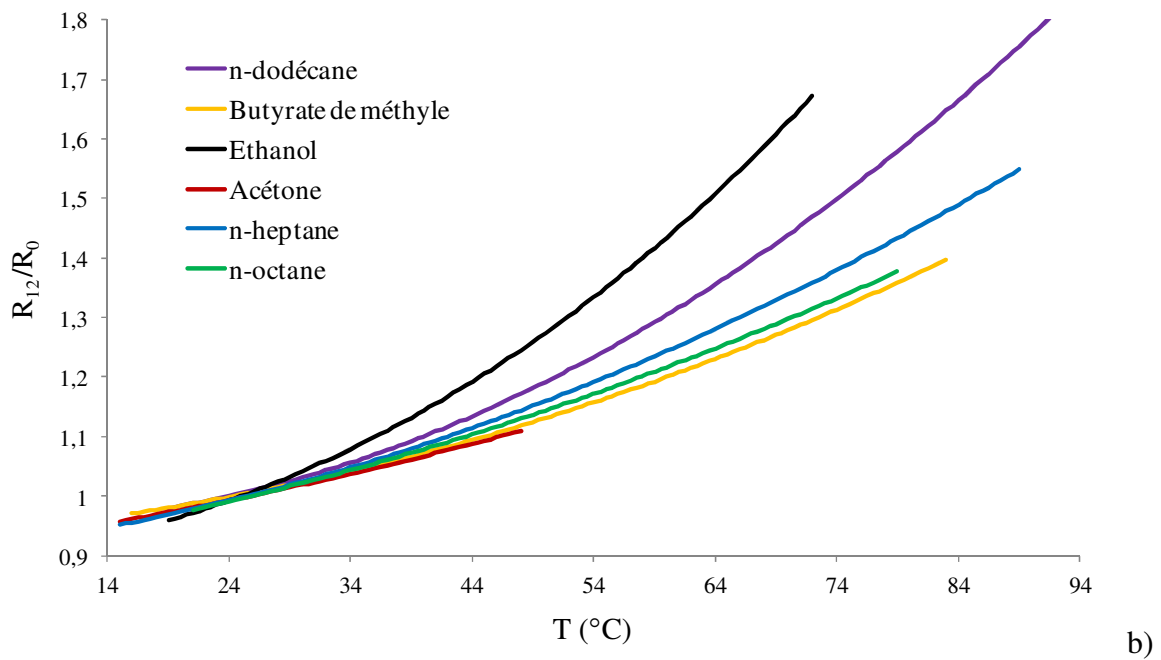
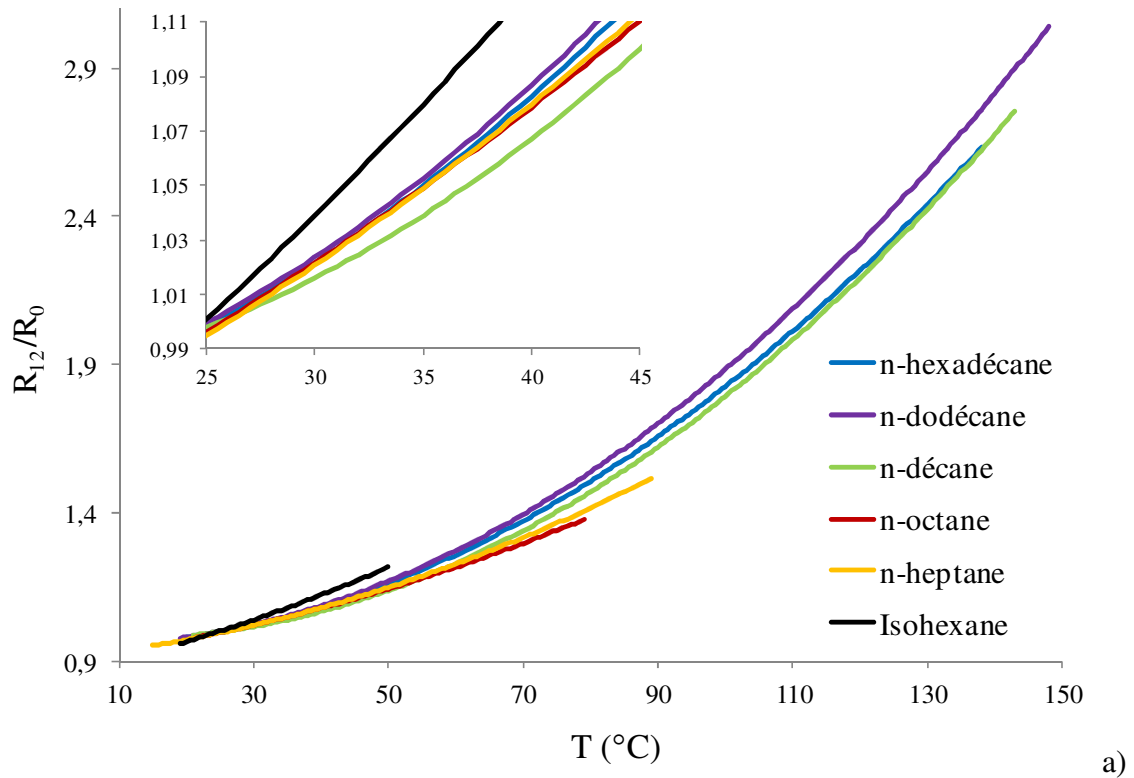
Des calibrations en température ont tout d'abord été effectuées dans le cas des corps purs et sont superposées sur la Figure 3.24 pour différents solvants dans lesquels le pyrrométhène 597-8C9 est mis en solution. Afin de comparer les différentes courbes entre elles, celles-ci ont été normalisées par un rapport de fluorescence de référence  $R_n$  défini par :

$$R_n = R_{12}/R_{120} \quad (3.30)$$

avec  $R_{120}$ , le rapport de fluorescence pris à 25°C.

La nature du solvant semble clairement influencer la sensibilité en température mesurée. Ces différences peuvent s'interpréter par la redistribution de l'énergie à l'état excité du fait d'interactions intermoléculaires, ces phénomènes étant dépendant de la température. Des différences marquées existent entre certains solvants, même issus d'une même famille : à titre d'exemple, l'isohexane issu de la famille des alcanes présente une plus forte variation du rapport de fluorescence en fonction de la température que pour les autres alcanes. La sensibilité en température varie également fortement avec le domaine de température : par exemple, le pyrrométhène 597-8C9 en solution dans le n-décane (Figure 3.24-a) voit sa sensibilité en température s'accroître avec l'augmentation de la température.

Sur la Figure 3.24-b, sont représentées les calibrations en température du pyrrométhène 597-8C9 de composants provenant d'autres familles chimiques tel l'éthanol, le butyrate de méthyle et l'acétone qui sont représentées en parallèle avec des calibrations réalisés à l'aide de différents alcanes. Ainsi, les calibrations correspondant aux trois composés de volatilité voisine, n-octane, n-heptane et butyrate de méthyle, sont très proches. Le pyrrométhène 597-8C9 en solution dans l'éthanol, (Figure 3.24-b) présente une sensibilité en température bien supérieure à celle obtenue dans d'autres solvants. L'acétone et le butyrate de méthyle présentent une tendance similaire. L'utilisation de ces molécules en mélange binaire semble intéressante, toutefois les données concernant les propriétés physico-chimiques du butyrate de méthyle dans la littérature sont très limitées. De plus comme, il sera vu plus loin, la similitude des sensibilités en température entre deux combustibles dans le cas où ils sont utilisés purs ne prédit pas nécessairement un comportement identique dans le cas d'un mélange de ces composants.



**Figure 3.24:** Calibration du rapport de fluorescence en fonction de la température, normalisé par la valeur du rapport à 25°C pour les alcanes (a) et pour d'autres familles de combustibles (b).

D'après les travaux de Lavieille et al. [12], les courbes de calibration en température peuvent être ajustées par une fonction du type :

$$\ln\left(\frac{R_{12}}{R_{120}}\right) = \frac{A}{T^2} + \frac{B}{T} + C \quad (3.31)$$

où  $A$ ,  $B$  sont des constantes intrinsèques qui dépendent du traceur fluorescent dans son solvant et  $C$  est une constante qui dépend de la référence  $T_0$  utilisée correspondant au rapport de fluorescence  $R_{120}$ . Les résultats concernant les coefficients  $A$  et  $B$  pour les différents solvants sont donnés dans le Tableau 3.2 avec leur domaine de validité en température respectif.

Solvant	Coefficient $A$ ( $K^2$ )	Coefficient $B$ ( $K$ )	Plage de température
Ethanol	981802	-7263,1	19°C < T < 72°C
Acétone	279650	-2252,7	15°C < T < 48°C
Butyrate de méthyle	441636	-3286,6	16°C < T < 83°C
Isohexane	362233	-3082,2	16°C < T < 50°C
n-heptane	463493	-3574,3	15°C < T < 89°C
n-octane	375941	-2958,3	21°C < T < 79°C
n-décane	759718	-5603,1	21°C < T < 143°C
n-dodécane	680881	-5113,1	19°C < T < 148°C
n-hexadécane	694208	-5072,0	20°C < T < 138°C

**Tableau 3.2:** Récapitulatif des coefficients de calibration en température du pyrrométhène 597-8C9 dilué à  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  dans différents combustibles purs.

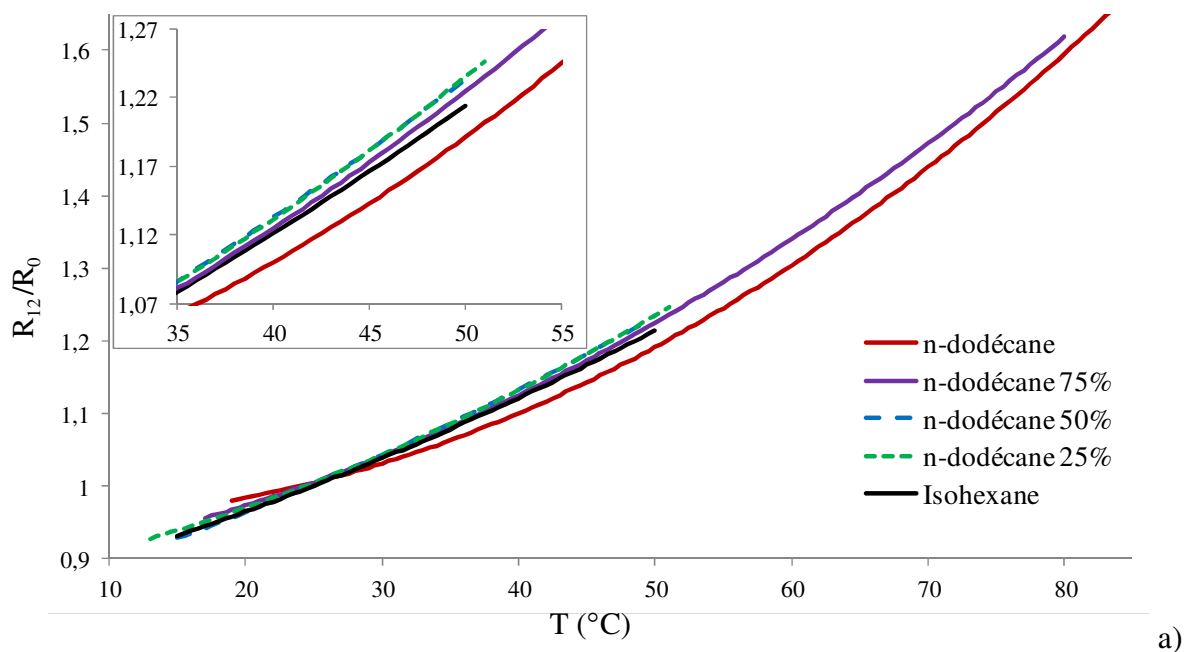
Le domaine de validité en température diffère pour chacun des solvants considéré, la limite étant la température d'ébullition du liquide à la pression atmosphérique, ébullition constatée dans un premier temps autour de la résistance chauffante (Figure 3.10) où la température est maximale. En outre, il est impossible de dépasser la température de 150°C pour les calibrations des liquides les moins volatiles, du fait de la résistance thermique de la cuve utilisée. Ainsi, pour les combustibles les moins volatiles, cette sensibilité sera extrapolée au-delà de 150°C en utilisant une courbe de tendance identique à celle utilisée pour les températures inférieures.

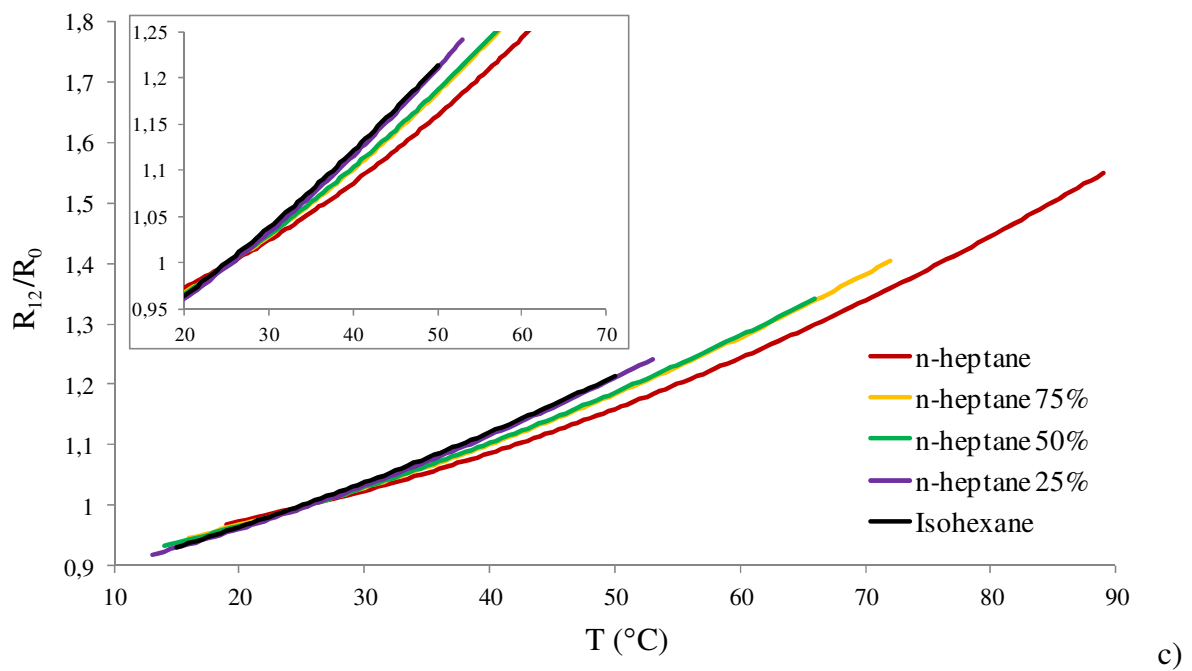
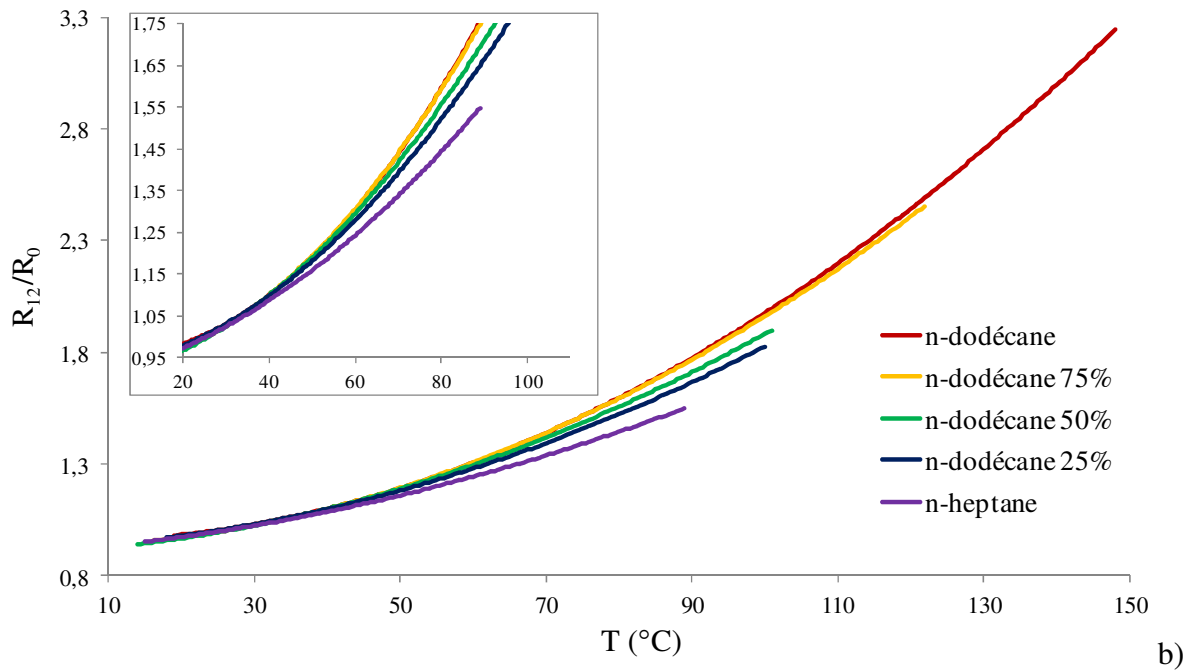
### Calibrations dans le cas des mélanges binaires

Les calibrations en température des trois mélanges binaires n-dodécane/isohexane (a), n-dodécane/n-heptane (b) et n-heptane/isohexane (c) en utilisant trois fractions volumiques de n-dodécane (75%, 50% et 25%) sont reportées sur la Figure 3.25. Celles-ci sont représentées parallèlement aux courbes de calibration correspondant au cas des composants du mélange étudié.

Pour le mélange binaire n-dodécane/isohexane (Figure 3.25-a), les trois mélanges proposés présentent une sensibilité supérieure à celle des deux composants purs. Les calibrations correspondant à des fractions volumiques de 50% et 25% de n-dodécane sont pratiquement superposées. Cela signifie dans la pratique qu'un mélange comportant une fraction volumique initiale de 25% de n-dodécane, qui augmenterait au cours de l'évaporation d'une goutte du fait de l'évaporation préférentielle de l'isoheptane (composant le plus volatile) ne présenterait pas de sensibilité à la composition jusqu'à une fraction volumique de n-dodécane égale à 50%. Si la composition initiale est inversée en proportion, une sensibilité à la composition peut exister.

Pour le mélange binaire n-dodécane/n-heptane (Figure 3.25-b), l'effet de la composition demeure négligeable pour une fraction volumique de n-dodécane supérieure à 75% et dans le cas du mélange n-heptane/isoheptane (Figure 3.25-c), l'effet de la composition restera modeste pour des fractions volumiques de n-heptane comprises entre 50% et 75% ou encore comprise entre 0 et 25%.





**Figure 3.25:** Calibration en température du pyrrométhène 597-8C9 dans des mélanges binaires *n*-dodécane/isohexane (a), *n*-dodécane/*n*-heptane (b) et *n*-heptane/isohexane (c) avec 5 fractions volumiques différentes pour chaque type de mélange binaire.

L'estimation des coefficients *A* et *B* de l'équation (3.31) est donnée dans le Tableau 3.3 avec leur domaine de validité en température pour chacun des mélanges.

Il est à noter que dans le cas des mélanges, la température maximale atteinte lors des calibrations peut dépasser la température d'ébullition du composant le plus volatil, du fait des propriétés du mélange.

Solvant	Coefficient A ( $K^2$ )	Coefficient B (K)	Plage de température
n-dodécane	680881	-5113,1	19°C <T<148°C
n-heptane	463493	-3574,3	15°C <T<89°C
Isohexane	362233	-3082,2	16°C <T<50°C
Dodécane-isohehexane			
n-dodécane 75%	572432	-4453,7	17°C <T<80°C
n-dodécane 50%	376373	-3228,7	15°C <T<50°C
n-dodécane 25%	562617	-4423,1	13°C <T<51°C
Heptane-isohehexane			
n-heptane 75%	440662	-3503,4	16°C <T<72°C
n-heptane 50%	393599	-3210,2	14°C <T<66°C
n-heptane 25%	475209	-3820,8	13°C <T<53°C
Dodécane-heptane			
n-dodécane 75%	680240	-5103,5	16°C <T<122°C
n-dodécane 50%	599567	-4563,9	14°C <T<101°C
n-dodécane 25%	599667	-4506,1	18°C <T<100°C

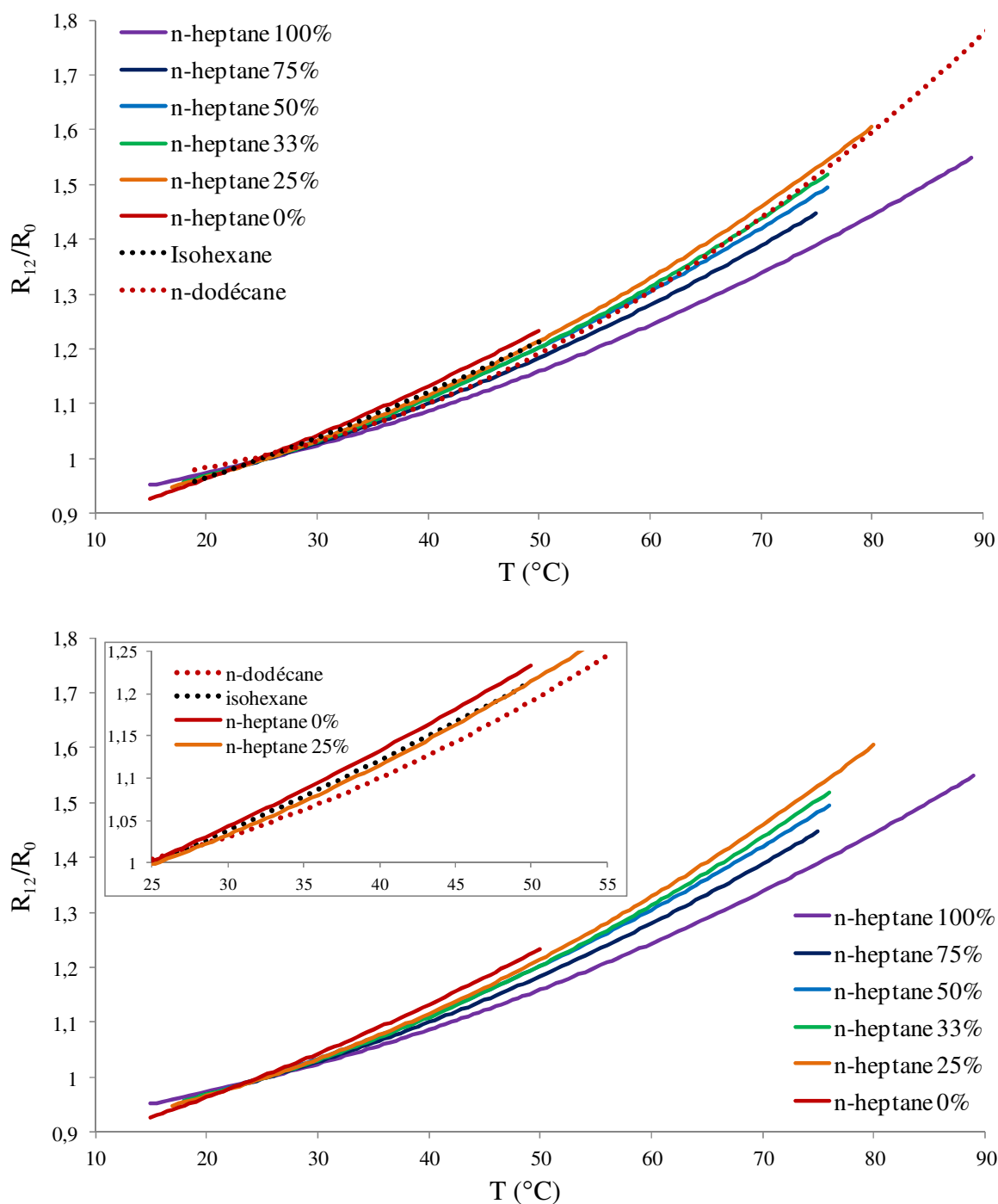
**Tableau 3.3:** Récapitulatif des coefficients de calibration en température du pyrrométhène 597-8C9 dilué à  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  dans les mélanges binaires n-dodécane/isohehexane et n-heptane/isohehexane et n-dodécane/n-heptane pour différentes fractions volumiques.

### Calibrations dans le cas des mélanges ternaires

Sur la Figure 3.26 sont représentées les courbes de calibration en température du mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isohehexane avec en parallèle le cas des composés purs.

Dans le cas d'un mélange ternaire, il devient difficile d'appliquer la méthode utilisée dans le cas des mélanges binaires afin d'appréhender l'effet des changements de composition sur le signal de fluorescence. Le but ici n'est pas de déterminer précisément l'influence de chaque composant du mélange ternaire sur le rapport de fluorescence mais d'en estimer les conséquences afin de sélectionner quelques compositions pour lesquelles l'influence d'une variation du fait de l'évaporation préférentielle des espèces les plus volatiles n'aura qu'un effet limité. Ainsi, un premier mélange ternaire équimolaire a été considéré. Pour ce mélange composé d'un tiers de n-dodécane, un tiers de n-heptane et un tiers d'isohehexane, il apparaît clairement que l'isohehexane est le solvant qui influence le plus l'évolution du rapport de fluorescence en fonction de la température (Figure 3.26). La présence de n-heptane, semble faiblement influencer la sensibilité du mélange ternaire comme dans le cas des mélanges binaires n-heptane/isohehexane et n-dodécane/n-heptane. En conséquence, l'étude sera basée uniquement sur la variation de la fraction volumique de n-heptane. Pour chaque

mélange ternaire étudié (Figure 3.26), une fraction volumique identique de n-dodécane et d'isohexane a été utilisée pour différentes fractions volumiques de n-heptane.



**Figure 3.26:** Calibration en température pour le mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isohexane avec les fractions volumiques de n-heptane  $Z_{heptane}=100\%$ , 75%, 50%, 33% et 25% et 0%, les proportions de n-dodécane et d'isohexane étant identiques.

Les coefficients de calibrations  $A$  et  $B$  de l'équation (3.31) estimés par un ajustement polynomiale au sens des moindres carrés, pour tous les solvants et les différents mélanges sont résumés dans le Tableau 3.4 avec le domaine de validité en température pour chaque mélange.



Solvant	Coefficient A ( $K^2$ )	Coefficient B (K)	Plage de température
n-dodécane	680881	-5113,1	19°C <T<148°C
n-heptane 100%	463493	-3574,3	15°C <T<89°C
Isohexane	362233	-3082,2	16°C <T<50°C
n-heptane 75%	496588	-3865,9	18°C <T<72°C
n-heptane 50%	508206	-3985,0	21°C <T<62°C
n-heptane 33%	587114	-4509,0	18°C <T<76°C
n-heptane 25%	580309	-4500,6	17°C <T<80°C
n-heptane 0%	599567	-4563,9	14°C <T<101°C

**Tableau 3.4:** Récapitulatif des coefficients de calibration en température du pyrrométhène 597-8C9 dilué à  $5.10^{-6} \text{mol.L}^{-1}$  dans des mélanges ternaires n-dodécane-n-heptane-isohexane constitués de proportions identiques de dodécane et d'isohexane pour différentes fractions volumique de n-heptane.

## 2.5. Traitement du signal pour la mesure de la température des gouttes

L'objectif est de décrire la procédure de traitement des signaux en tension issues des photomultiplicateurs implantés sur chacune des deux voies de mesure correspondant aux deux bandes spectrales de détection.

Dans un premier temps, le bruit optique et électronique de l'ensemble de la chaîne de mesure est mesuré sur chacune des voies en effectuant une acquisition des intensités dans le noir. Ce bruit moyen, de l'ordre de 50 niveaux sur 4096, est ensuite retranché au signal acquis lorsqu'une mesure réelle sera effectuée.

Afin d'obtenir une mesure la plus précise possible, il est nécessaire d'obtenir le meilleur rapport signal sur bruit sur chacune des voies de mesure, sans saturer en amplitude la chaîne électronique. Ainsi, une intensité de l'ordre de 3500 niveaux sur 4096 est recherchée, lorsqu'une goutte passe dans le volume de mesure et y est parfaitement centrée. A cet effet, l'intensité du signal collecté peut être ajustée en modifiant la haute tension appliquée aux photomultiplicateurs et en second lieu en modulant l'intensité laser.

Le signal de fluorescence est échantillonné à 10 kHz sur chacune des voies de mesure. La détection des gouttes s'opère à l'aide d'une valeur seuil située au dessus du bruit de mesure. Ce seuil peut être relevé pour éviter les gouttes présentant une interaction marginale avec le volume de mesure, en particulier lorsque leur trajectoire s'écarte de la ligne droite, loin du point d'injection. De plus, les gouttes présentant au moins un échantillon saturé (supérieur à 4096 niveaux) sont éliminées du traitement afin de ne pas biaiser le calcul ultérieur de la moyenne.

Ainsi, pour chaque goutte dont le niveau d'intensité est validé sur les voies (Figure 3.27), l'intensité de fluorescence est cumulée sur chaque voie pour un nombre de gouttes prédéfini et choisi par l'opérateur. Dans la pratique, le calcul du rapport de fluorescence  $R_{12}$  s'effectue sur 20000 gouttes.

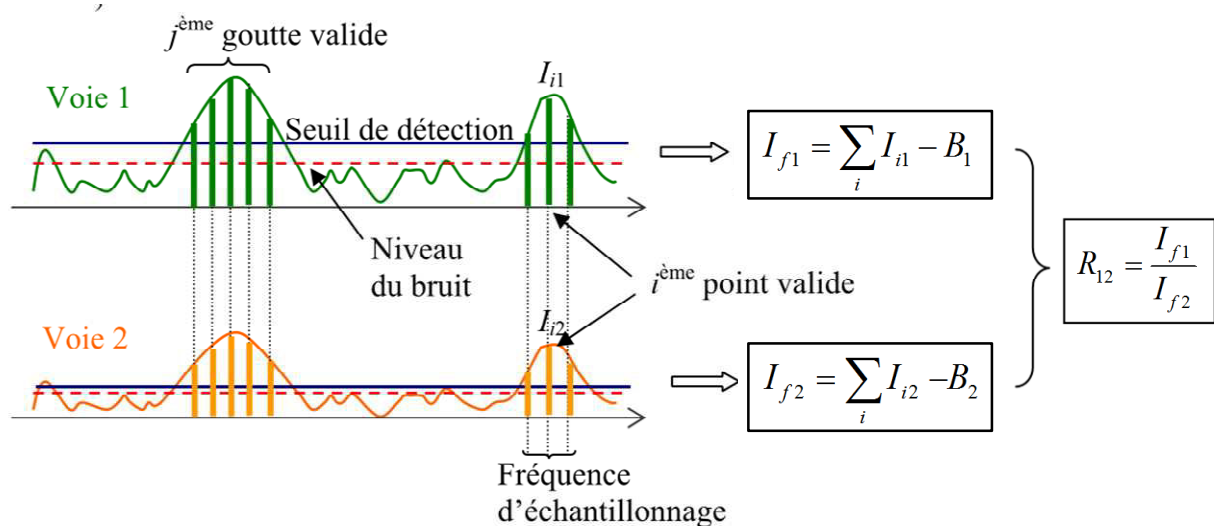
Pour chaque échantillon d'intensité  $I_{i1}$  et  $I_{i2}$  supérieur au seuil, paramètre qui est choisi pour chacune des voies de mesures, l'intensité moyenne sur chacune des voies de mesure retranchée du bruit moyen  $B_1$  et  $B_2$  respectivement, s'exprime par :

$$\begin{aligned} I_{f1} &= \sum_i I_{i1} - B_1 \\ I_{f2} &= \sum_i I_{i2} - B_2 \end{aligned} \quad (3.32)$$

Le rapport de fluorescence moyen est ensuite calculé par l'opération :

$$R_{12} = \frac{I_{f1}}{I_{f2}} \quad (3.33)$$

Le rapport  $R_{12}$  ainsi calculé est ensuite converti en température.

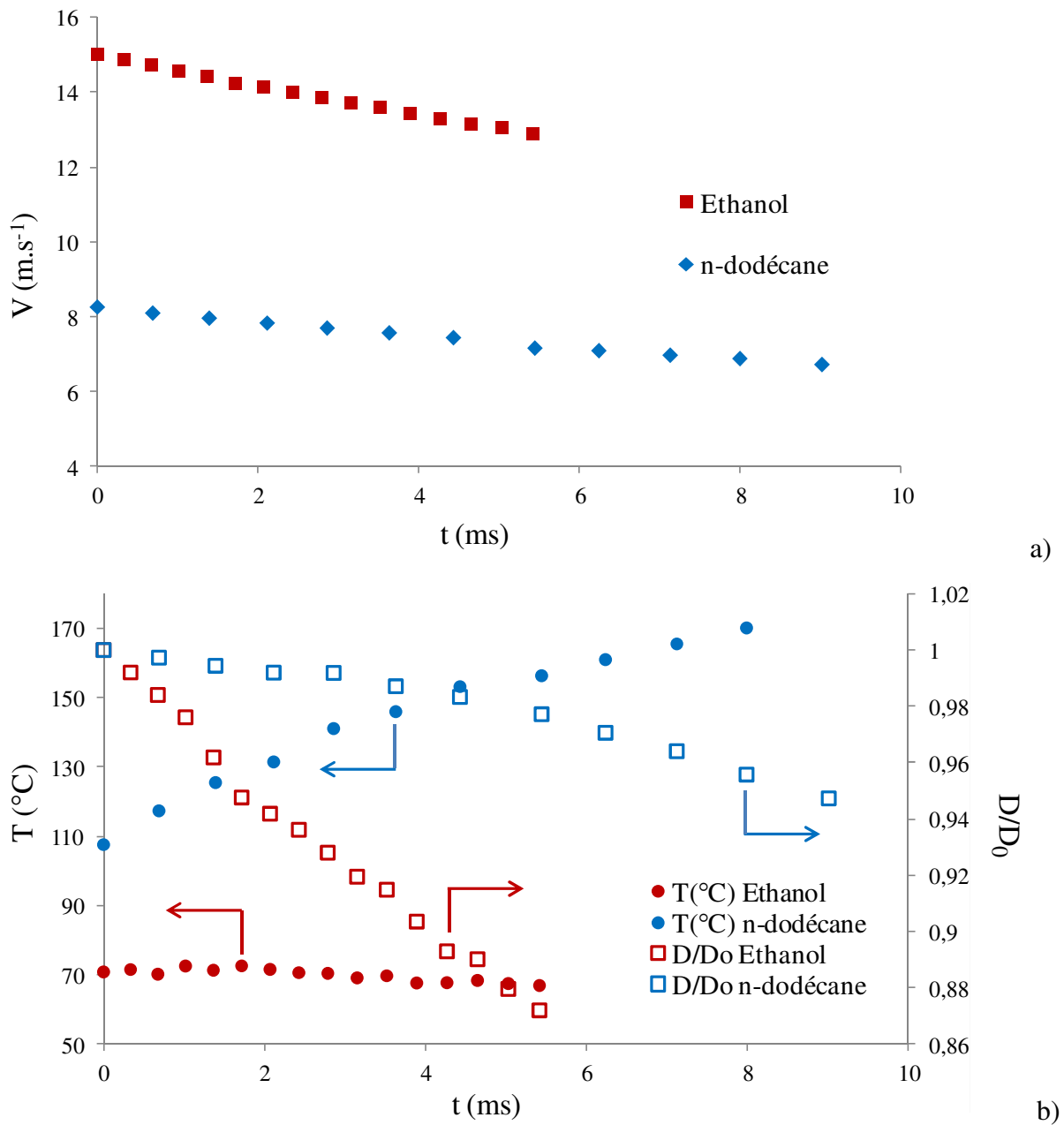


**Figure 3.27 :** Principe du traitement du signal de fluorescence pour la mesure de la température des gouttes (Castanet [62]).

## 2.6. Test de la technique de mesure dans le cas d'un jet de gouttes monodisperse en combustion

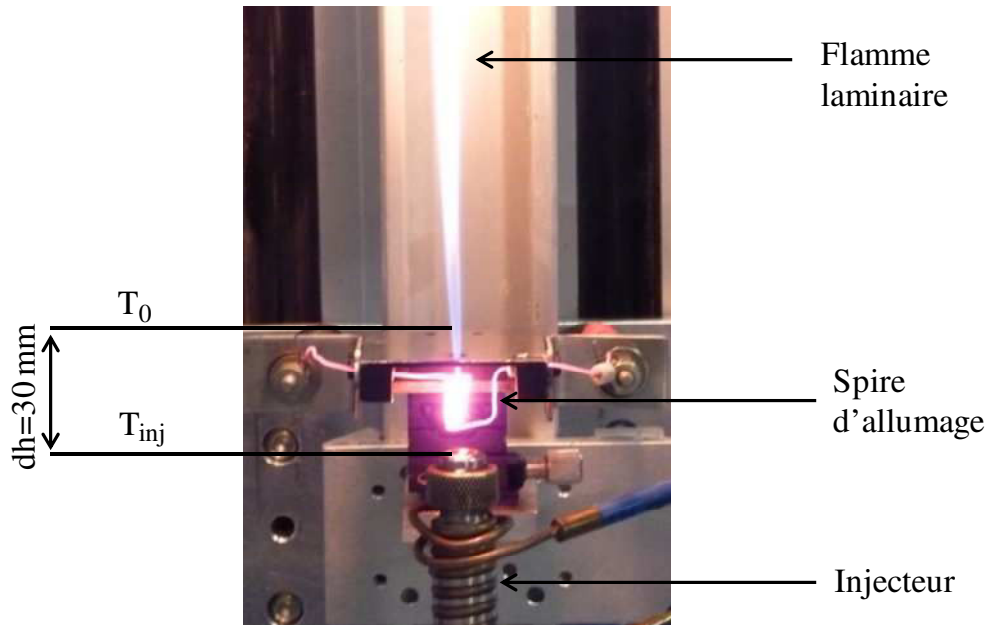
Afin de tester l'ensemble du dispositif optique et de la chaîne de traitement du signal, deux combustibles purs, l'éthanol et le dodécane, ont été testés dans le cas d'un jet de gouttes monodisperse en combustion. Le dispositif de mise en combustion est celui décrit au 0, section 1.21.2. L'évolution temporelle de diamètre, mesurée par la technique d'ombroscopie quantitative décrite au Chapitre 2 section 3, et de la température mesurée par 2cLIF sont représentés sur la Figure 3.28-b, dans le cas de gouttes d'éthanol ( $D_0=112,1 \mu\text{m}$ ) et de n-

dodécane ( $D_0=121,6 \mu\text{m}$ ). La vitesse des gouttes utilisée afin de convertir la distance parcourue depuis le point d'injection en temps est représentée sur la Figure 3.28-a. L'origine des temps  $t=0 \text{ ms}$  représente le premier point de mesure situé à 30 mm au dessus du point d'injection. Dans les deux cas, même si les vitesses d'injection sont différentes, la vitesse décroît au cours du temps du fait de l'effet combiné de la force de traînée et de gravité.



**Figure 3.28:** *a-* Evolution temporelle de la vitesse des gouttes, *b-* du diamètre divisé par le diamètre au premier point de mesure. Cas de gouttes d'éthanol et de dodécane injectées initialement à 60°C dans une flamme. Au premier point de mesure (avant le dispositif d'allumage), les conditions sont : pour l'éthanol:  $T_0=60^\circ\text{C}$ ,  $D_0=112,1 \mu\text{m}$ ,  $V_0=15,01 \text{ m/s}$ ,  $C_0=5,35$  et pour le n-dodécane :  $T_0=60^\circ\text{C}$ ,  $D_0=121,6\mu\text{m}$ ,  $V_0=8,26 \text{ m/s}$ ,  $C_0=3,39$ .

Les gouttes subissent un fort échauffement du fait du passage dans la spire d'allumage avant d'arriver au premier point de mesure (Figure 3.29). Sur la Figure 3.28-b, l'écart de température entre la sortie de l'injecteur et le premier point de mesure est d'environ 10°C dans le cas de l'éthanol et est beaucoup plus élevé dans le cas du n-dodécane (près de 40°C). En effet, le n-dodécane étant moins volatile que l'éthanol, il ne s'évapore que très peu et la chaleur apportée par la spire d'allumage est principalement utilisée pour échauffer les gouttes.



**Figure 3.29** : Photographie du dispositif de mise en combustion.

Dans le cas de l'éthanol, un faible refroidissement des gouttes est observé, ce qui signifie que les gouttes ont subies un sur-échauffement par rapport à leur température d'équilibre en passant dans la spire d'allumage, notamment du fait de l'effet de confinement très important lorsque les gouttes sont à l'intérieur de la spire, ce qui explique le taux d'évaporation supérieur observé jusqu'à 2 ms. La température se stabilise ensuite aux alentours de la température d'équilibre (environ 67°C), ce qui est conforme aux travaux antérieurs de Castanet [62]. En revanche, les gouttes de n-dodécane s'échauffent régulièrement, jusqu'à environ 170°C sur la période d'observation. De manière logique, le taux d'évaporation du n-dodécane, même s'il est significatif, demeure très nettement inférieur à celui de l'éthanol. Le temps d'observation des gouttes est de près de 6 ms pour l'éthanol et de plus de 8 ms pour le n-dodécane. Cette différence est due à plusieurs facteurs, d'une part parce que la taille des gouttes de n-dodécane est plus importante, ce qui rend le jet stable sur une plus longue durée, d'autre part du fait du faible paramètre de distance qui semble avoir un effet stabilisant sur le jet.

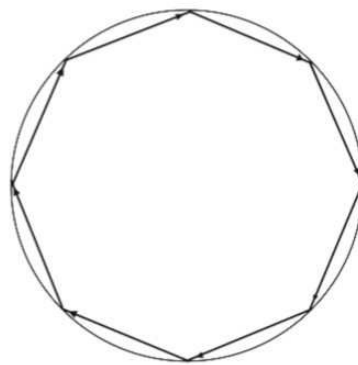
Ces premiers tests sur la flamme démontrent une très bonne fiabilité des techniques de mesure développées, qui pourront ainsi être utilisées pour réaliser une large étude paramétrique, nécessaire à la modélisation des phénomènes d'évaporation en régime de forte interaction.

## 2.7. Résonances morphologiquement dépendantes

### 2.7.1. Description du phénomène

Mises en évidence dans les années 1970 (Ashkin et Dziedzic [76]), les résonances morphologiquement dépendantes (MDR, pour Morphological Dependant Resonances) ont été étudiées depuis par de nombreux auteurs (Chylek et al. [77], Hill et al. [78], Zardini et al. [79]) qui ont fait apparaître leurs principales caractéristiques et leur potentiel en termes d'applications. Les MDR peuvent servir à mesurer de nombreuses grandeurs physiques sur les gouttes (Gang Chen et al. [80]) telles que la taille et la forme de la goutte, le taux d'évaporation, la température, la tension de surface, la viscosité ou encore la composition pour des gouttes multicomposant. Les techniques optiques fondées sur l'utilisation des MDR présentent aussi différents avantages techniques liés à la précision et au fait que sa mesure n'impose pas de direction privilégiée au regard de la collection du signal à la différence de nombreuses autres techniques de mesures. Dans le cadre de ces travaux, les MDRs constituent un phénomène optique parasite nuisant à la précision de mesure, qu'il convient d'éliminer.

Pour expliquer de manière simple le phénomène de MDR, considérons un faisceau laser pénétrant à l'intérieur d'une particule sphérique dont l'indice de réfraction est supérieur à celui du milieu extérieur. Lorsque ce faisceau atteint le côté interne de l'interface liquide-gaz avec un angle supérieur à l'angle limite de réfraction, il se trouve piégé au niveau de la surface de la particule en subissant des réflexions multiples sur l'interface. Lorsqu'il y a rapport géométrique entre le trajet optique correspondant aux différentes réflexions à la surface et la longueur d'onde, le faisceau lumineux retourne en phase à sa position initiale après avoir effectué le tour de la goutte (Figure 3.30) ; il se forme alors une résonance.



*Figure 3.30 : Schéma d'une résonance morphologiquement dépendante dans une goutte sphérique.*

Les MDR peuvent effectuer près de 50 000 rotations à l'intérieur de la goutte suivant les cas et parcourir ainsi jusqu'à plusieurs mètres à l'intérieur de la goutte (Ducastel [81]).

Il existe deux types de résonances, celle propre au faisceau laser et dans le cas où la goutte estensemencée à l'aide d'une molécule fluorescente absorbant la radiation laser, celles aux longueurs d'onde de la fluorescence engendrée par l'excitation laser. Au regard des résonances morphologiquement dépendantes liées à la fluorescence, cette dernière s'étalant

sur une large bande spectrale, les possibilités de résonances sont multiples et peuvent de ce fait conduire à des MDRs présentes sur une large bande spectrale. Le faisceau laser ne représentant qu'une raie, les possibilités de résonances sont dans ce cas plus limitées. Ainsi, dans le cas de longueurs d'onde de fluorescence, les possibilités sont fortement augmentées et de plus l'accumulation d'énergie est de nature à favoriser le phénomène d'émission stimulée ; l'amplification du signal pourra donc se produire lorsque le gain obtenu par le phénomène d'émission stimulée sera supérieur aux pertes en générale liées à la réabsorption de la longueur d'onde amplifiée. Les longueurs d'onde résonnantes peu absorbées conduiront à un effet laser, la goutte se comportant alors comme un micro-laser.

Onofri et al. [82] ainsi que Ducastel [81] ont étudié le cas de gouttes sphériques présentant des propriétés inhomogènes en terme d'indice de réfraction ; dans ce cas, la forme du trajet parcouru par les MDRs à l'intérieur d'une goutte est en général beaucoup plus complexe. En effet, pour des gouttes en échauffement, les gradients de température à l'intérieur de la goutte génèrent des gradients d'indices déviant les rayons lumineux. La présence d'évaporation génère un refroidissement de la surface, qui entraîne aussi des conditions inhomogènes, rendant complexe la forme du trajet que parcourent les MDRs à l'intérieur de la goutte. De plus le champ de température présente rarement une symétrie sphérique à l'intérieur de la goutte. Enfin une ondulation de la surface ou bien un écart à la sphéricité de la goutte sont aussi des facteurs influençant les MDRs, bien que la forme sphérique soit la plus propice à leur apparition.

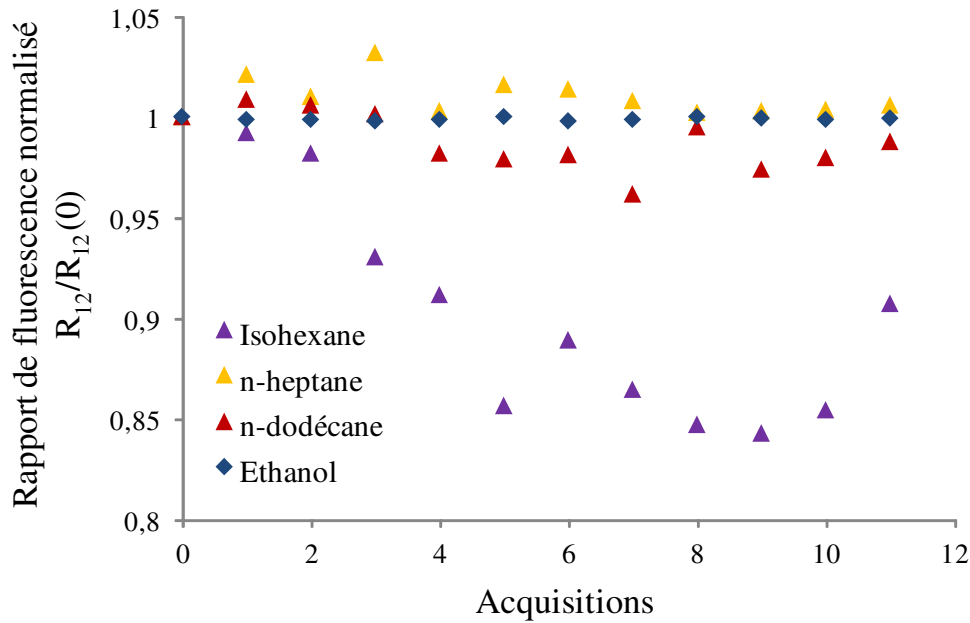
Les MDRs se développent donc dans des conditions précises mais difficiles à maîtriser, ce phénomène dépendant de nombreux facteurs : indice de réfraction, angle d'attaque, caractéristiques spectrales de la fluorescence, forme et taille de la goutte.

## **2.7.2. Conséquences du phénomène sur les mesures fondées sur la 2cLIF**

### **2.7.2.1. Mise en évidence du phénomène**

Dans le cas d'un jet de gouttes fluorescentes monodisperse, les gouttes présentent toutes en un point donné la même température et doivent donc présenter un rapport de fluorescence constant. Or, une instabilité importante du rapport de fluorescence apparaissait presque systématiquement dans le cas des alcanesensemencé en pyrrométhène 597-8C9 rendant la mesure de température très aléatoire.

La Figure 3.31 représente le rapport de fluorescence  $R_{12}$  calculé sur une acquisition continue d'un échantillon de 20000 gouttes et répétée périodiquement au cours du temps. Les signaux issus des gouttes d'isohexane présentent une variation du rapport qui peut aller jusqu'à 15% alors que les autres alcanes (n-dodécane, n-décane et n-heptane) avec une chaîne carbonée plus longue conduisent, à des variations plus faibles pouvant atteindre jusqu'à 5%. Pour l'éthanol, une variation maximale de seulement 0,25% est observée pour cette série de mesure, ce qui n'est pas directement imputable aux MDRs, mais représente l'ordre de grandeur des incertitudes de mesure.



**Figure 3.31:** Evolution du rapport de fluorescence, normalisé par la valeur initiale du rapport, acquis au cours du temps sur 11 échantillons de 200000 gouttes dans des conditions isothermes pour l'isohexane, le n-heptane, le n-dodécane et l'éthanol avec pour chaque une concentration en pyrrométhène 597-8C9 de  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$

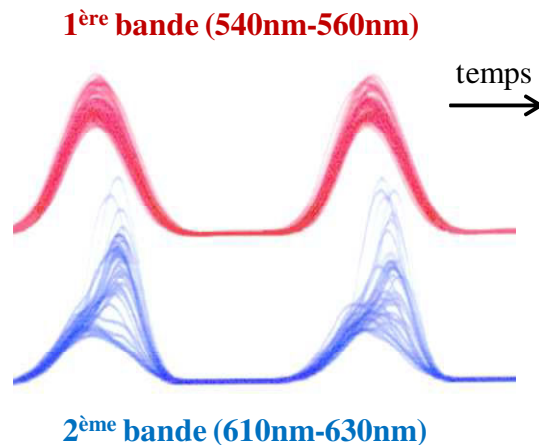
Parmi les combustibles utilisés, les alcanes semblent propices à la formation de MDRs qui n'ont pas été observées sur l'éthanol. Les conditions d'injection étant strictement identiques, la nature du combustible semble jouer un rôle prépondérant.

Les propriétés physiques étant relativement proches (Tableau 3.5), il est difficile d'expliquer la différence de comportement au regard de la formation des résonances entre les alcanes et l'éthanol ; de plus de la prépondérance des MDRs au sein de l'isohexane par rapport aux autres alcanes reste difficile à interpréter. Cependant, il peut être noté que l'isohexane présente une tension superficielle singulièrement plus faible, alors que le dodécane a un indice de réfraction élevé.

Combustible	Tension superficielle ( $\text{mN.m}^{-1}$ )	Indice de réfraction
Ethanol	22,27	1,3594
n-hexadécane	27,47	1,434
n-dodécane	25,35	1,4195
n-décane	23,83	1,4097
n-heptane	20,14	1,3851
isohexane	17,38	1,371

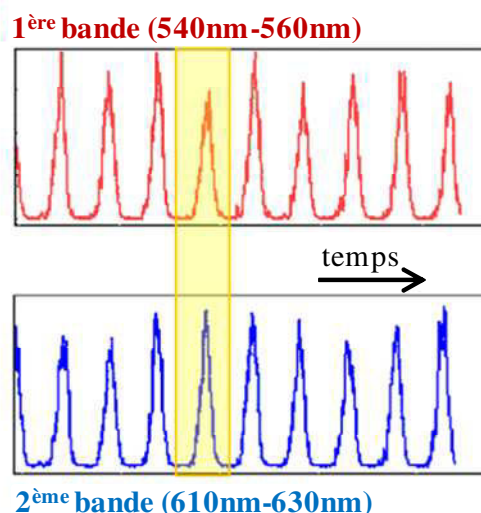
**Tableau 3.5:** Propriétés physiques à température ambiante  $T_{amb}=25^{\circ}\text{C}$  des combustibles utilisé : tension superficielle et indice de réfraction.

Les signaux de fluorescence obtenus sur chaque bande spectrale, correspondant à cinquante gouttes, ont été superposés sur la Figure 3.32, ce qui montre clairement une irrégularité de la forme de l'intensité de fluorescence liée au passage des gouttes dans le faisceau laser, notamment sur la deuxième bande spectrale ([610 nm - 630 nm]). En effet on observe des fluctuations d'amplitude ainsi qu'une déformation du signal.



**Figure 3.32:** Superposition du signal de fluorescence correspondant à 50 gouttes consécutives ( $d=100\ \mu\text{m}$ , *n*-décane ensemencé en pyrrométhène 597-C8 à la concentration de  $10^{-5}\text{ mol/L}$ )

Pour des mesures peu influencées par les MDRs, l'évolution temporelle de l'intensité de fluorescence émise par les gouttes doit être similaire sur les deux bandes spectrales, après filtrage. Or, sur la Figure 3.33, une différence significative de la forme des signaux obtenus pour une même goutte, mais sur deux bandes spectrales différentes peut être observée.



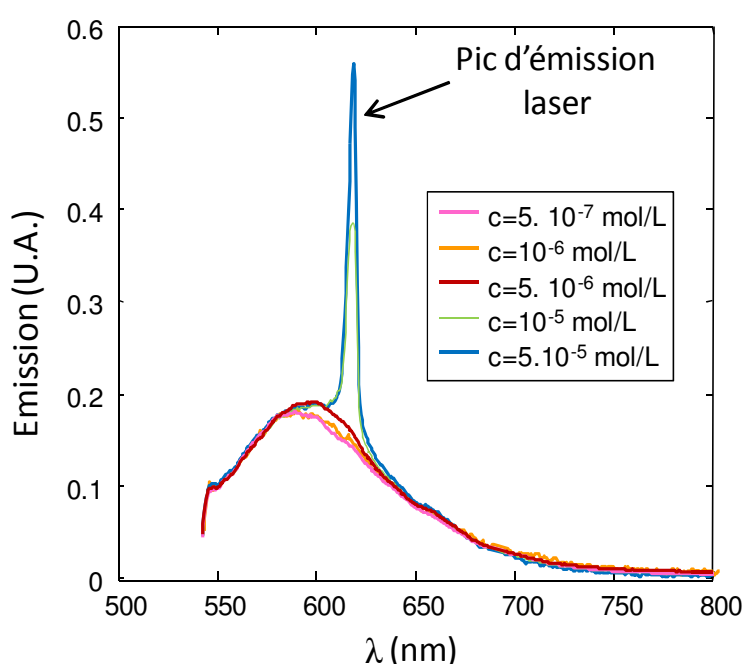
**Figure 3.33:** Signal temporel enregistré par le système de détection 2cLIF (pyrrométhène 597-C8 dilué dans des gouttes de *n*-décane à une concentration  $C=5.10^{-6}\text{ mol/L}$ ), sur un train de gouttes monodisperse.



### 2.7.2.2. Caractérisation du phénomène

Afin de caractériser l'influence des MDRs sur le spectre de fluorescence des gouttes et donc sur les mesures de température, une étude a été effectuée en modifiant la concentration en traceur fluorescent. L'amplitude de ces résonances étant fortement dépendante de l'intensité du signal initial, l'intensité du faisceau laser excitateur a été fixée pour différentes concentrations en pyrrométhène.

La Figure 3.34 illustre les spectres d'émission de gouttes de n-dodécane de 100  $\mu\text{m}$  pour des concentrations en pyrrométhène comprises entre  $10^{-7}$  et  $5.10^{-5}$  mol.L $^{-1}$ . Afin d'obtenir ces spectres, un temps d'intégration de plusieurs secondes est nécessaire pour accumuler suffisamment de lumière provenant des gouttes. En conséquence, chaque spectre est constitué par la contribution cumulée de plusieurs dizaines de milliers de gouttes.



**Figure 3.34 :** Spectres d'émission (fluorescence induite à 532 nm) de gouttes de 100  $\mu\text{m}$  de n-dodécane pour plusieurs concentrations en pyrrométhène 597-8C9.

Comme il est clairement observé sur la Figure 3.34, pour des concentrations en pyrrométhène supérieures ou égale à  $10^{-5}$  mol.L $^{-1}$ , un pic d'émission laser provenant des gouttes est observable aux alentours de 620 nm. Ce pic présente une largeur relativement importante de l'ordre de 5 nm FWHM, correspondant à un ensemble de MDRs, liées à l'ensemble des gouttes acquises pour construire le spectre. La résolution du spectromètre utilisé, de l'ordre du nm, ne permet pas de les différencier, les MDRs étant trop proches spectralement, notamment pour des gouttes d'une taille de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . En effet, une augmentation du diamètre de la goutte entraîne une diminution de l'intervalle spectral entre les pics de MDRs consécutives. Pour des concentrations plus faibles en pyrrométhène 597-C8, un tel pic n'apparaît pas, toutefois l'émission stimulée peut rester significative et perturber de manière notable le signal (Figure 3.32).

Du fait du phénomène de réabsorption de la fluorescence, les MDRs sont absentes de la région correspondant aux plus faibles longueurs d'onde du spectre de fluorescence. Au-delà de la zone où les spectres d'absorption et d'émission se recouvrent significativement, la réabsorption devient négligeable ; par conséquent, une augmentation de la concentration en pyrrométhène favorise l'émission stimulée et donc l'amplification des MDRs au sein de la microcavité et ainsi l'apparition d'un effet laser (Figure 3.34).

Il a été observé que le spectre pouvait changer de forme d'une acquisition à l'autre (la conséquence sur le signal est observable Figure 3.32), ce qui est surtout observé dans le cas de concentrations en pyrrométhène supérieures ou égale à  $10^{-5}$  mol.L<sup>-1</sup> où l'amplitude du pic aux alentours de 620 nm pouvait fortement varier. Les variations constatées en fonction du temps pour un très grand nombre de gouttes sont difficiles à interpréter. Les chemins optiques à l'intérieur de la goutte peuvent être fortement influencés par un changement même faible de l'indice de réfraction ou encore par des déformations locales de la surface de la goutte. De faibles fluctuations de régime de la céramique piézo-électrique mettant l'injecteur en vibration peuvent expliquer ces variations en générant par exemple de légères déformations ou ondulations de la surface de la goutte. Ainsi la forme de gouttes ne sera pas identique d'une goutte à une autre ce qui influence la position spectrale des résonances.

### **2.7.3. Utilisation d'un absorbeur non fluorescent**

Afin de supprimer l'effet parasite causé par les MDRs, un colorant jouant le rôle d'absorbeur est ajouté à la solution, notamment afin d'accroître les pertes sur le chemin optique des MDRs. Ce colorant doit présenter deux propriétés spectrales essentielles puisqu'il doit absorber les longueurs d'onde correspondant aux MDRs. De plus, il ne doit pas être fluorescent lorsqu'il interagit avec la longueur d'onde laser (532 nm). Ce dilemme est résolu grâce aux différences de chemins optiques liés aux deux phénomènes. En effet, les chemins optiques associés à la fluorescence détectée pour la mesure sont « directs » et de l'ordre de grandeur de la taille de la goutte, alors que les MDRs se développent en parcourant une distance importante au voisinage de l'interface liquide-gaz avant de parvenir au détecteur. En conséquence, étant donnée la longueur des chemins optiques impliqués dans le développement des MDRs, une faible concentration en absorbeur dans la solution devrait être suffisante pour éliminer les résonances.

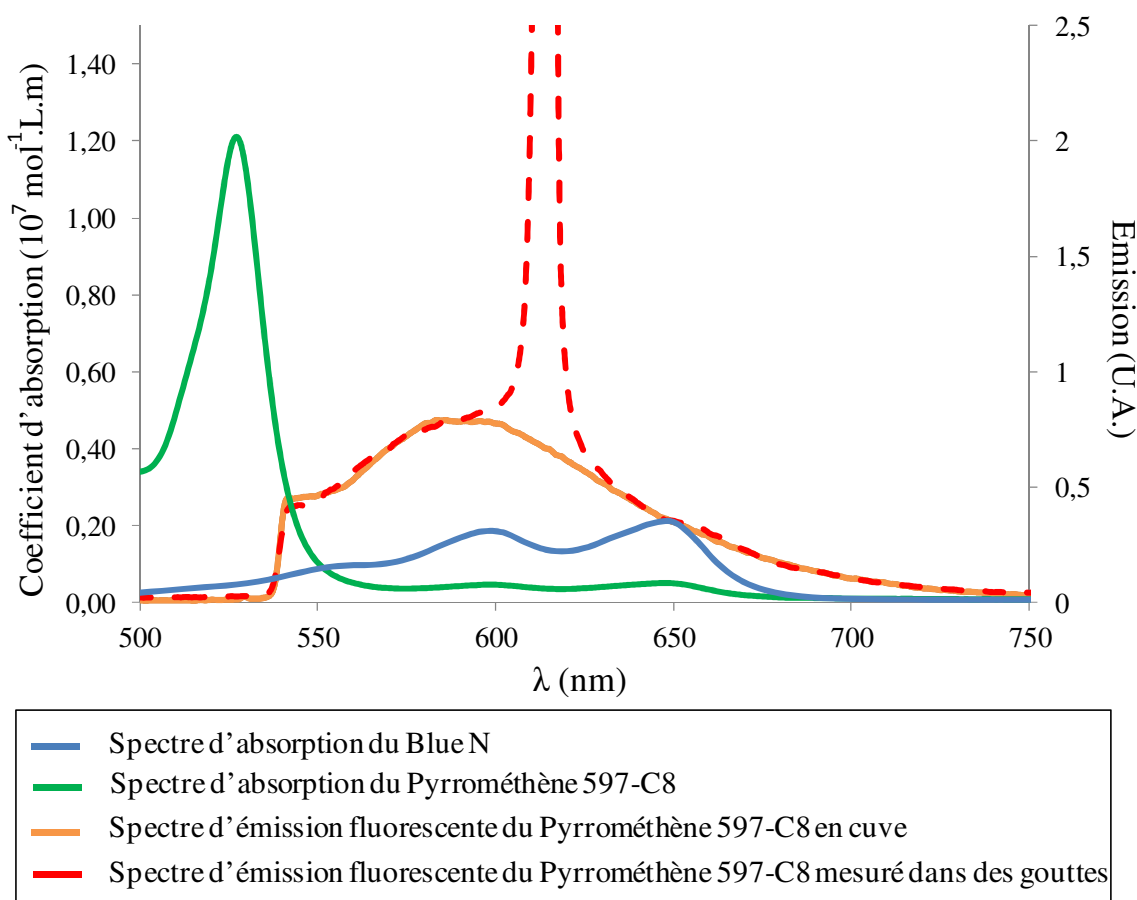
Ainsi le colorant sélectionné, le Oil Blue N, fourni par la société Sigma-Aldrich, destiné à la coloration des combustibles, a fait l'objet d'une caractérisation spectrale et son effet sur les MDRs a été testé dans des conditions isothermes sur des gouttes de n-dodécane, faiblement volatile. Dans un premier temps, il a été vérifié que le Oil Blue N ne présentait aucune fluorescence après éclairage par un faisceau laser à 532 nm.

#### **2.7.3.1. Caractérisation du Oil Blue N**

La deuxième bande spectrale [610 nm - 630 nm] étant affectée par la présence de MDRs, le colorant doit absorber les longueurs d'onde correspondant au jaune-orange dans le visible. En

conséquence, un colorant bleu a été recherché et caractérisé. Ce type de molécule est couramment utilisé, notamment par l'industrie du textile qui propose une gamme très vaste de colorants différents. Le colorant sélectionné est le Oil Blue N, qui est miscible dans les alcanes et les alcools et présente une absorption correcte dans la bande [560 nm-660 nm].

Sur la Figure 3.35, il apparaît clairement que l'absorption du pyrrométhène 597-C8 est très faible dans la zone où sont observées les MDRs, ce qui est conforme aux prévisions. Le Oil Blue N, dont le spectre d'absorption a été caractérisé, semble alors parfaitement adapté à la suppression des MDRs, en absorbant les longueurs d'onde comprises entre 550 et 660 nm, à condition d'en adapter la concentration.

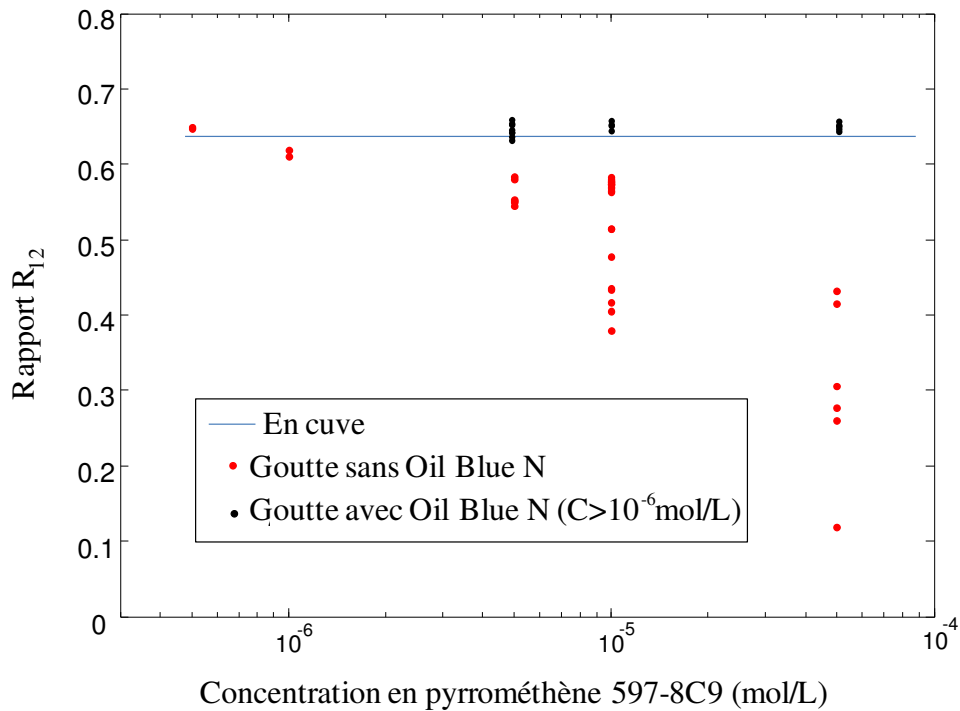


**Figure 3.35:** Spectres d'émission du pyrrométhène 597-C8 en cuve et sur des gouttes. Superposition au spectre d'absorption du pyrrométhène 597-C8 et du colorant Oil Blue N. (solvant : *n*-dodécane).

### 2.7.3.2. Effet sur le rapport de fluorescence

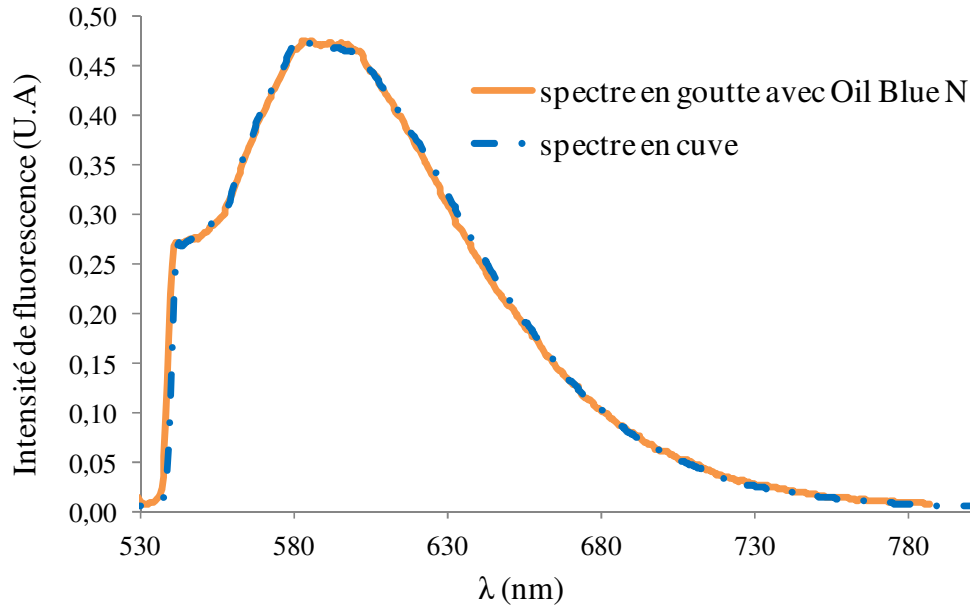
Le chemin optique relatif aux MDRs étant inconnu, il est impossible de déterminer directement la concentration en Oil Blue N nécessaire à la suppression complète des pics d'intensité. En conséquence, différentes concentrations en colorant Oil Blue N ont été testées sur des gouttes de *n*-dodécane de 100 μmensemencées à 5.10<sup>-6</sup> mol.L<sup>-1</sup> en pyrrométhène, correspondant à la concentration utilisée pour la détermination de la température.

Sur la Figure 3.36, présentant l'évolution du rapport de fluorescence en fonction de la concentration en pyrrométhène 597-C8 avec ou sans ajout de Oil Blue N, l'apparition des MDRs entraînent une dispersion des valeurs du rapport de fluorescence (points rouges), en l'absence de colorant Oil Blue N. La dispersion du rapport  $R_{12}$  est dissymétrique, du fait de l'augmentation aléatoire de l'intensité sur la seconde bande spectrale, bande où les MDRs sont observées. De plus, la valeur du rapport de fluorescence décroît avec une augmentation de la concentration en pyrrométhène, notamment pour des concentrations supérieures ou égales à  $10^{-5}$  mol.L<sup>-1</sup> où des pics d'émission laser apparaissent, augmentant ainsi significativement la valeur de l'intensité mesurée sur cette bande spectrale.



**Figure 3.36:** Influence de l'ajout du Oil Blue N sur le rapport de fluorescence.

Pour une concentration en pyrrométhène de  $5 \cdot 10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup>, l'addition de colorant Oil Blue N concentré à  $5 \cdot 10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup> (points bleus) est suffisante pour supprimer les MDRs et retrouver un rapport de fluorescence identique à celui observé en cuve. Pour cette concentration en Oil Blue N, la Figure 3.37 superpose le spectre des gouttes à celui en cuve et confirme la suppression des MRDs et montrer l'influence négligeable du Oil blue N sur le rapport de fluorescence pour un chemin optique direct.



**Figure 3.37 :** Superposition des spectres d'émission du pyrrométhène 597-8C9 dilué à  $5.10^{-6}$  mol.l<sup>-1</sup> dans du dodécane en cuve et pour des gouttes ensemençées avec du Oil Blue N à  $5.10^{-6}$  mol.l<sup>-1</sup>.

Afin de vérifier qu'il n'y a pas d'effet de la réabsorption du Oil Blue N pour le chemin optique direct, un calcul est effectué en utilisant la loi de Beer-Lambert. Pour un chemin optique  $e$  de 100  $\mu\text{m}$  de l'ordre du diamètre de la goutte, une concentration en Blue N de  $C=5.10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup> et connaissant le coefficient d'absorption  $\epsilon_{ob}$  du Oil Blue N dilué dans du n-dodécane, le rapport entre l'intensité de fluorescence collectée  $I_{fei}$  et émise  $I_{fe0}$  pour une bande spectrale  $i$  est :

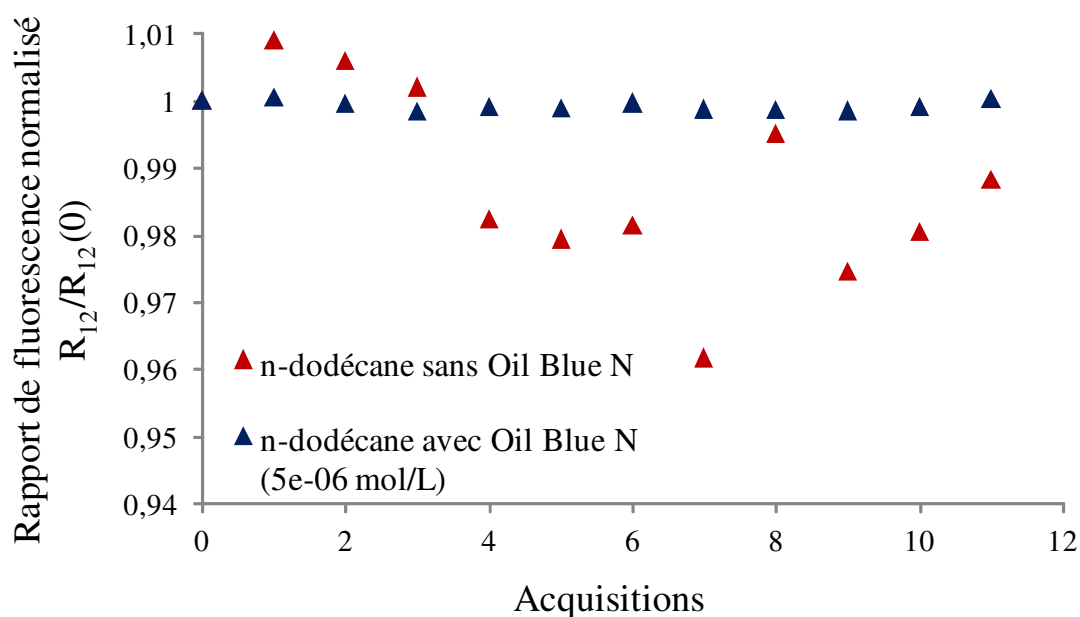
$$\frac{I_{fei}}{I_{f0i}} = \exp(-eC\epsilon_{obi}) \quad (3.34)$$

soit pour la première bande spectrale [540 nm ; 560 nm],  $I_{fe1}/I_{f01}=0,9993$  et pour la seconde bande spectrale [610 nm ; 630 nm],  $I_{fe2}/I_{f02}=0,9988$ .

Ainsi, la réabsorption sur les deux bandes spectrales liées à la présence du Oil Blue N dans la goutte est légèrement différente mais très faible (inférieure à 0,2% dans les deux bandes). En conséquence, l'influence de la réabsorption du Oil Blue N reste négligeable dans le calcul du rapport de fluorescence pour des trajets optiques de l'ordre de la taille de la goutte.

Par la suite et au regard des résultats obtenus, une concentration en Blue N de  $5.10^{-6}$  mol.L<sup>-1</sup> est fixée. En particulier, l'effet de l'utilisation du Oil Blue N, dans le cas de gouttes de n-dodécane en condition isotherme a été investigué (Figure 3.38). Cette figure, tout comme la Figure 3.31, présente différentes acquisitions effectuées chacune sur un échantillon de 20000 gouttes. Il apparaît clairement que l'utilisation du Oil Blue N stabilise le rapport de fluorescence, ce qui doit permettre d'obtenir des mesures de température de goutte précises. Les valeurs de la série de mesure effectuée sans Oil Blue N présentent un écart-type de  $\sigma=1,5.10^{-2}$  (pour une valeur moyenne de  $R_{12,moyen}=1,0063$ ) contre  $\sigma=8.10^{-4}$  (pour

$R_{12, \text{moyen}}=0,9293$ ) pour la série avec Oil Blue N. Il a ensuite été vérifié, notamment par la réalisation de mesures de spectres, que cette concentration en Oil Blue N était suffisante pour éliminer les MDRs dans le cas des autres alcanes utilisés.



**Figure 3.38 :** Influence du Oil Blue Nensemencé à  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  sur l'évolution du rapport de fluorescence normalisé par la première valeur pour des gouttes de n-dodécane injectées en condition isotherme etensemencées à  $5.10^{-6} \text{ mol.L}^{-1}$  en pyrrométhène ( $D=100 \mu\text{m}$ ,  $f=20 \text{ kHz}$ ).

Des mesures de température précises, sur des trains de gouttes monodisperse sont alors possibles grâce à l'utilisation du Oil Blue N utilisé en concentrations adéquates, ce qui constitue une amélioration très significative de la technique de fluorescence induite par laser à deux couleurs.

## **Chapitre 4**

Etude de l'échauffement et de l'évaporation  
de gouttes monocomposant

## Chapitre 4. Etude de l'échauffement et de l'évaporation de gouttes monocomposant

L'évaporation et l'échauffement de gouttes monocomposant ont été étudiés sur la base d'expériences réalisées en prenant soin de faire varier de nombreux paramètres d'importances afin de réaliser une modélisation fine des phénomènes : le paramètre de distance  $C$  (distance entre les gouttes divisée par leur taille), le diamètre  $D$  et la vitesse  $V$  des gouttes, la température de l'écoulement gazeux  $T_{amb}$ , la volatilité du liquide et la température d'injection des gouttes  $T_{inj}$ . Les cas investigués sont répertoriés dans le tableau 4.1. Ils concernent plusieurs espèces chimiques : l'éthanol et différents alcanes (n-dodécane, isohexane, n-décane et n-heptane).

Dans un premier temps, cette base de données est utilisée pour préciser l'influence de plusieurs paramètres aérothermiques parmi les principaux sur l'échauffement et l'évaporation des gouttes. Cette analyse, purement expérimentale, cherche avant tout à établir la sensibilité aux différents paramètres à partir de la comparaison de plusieurs cas expérimentaux. Cette tâche peut s'avérer parfois complexe, car il est difficile en pratique de modifier un seul paramètre à la fois. Par exemple, la fréquence d'injection des gouttes agit à la fois sur la taille et sur l'écartement des gouttes. La pression d'injection change le débit de liquide injecté et fait donc varier en même temps la taille et la vitesse des gouttes. Pour cette raison, l'analyse expérimentale sera complétée et approfondie dans un deuxième temps par la mise en place d'une méthode d'inversion permettant d'estimer les nombres sans dimension de Nusselt et de Sherwood, caractéristiques des transferts de chaleur et de masse. Les valeurs ainsi obtenues pour les nombre de Nusselt et de Sherwood expérimentaux pourront être comparées aux modèles existants voire servir à préciser certains effets.

a) Ethanol:

Dénomination	$D_o$ ( $\mu\text{m}$ )	$V_o$ ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	$C_o$	$T_o$ ( $^{\circ}\text{C}$ )
Ethanol 1	118,4	9,5	7,0	27,2
Ethanol 2	139,1	12,5	9,2	51,3
Ethanol 3	126,8	14,0	7,5	49,9
Ethanol 4	109,5	13,0	5,9	50,2
Ethanol 5	111,6	11,8	5,4	31,5
Ethanol 6	97,7	12,9	4,7	49,1
Ethanol 7	136,1	12,3	9,3	28,2
Ethanol 8	98,7	13,8	4,9	48,4
Ethanol 9	139,1	12,5	9,6	51,3
Ethanol 10	126,6	11,3	7,7	31,4
Ethanol 11	92,9	8,9	4,8	20,2



b) n-dodécane:

n-dodécane 1	97,4	11,8	4,2	25,7
n-dodécane 2	155,7	13,4	4,4	20,1
n-dodécane 3	155,1	8,0	4,2	20,1
n-dodécane 4	134,1	13,1	3,3	18,6
n-dodécane 5	133,4	7,8	3,0	20,2
n-dodécane 6	129,0	11,4	7,8	24,0
n-dodécane 7	112,3	13,1	5,9	37,6
n-dodécane 8	109,0	11,6	5,5	25,1
n-dodécane 9	99,1	13,0	4,5	68,3
n-dodécane 10	92,1	13,3	4,8	170,6
n-dodécane 11	106,5	14,4	6,6	169,9
n-dodécane 12	110,4	15,3	6,8	169,0
n-dodécane 13	97,0	15,2	5,0	170,7
n-dodécane 14	95,0	14,3	5,2	169,4
n-dodécane 15	134,7	15,3	10,3	171,5
n-dodécane 16	101,2	8,8	4,5	21,1

c) Isohexane:

Isohexane 1	107,8	15,2	5,47	27,9
Isohexane 2	95,9	13,2	4,5	30,6
Isohexane 3	110,0	8,1	6,5	32,6
Isohexane 4	115,0	14,7	6,4	26,8
Isohexane 5	108,7	13,0	6,1	28,4
Isohexane 6	102,4	16,2	5,8	29,2
Isohexane 7	101,9	15,1	4,9	27,7
Isohexane 8	97,8	13,4	4,7	31,3
Isohexane 9	102,1	8,9	4,5	33,7
Isohexane 10	128,7	8,2	9,1	31,6
Isohexane 11	109,7	13,1	6,1	18,5

d) Autres :

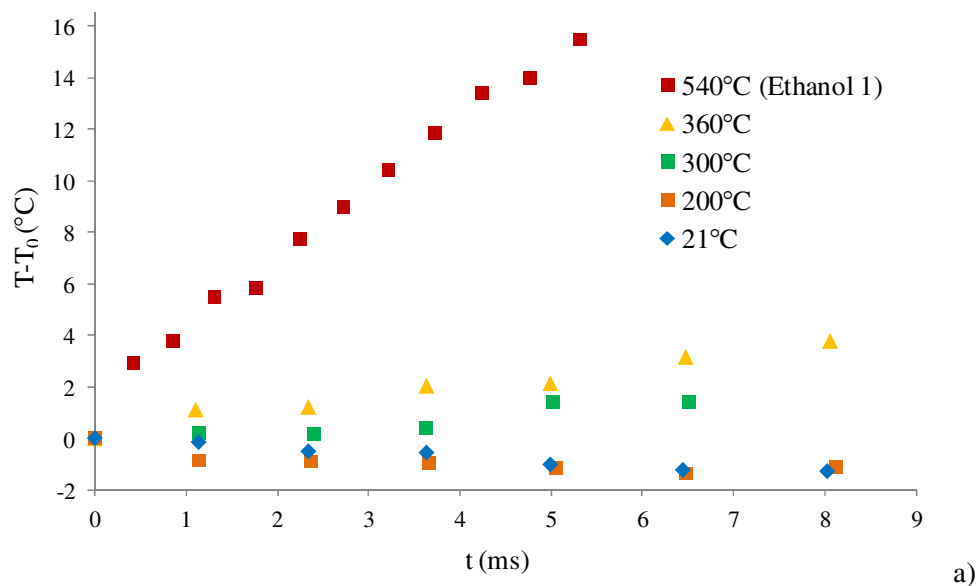
n-heptane 1	107,8	15,2	5,5	27,9
n-décane 1	109,7	12,4	5,7	34,5

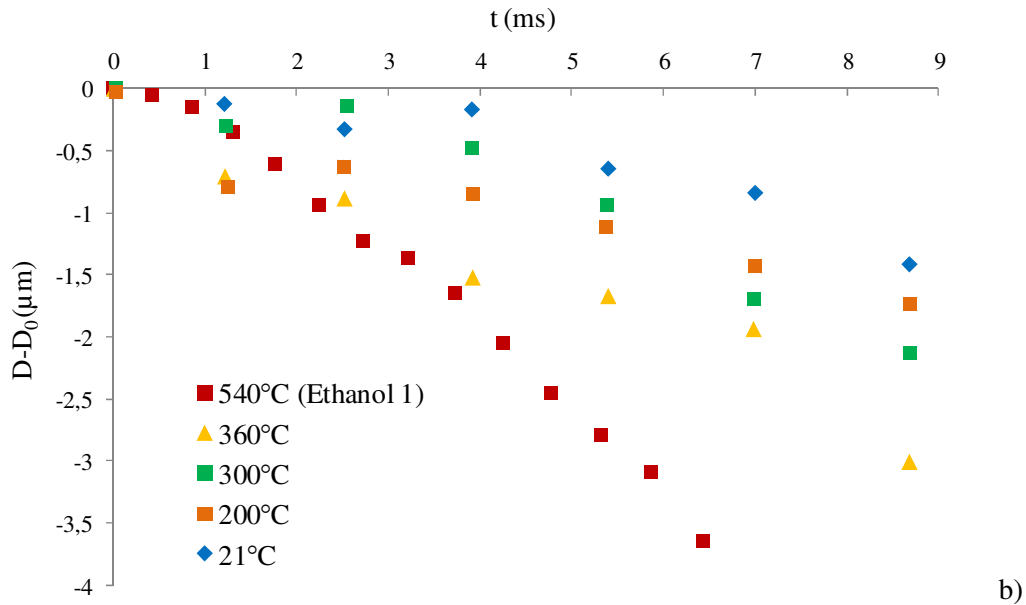
*Tableau 4.1: Conditions au premier point de mesure (t=0ms) pour chaque combustible étudié.*

# 1. Analyse expérimentale des paramètres intervenant dans l'échauffement et l'évaporation des gouttes en régime d'interaction

## 1.1. Influence de la température ambiante

Les mesures réalisées dans cette étude ont été obtenues à la température ambiante de 540°C. Toutefois, certaines configurations expérimentales peuvent être comparées aux résultats de Deprédurand [17] qui a travaillé avec une enceinte chauffée à plus basse température (comprise entre 20°C et 360°C). Ainsi, le jet d'éthanol (Ethanol 1 du Tableau 4.1) se rapproche par ses conditions d'injection (taille, vitesse, écartement des gouttes), des jets représentées sur la figure 3.4.a de la thèse de Valérie Deprédurand [17]. La superposition de ces données illustre parfaitement le rôle déterminant de la température ambiante sur la dynamique de l'échauffement et de l'évaporation des gouttes (Figure 4.1). Un net accroissement du taux d'échauffement des gouttes ( $dT/dt$ ) est observé quand la température ambiante est augmentée, notamment quand  $T_{amb}$  passe de 360°C à 540°C. Il est établi que le flux d'échange de chaleur par convection  $\Phi_C$  est proportionnel à  $\Delta T = T_{amb} - T_S$  où  $T_S$  désigne la température de surface des gouttes. Cependant, le taux d'échauffement des gouttes n'augmente pas proportionnellement à  $\Delta T$  dans les expériences. Ceci s'explique par l'influence de l'évaporation qui absorbe tout ou partie de la chaleur échangée entre la goutte et la phase gazeuse. Ainsi, pour une température ambiante de 200°C, les gouttes injectées à 25°C se refroidissent de quelques degrés, ce qui démontre que, pour ces gouttes, le flux de chaleur prélevé par évaporation  $\Phi_{vap}$  est supérieur au flux d'échange de chaleur  $\Phi_C$ , le flux de chaleur entrant dans la goutte ( $Q_l = \Phi_C - \Phi_{vap}$ ) étant alors négatif.

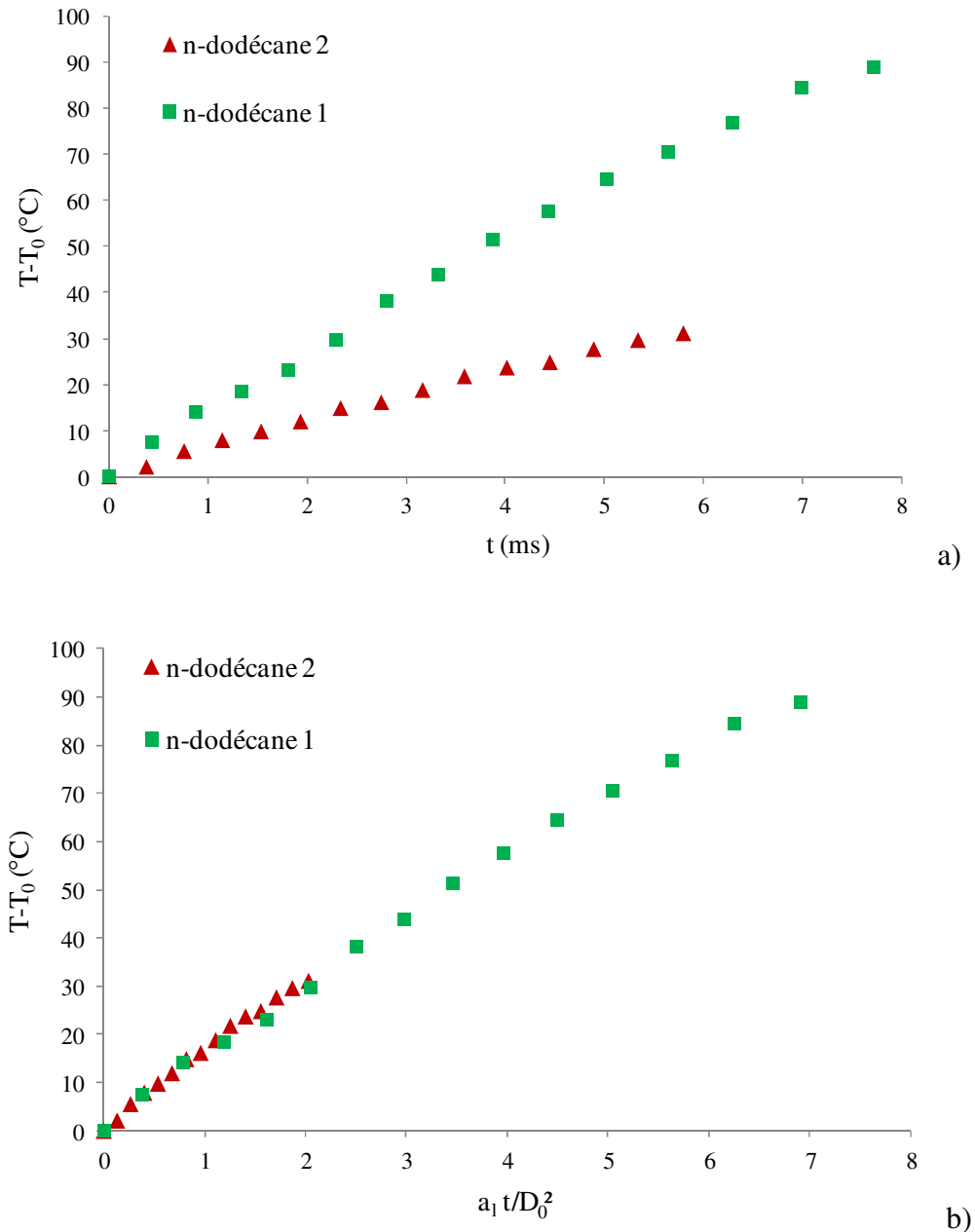




**Figure 4.1** : Gouttes d'éthanol en échauffement et en évaporation dans de l'air à différentes températures ambiantes **a** : Evolution temporelle de la température, **b** : Variation temporelle du diamètre.

## 1.2. Influence de la taille des gouttes

La taille des gouttes intervient de plusieurs façons dans l'échauffement et l'évaporation d'une goutte. Elle entre, avec la vitesse des gouttes, dans l'expression du nombre de Reynolds qui lui-même intervient dans la prise en compte de la convection forcée et des frottements visqueux à l'interface liquide-gaz. Du point de vue de la thermique, la capacité calorifique de la goutte (J/K) est étroitement liée à son volume et donc à sa taille. Par ailleurs, le temps caractéristique de la diffusion thermique dans la goutte  $t_{diff}$  augmente avec le carré du diamètre selon l'expression  $t_{diff} = D^2/a_l$ , où  $a_l$  est la diffusivité thermique du liquide. La Figure 4.2-a présente l'évolution temporelle de la température dans le cas de deux jets de goutte de n-dodécane injectés avec des tailles de gouttes très différentes, respectivement 97  $\mu\text{m}$  et 155  $\mu\text{m}$  de diamètre, mais pratiquement avec les mêmes paramètres de distance ( $C \approx 4$ ) et vitesse ( $V \approx 12 \text{ m/s}$ ). Comme attendu, l'échauffement est plus lent pour les gouttes de plus grande taille. Pour ces deux jets de gouttes, le nombre de Péclet thermique  $Pe_T$ , estimé à partir de l'équation (1.99), est modéré. On trouve ainsi  $Pe_T \approx 30$  pour le jet « n-dodécane 1 » ( $D = 97 \mu\text{m}$ ) et  $Pe_T \approx 40$  pour le jet « n-dodécane 2 » ( $D = 155 \mu\text{m}$ ). Par conséquent, le paramètre  $\chi_T$  intervenant dans le modèle de conductivité effective (équation (1.102)) est proche de 2 dans les deux cas. Ainsi, l'utilisation du temps adimensionnel  $t^* = t/t_{diff}$  (Figure 4.2-b) permet d'obtenir une excellente superposition des deux profils.



**Figure 4.2 :** a- Echauffement de deux jets de gouttes de n-dodécane avec des gouttes de tailles différentes (n-dodécane 1 :  $D_0=97,4\mu\text{m}$ , n-dodécane 2:  $D_0=155,7\mu\text{m}$ ). b- Utilisation d'un temps adimensionnel faisant intervenir le temps diffusif effectif.

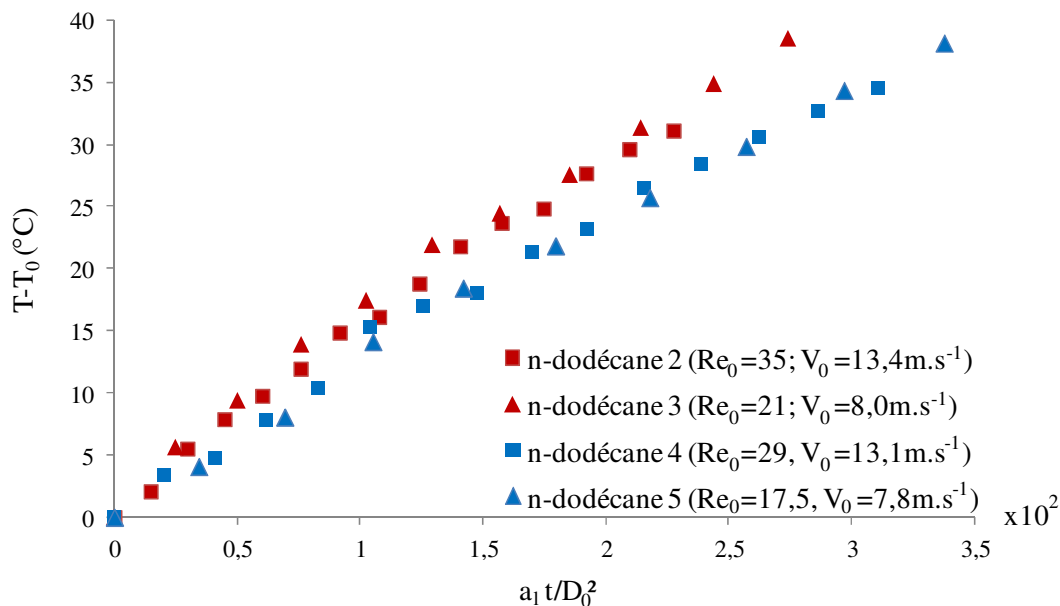
### 1.3. Influence de la vitesse des gouttes

L'influence de la vitesse a pu être précisée à partir de certains cas expérimentaux correspondant à des gouttes de n-dodécane en échauffement. Deux vitesses d'injection ont été testées l'une proche de 8 m/s et l'autre voisine de 13 m/s alors que l'écartement entre les gouttes et la taille des gouttes ont été à peu près conservés. Les mesures représentées sur la Figure 4.3 montrent que le taux d'échauffement n'est pas ou peu influencé par la vitesse des

gouttes. Ce résultat est surprenant dans la mesure où la convection forcée contribue en principe à intensifier les échanges de chaleur et donc l'échauffement des gouttes. Le flux de chaleur  $Q_l$  entrant dans la goutte peut être évalué assez facilement pour ces gouttes en faible évaporation. Sachant que  $\Phi_{vap} \approx 0$ , toute la chaleur échangée par la goutte avec la phase gazeuse contribue à l'échauffement de la phase liquide, soit  $Q_l = \Phi_C$ . Ainsi, puisque  $Q_l = m C p_l dT_m/dt$ , le taux d'échauffement peut être déterminé par :

$$\frac{dT_m}{dt} = \frac{\lambda_g Nu}{\rho_l C p_l D^2} (T_{amb} - T_s) \quad (4.1)$$

où le nombre de Nusselt  $Nu$  est le seul paramètre dépendant de la vitesse des gouttes. L'effet de la vitesse sur le nombre de Nusselt est connu dans le cas d'une goutte isolée en faible évaporation. Les corrélations de Clift (équation (1.53)) et de Frossling (équation (1.51)) permettent de déterminer le nombre de Nusselt  $Nu_{iso}$  de la goutte isolée, connaissant la valeur du nombre de Reynolds. En se basant sur les valeurs du nombre de Reynolds correspondant aux cas expérimentaux de la Figure 4.3, ces corrélations conduisent à une augmentation du nombre de Nusselt  $Nu_{iso}$  d'environ 15% quand la vitesse passe de 8 m/s à 13 m/s. Cette sensibilité à la vitesse, établie pour une goutte isolée, semble disparaître en régime de fortes interactions aérodynamiques ( $C \approx 4$ ).

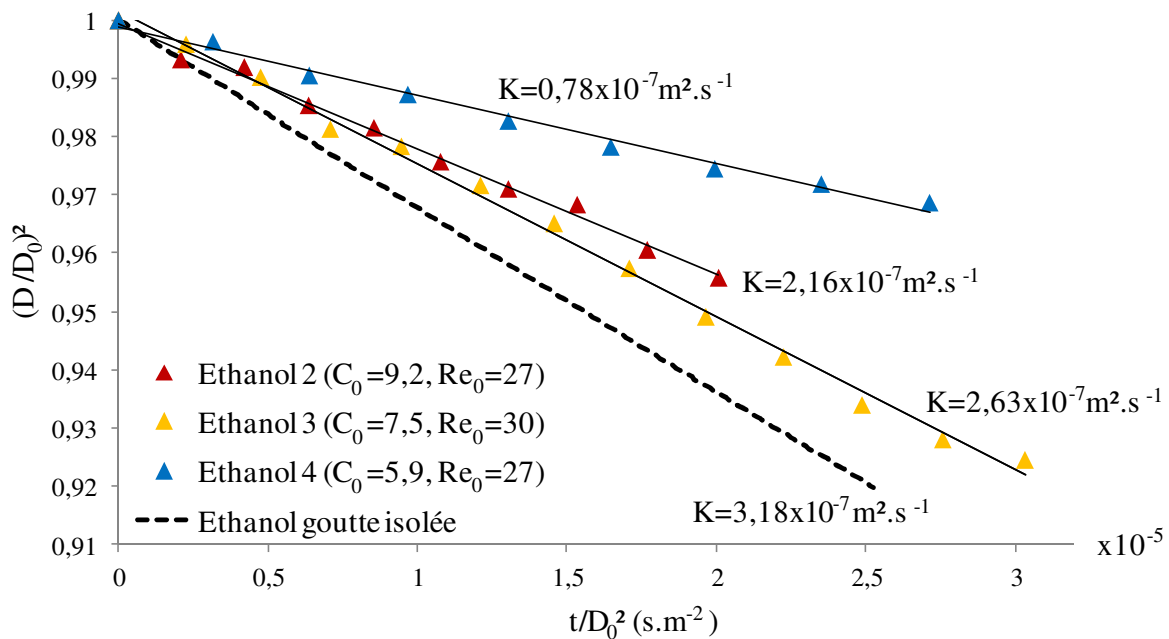


**Figure 4.3 :** Influence de la vitesse des gouttes sur leur échauffement. Cas de gouttes de n-dodécane ( $D_0=155\mu\text{m}$   $C_0=4,3$  en rouge et  $C_0=3,2$ ,  $D_0=134\mu\text{m}$  en bleu).

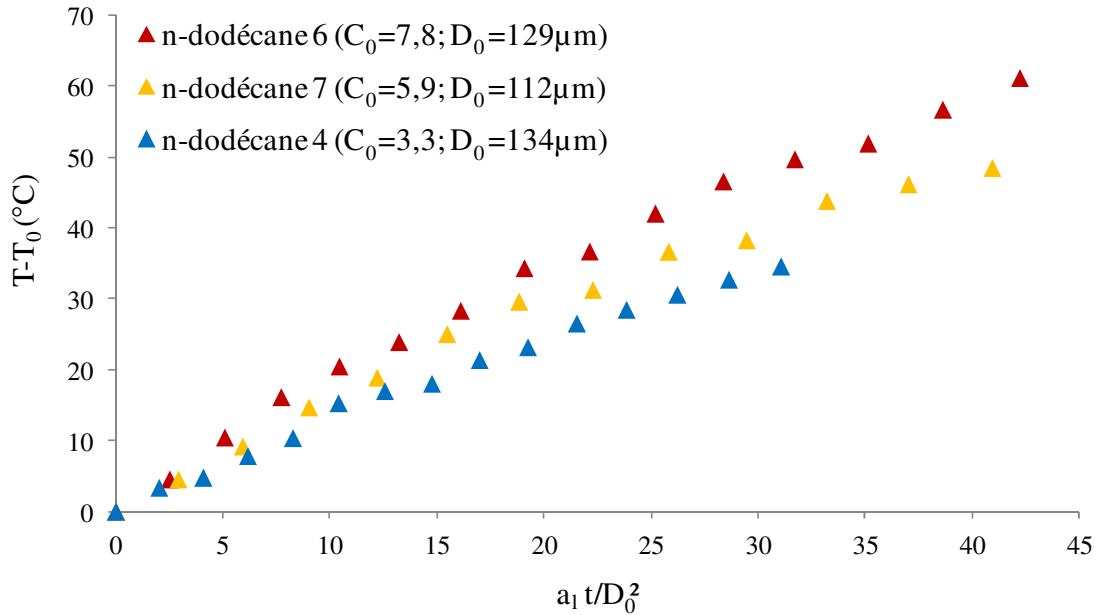
La différence entre les courbes en rouge et en bleu peut être imputée au paramètre de distance qui est différent entre ces deux cas.

## 1.4. Influence du paramètre de distance C

Le paramètre de distance  $C$  correspond à l'écartement entre deux gouttes consécutives divisé par leur taille, c'est-à-dire  $C = L/D$  où  $L$  est la distance entre les gouttes. L'importance du paramètre de distance dans les effets d'interactions aérodynamiques a été mise en évidence dans de nombreuses études (voir Chapitre 1). Parmi les principaux résultats rappelés au Chapitre 1 figurent des corrections des nombres de Nusselt et de Sherwood faisant intervenir le paramètre de distance (équations (1.105)-(1.108)). Les mesures réalisées ici confirment cette influence du paramètre de distance. Ainsi, la Figure 4.4 montre, dans le cas de gouttelettes d'éthanol, une augmentation significative du taux d'évaporation  $K$  défini à partir de la loi du  $D^2$ , à savoir  $D^2 = D_0^2 - Kt$ , où  $D_0$  est le diamètre initial de la goutte. Au vue de la Figure 4.4, la loi du  $D^2$  est effectivement vérifiée pour ces gouttes injectées à une température proche de la température d'équilibre de l'éthanol à 540°C. Même pour un paramètre de distance aussi élevé que 9,2, on remarque que l'écart par rapport au comportement de la goutte isolée demeure important. L'effet du paramètre de distance a également été observé sur l'échauffement des gouttes. Pour des gouttes de n-dodécane en interaction, le taux d'échauffement augmente clairement avec le paramètre de distance comme illustré à la Figure 4.5.



**Figure 4.4 :** Influence du paramètre de distance sur le taux d'évaporation de gouttes d'éthanol injectées au voisinage de leur température d'équilibre à 540°C à  $V_0 \sim 13 \text{ m.s}^{-1}$  (Ethanol 2 :  $D_0 = 139,1 \mu\text{m}$ ; Ethanol 3 :  $D_0 = 126,8 \mu\text{m}$  ; Ethanol 4 :  $D_0 = 109,5 \mu\text{m}$ ).



**Figure 4.5 :** Influence du paramètre de distance sur le taux d'échauffement de gouttes de n-dodécane ( $T_0 \sim 50^\circ\text{C}$  et  $V_0 \sim 13\text{m.s}^{-1}$ ).

### 1.5. Influence de la volatilité du liquide

Le comportement d'une goutte en évaporation est lié à la volatilité du liquide qui la compose. Les mesures réalisées avec des produits de volatilité différente (éthanol, n-heptane, n-décane et n-dodécane) permettent de quantifier la vitesse d'échauffement et d'évaporation des gouttes et ainsi de pouvoir mettre en évidence des effets liés à la volatilité du liquide. La Figure 4.6 représente l'évolution de la taille et de la température de gouttes de différentes espèces chimiques. Malgré les précautions prises pour injecter ces gouttes dans des conditions comparables, la température d'injection est un peu plus élevée pour les gouttes d'éthanol et de n-décane et la vitesse initiale est plus grande dans le cas du n-heptane (Tableau 4.2).

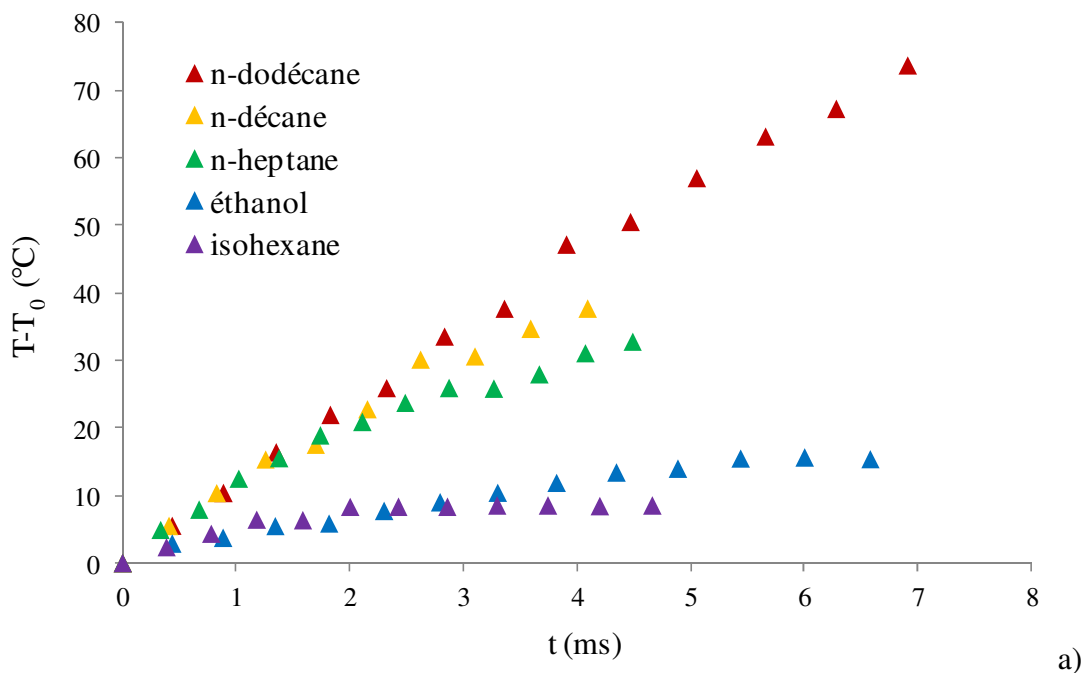
Combustible	$D_0$ ( $\mu\text{m}$ )	$V_0$ ( $\text{m.s}^{-1}$ )	$T_0$ ( $^\circ\text{C}$ )	$C_0$	$T_{eq}$ ( $^\circ\text{C}$ )
Ethanol 5	111,6	11,8	35,1	5,4	51,4
Isohexane 1	111,6	11,8	27,4	5,4	36,0
n-heptane 1	107,8	15,2	27,9	5,5	61,7
n-décane 1	109,7	12,4	34,5	5,7	134,5
n-dodécane 8	109,0	11,6	25,1	5,5	169,5

**Tableau 4.2 :** Conditions expérimentales associées aux jets de gouttes de la Figure 4.6.

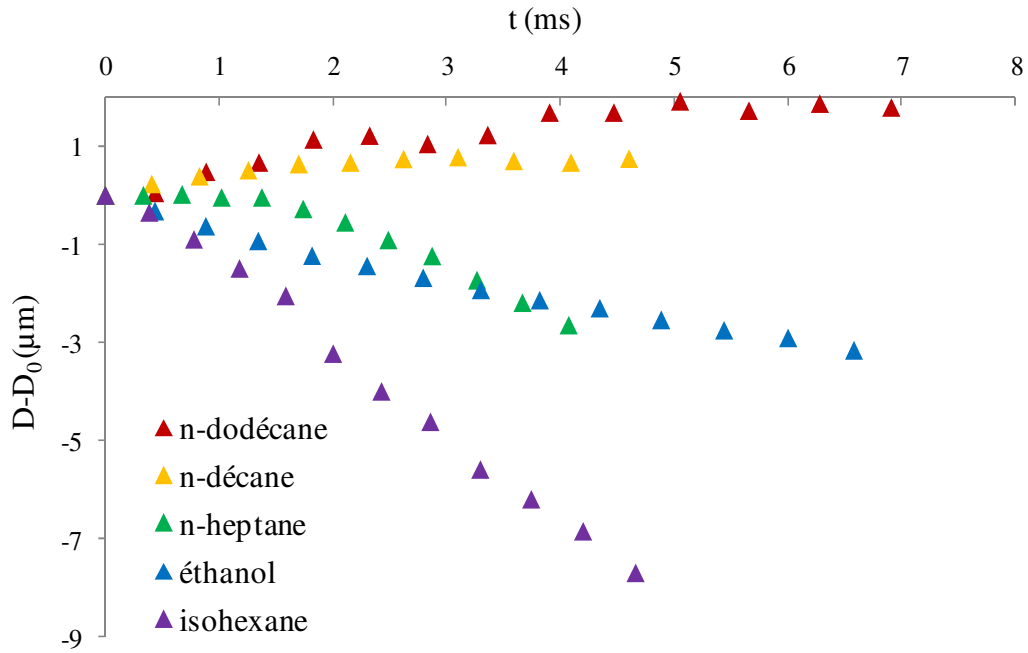
Sur la Figure 4.6-b, la température atteint rapidement un équilibre au bout de quelques ms pour les liquides les plus volatiles (isohexane et éthanol). Lorsque l'équilibre thermique est atteint, la chaleur transférée aux gouttes est entièrement utilisée pour l'évaporation. L'évolution de la taille des gouttes d'éthanol et d'isohexane semble suivre la loi du  $D^2$  dès les premiers instants dans l'enceinte chauffée. En revanche, la loi du  $D^2$  est vérifiée plus

tardivement dans le cas du n-heptane. Pour le n-décane et le n-dodécane, qui sont des alcanes comportant des chaînes carbonées nettement plus longues, des températures élevées doivent être atteintes pour réellement initier l'évaporation. Dans les conditions de la Figure 4.6, les gouttes de n-décane et de n-dodécane n'ont tout simplement pas le temps d'atteindre ces niveaux de température. La taille des gouttes de n-décane et n-dodécane augmente du fait de la dilatation thermique qui n'est pas compensée par l'évaporation.

Aux temps courts, les taux d'échauffement des gouttes de n-heptane, n-décane et n-dodécane diffèrent très peu. L'équation (4.1) s'applique à ces gouttes, encore trop froides pour qu'une évaporation significative puisse être observée. Cette équation prévoit effectivement des taux d'échauffement très proches pour ces gouttes se différenciant très peu par la taille et la vitesse initiale. Lorsque l'évaporation des gouttes de n-heptane devient significative, c'est-à-dire vers  $t = 2$  ms d'après la Figure 4.6-b, le taux d'échauffement des gouttes de n-heptane s'écarte de ceux des gouttes de n-décane et n-dodécane. Ces résultats permettent ainsi d'illustrer l'équilibre qui s'instaure entre chaleur latente et chaleur sensible ainsi que le déplacement de cet équilibre du fait de la plus ou moins grande volatilité du liquide.



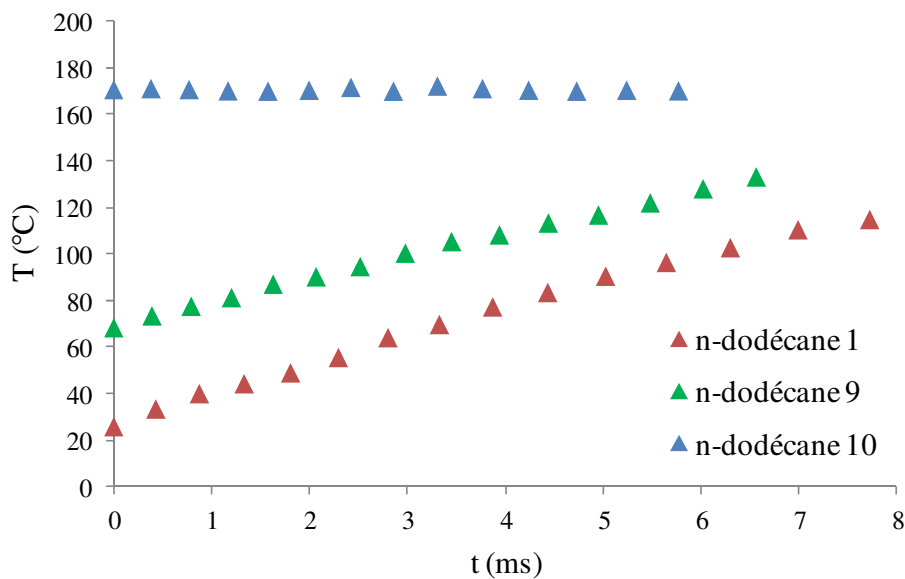




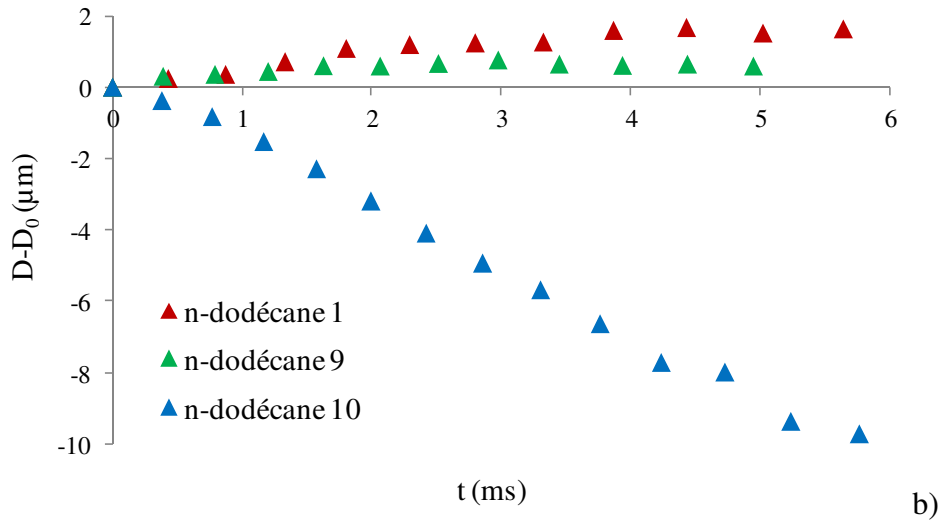
b)

**Figure 4.6 :** Comparaison du comportement des gouttes composées de liquides de différentes volatilités injectés dans des conditions similaires. **a :** évolution temporelle de la température, **b :** variation du diamètre.

Le n-dodécane peut être rendu particulièrement volatile en augmentant la température d'injection comme le montre la Figure 4.7. Des températures d'injection de  $-9^{\circ}\text{C}$ ,  $30^{\circ}\text{C}$  et  $140^{\circ}\text{C}$ , conduisent respectivement à  $20^{\circ}\text{C}$ ,  $70^{\circ}\text{C}$  et  $170^{\circ}\text{C}$  pour le premier point de mesure situé dans l'enceinte à 3 cm de la sortie de l'injecteur. Dans le cas des gouttes injectées à  $30^{\circ}\text{C}$ , l'échauffement est à peu près aussi rapide qu'à la température d'injection  $T_{inj} = -9^{\circ}\text{C}$ , mais l'évaporation compense la dilatation thermique. La taille de ces gouttes varie ainsi très peu. L'injection du n-dodécane à  $140^{\circ}\text{C}$  est suffisante pour atteindre la température d'équilibre de ce composant dans l'air à  $540^{\circ}\text{C}$ , qui est proche de  $170^{\circ}\text{C}$ .

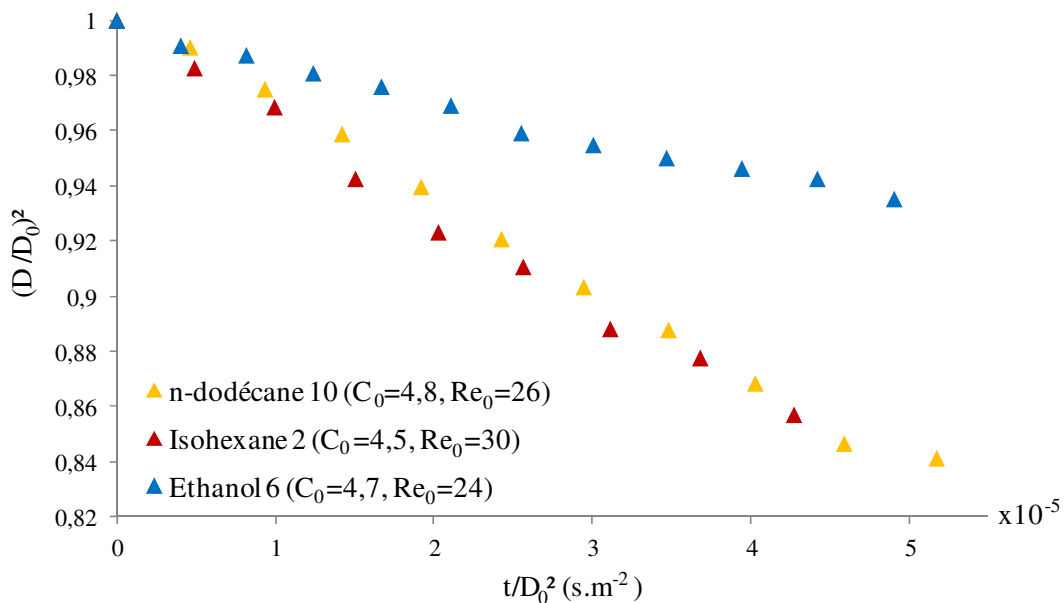


a)



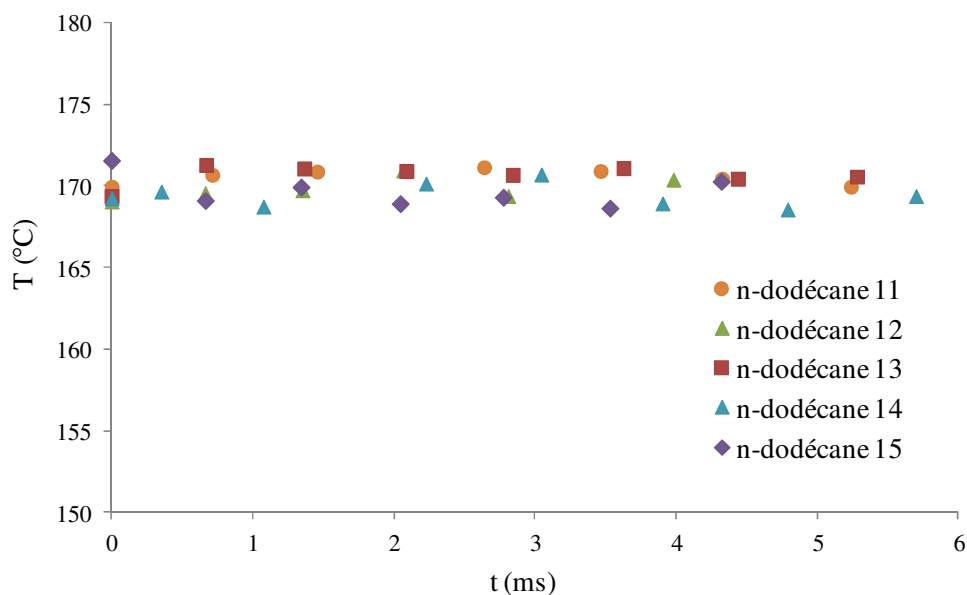
**Figure 4.7 :** Evolution de gouttes de n-dodécane injectées à différentes températures. **a :** évolution temporelle de la température, **b :** variation temporelle du diamètre.

Lorsque la température d'équilibre est atteinte, les gouttes de n-dodécane s'évaporent fortement en suivant la loi du  $D^2$ . Leur comportement reste proche de celui des gouttes d'isohexane (Figure 4.8), espèce beaucoup plus volatiles, injectées à une température nettement plus faible. Il est par ailleurs intéressant de constater que le taux d'évaporation à l'équilibre thermique des gouttes de n-dodécane est pratiquement le même que celui des gouttes d'isohexane et qu'il est nettement supérieur à celui des gouttes d'éthanol (Figure 4.8). Augmenter la température d'injection permet donc d'étudier l'évaporation à température constante des alcanes les plus lourds, sans quoi seule la phase d'échauffement transitoire pourrait être observée, du fait en particulier du faible temps d'observation du phénomène (quelques ms).



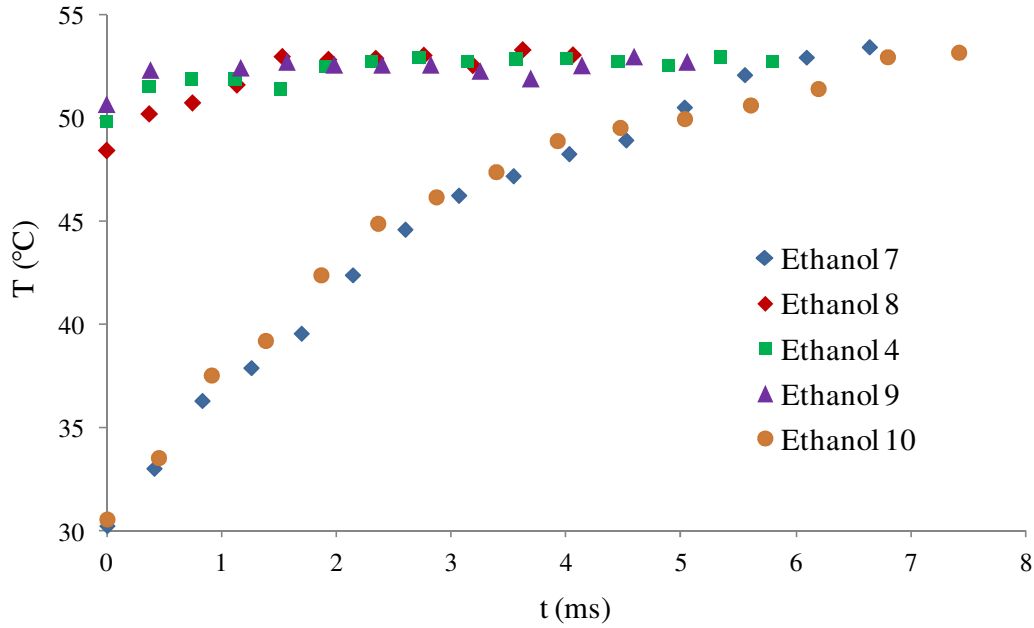
**Figure 4.8 :** Comparaison du taux d'évaporation de gouttes d'éthanol, d'isohexane et de n-dodécane à l'équilibre thermique.

Les température d'équilibre du n-dodécane, de l'éthanol et de l'isohexane ont été caractérisées en changeant les conditions d'injection. Cette température est atteinte lorsque la chaleur échangée entre la goutte et le milieu ambiant est entièrement utilisée pour l'évaporation. La résolution de l'équation (1.66), basée sur la conservation de l'énergie, permet de déterminer théoriquement sa valeur. Dans le cas du n-dodécane, les mesures situent la température d'équilibre aux environs de  $170^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$ , ce qui est en bon accord avec l'analyse théorique menée au chapitre 1 qui prévoit pour la goutte isolée  $T_{eq}=169,5^{\circ}\text{C}$  (Figure 4.9). La dispersion des mesures provient ici en grande partie de la diminution de sensibilité de la mesure 2cLIF lorsque la température devient élevée. Cette diminution de sensibilité est d'ailleurs visible sur les calibrations en température de la technique présentées au 0 notamment celle effectuée dans le n-dodécane (Figure 3.24).

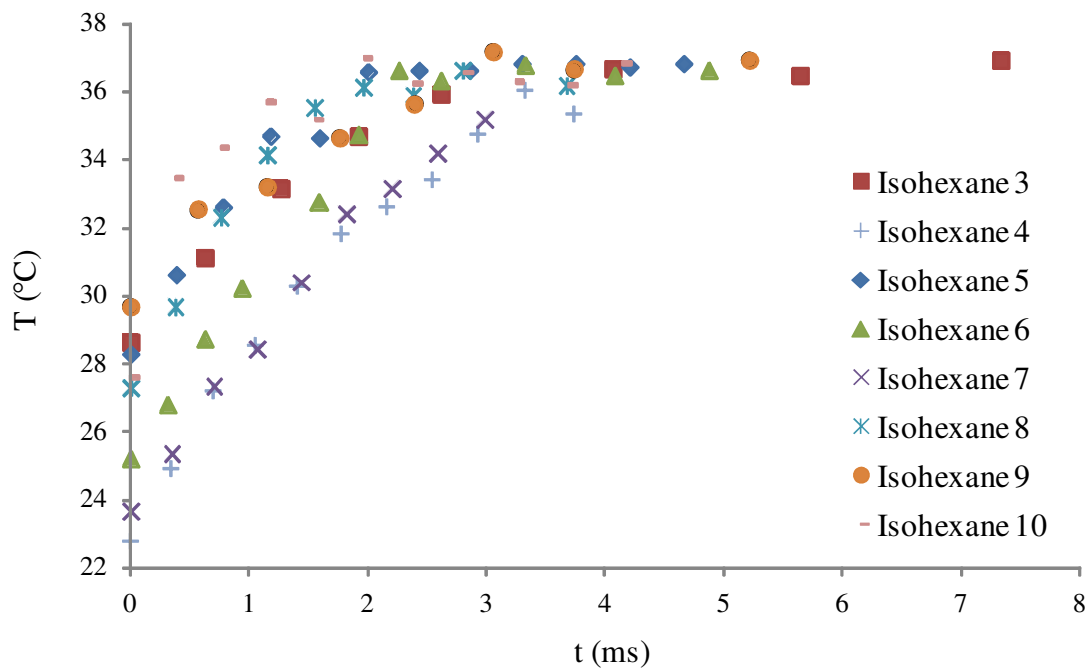


**Figure 4.9 :** Exemples de températures mesurées pour différents jets de gouttes de n-dodécane à l'équilibre thermique.

Pour l'éthanol et l'isohexane, les températures d'équilibres mesurées, respectivement  $51^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$  et  $36.5 \pm 1^{\circ}\text{C}$ , sont suffisamment faibles pour être atteintes au bout de quelques ms par des gouttes injectées au voisinage de la température ambiante (Figure 4.10 et Figure 4.11). La faible dispersion des mesures permet ici de caractériser la température d'équilibre avec une bonne précision et de vérifier là encore que les valeurs expérimentales sont en bon accord avec la théorie basée sur la goutte isolée (soit  $51.4^{\circ}\text{C}$  pour l'éthanol et  $36^{\circ}\text{C}$  pour l'isohexane). D'après les Figure 4.9-Figure 4.11, la température d'équilibre d'une goutte en évaporation est une caractéristique du liquide qui la compose. Sur la base théorique (1.66), on peut établir que température dépend assez peu du nombre de Reynolds pour une goutte isolée. Les résultats expérimentaux montrent également que la température d'équilibre n'est pas sensible aux phénomènes d'interaction aérodynamiques ou alors qu'elle varie trop faiblement pour être caractérisée.



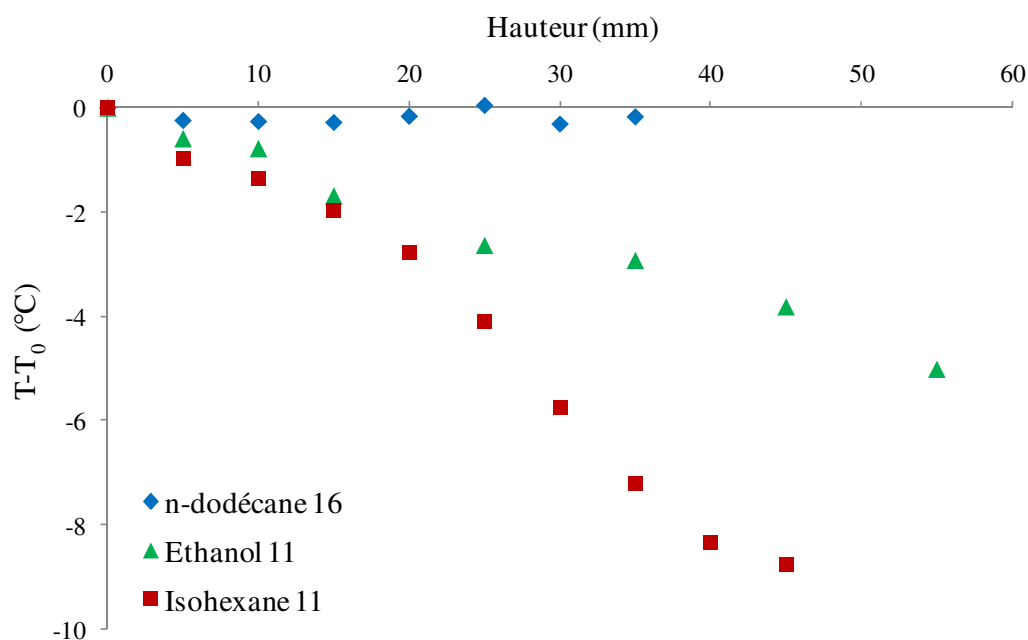
**Figure 4.10 :** Exemples de températures mesurées pour différents jets de gouttes d'éthanol, lorsque la température d'équilibre a été atteinte.



**Figure 4.11 :** Exemples de températures mesurées pour différents jets de gouttes d'isohexane, lorsque la température d'équilibre a été atteinte.

Il est à noter que la caractérisation de la température d'équilibre a permis de mettre en évidence un défaut dans la façon dont était déterminée la température de référence utilisée pour convertir le rapport de fluorescence en température. La référence est réalisée en mesurant le rapport de fluorescence de référence à 3 cm de la sortie de l'injecteur, dans l'enceinte et en l'absence de chauffage de l'air ambiant. La température de référence est alors assimilée à la température d'injection, ce qui conduit à une erreur de mesure systématique dans le cas des liquides les plus volatiles (isohexane et éthanol) qui peuvent présenter un

refroidissement significatif sur ces 3 cm. Ainsi, une température d'équilibre nettement plus élevée pour l'éthanol (~ 53°C) et pour l'isohexane (~ 41°C) ont été observées. La raison en est le refroidissement des gouttes entre le point d'injection et le point où est prise la mesure de référence qui n'est pas pris en compte. La Figure 4.12 représente l'évolution de la température de gouttes d'éthanol, d'isohexane et de n-dodécane injectées à la température ambiante de 20°C à l'extérieur de l'enceinte. Dans le cas de l'isohexane et de l'éthanol, l'évaporation est suffisante pour refroidir les gouttes de quelques degrés en quelques ms. Ainsi, au bout de 3cm, les gouttes d'isohexane et d'éthanol ont déjà perdues respectivement environ 5°C et 2°C. Pour corriger cette erreur, la solution retenue consiste à utiliser pour la prise de référence (dans l'enceinte) un jet de gouttes dont la température a déjà été caractérisée à l'extérieur de l'enceinte. On veille alors à respecter des conditions d'injection relativement similaires (vitesse, taille, température et écartement des gouttes); ainsi, la température mesurée à l'extérieur de l'enceinte sert alors de température de référence.



**Figure 4.12 :** Refroidissement de gouttes de différents liquides dans l'air à 20°C. Mesures effectuées à l'extérieur de l'enceinte. La hauteur correspond à la distance par rapport au point d'injection.

## 2. Comparaison des résultats expérimentaux aux modèles existants

Les données expérimentales ont été confrontées aux modèles d'échauffement et d'évaporation présentés au Chapitre 1. Plusieurs approches sont à priori envisageables pour comparer les résultats expérimentaux aux modèles:

- L'approche « directe » consiste à simuler l'évaporation et l'échauffement de la goutte en supposant connu les lois d'échange associées aux transferts de chaleur et de masse. La qualité des prédictions du modèle est évaluée sur la base des écarts observés entre la taille et la température mesurées et celles qui ont calculées. L'approche directe suppose de disposer d'une corrélation pour estimer les nombres de Nusselt et de Sherwood, prenant en compte les interactions aérodynamiques entre gouttes. S'il en existe plusieurs relatives à des gouttes en interaction, leurs domaines de validité n'est pas forcément compatibles avec les études qui ont été menées dans ce travail.

- L'approche « inverse » cherche à déterminer les nombres de Nusselt et de Sherwood à partir des évolutions expérimentales de la taille et de la température des gouttes. Ces nombres peuvent ensuite être comparés aux modèles existants ou servir de base au développement de nouvelles corrélations. La connaissance des nombres de Nusselt et de Sherwood permet de mieux appréhender les paramètres physiques intervenant dans les échanges de chaleur et de matière.

Pour cette étude, les deux approches directe et inverse ont été mises en place.

### 2.1. Choix de la condition initiale

La résolution du problème direct s'appuie sur les hypothèses classiques de l'évaporation quasi-stationnaires qui ont été présentées au Chapitre 1. La méthode de résolution suivie est essentiellement la même que celle initiée par Abramzon et Sirignano [15]. Le paragraphe qui suit, en résume les principales étapes dans le cas d'une goutte monocomposant.

Le diamètre  $D_i$ , la température  $T_i$  et la vitesse  $V_i$  de la goutte sont supposés connus à l'instant  $t_i$ . L'algorithme de résolution mis en œuvre a pour but de déterminer les valeurs de ces mêmes paramètres à l'instant suivant  $t_{i+1} = t_i + dt$ , où  $dt$  correspond à la discrétisation temporelle adoptée pour la résolution.

#### Etape 1 : Calcul des propriétés physiques de la phase liquide et vapeur :

Les propriétés physiques du liquide ( $\mu_l, \rho_l, C_{p_l}, \lambda_l$ ) sont calculées à la température moyenne de la goutte  $T_m = \frac{6}{\pi D^3} \int_0^{D/2} T(r, t) 4\pi r^2 dr$ . En supposant que la vapeur à la surface de la goutte est à l'équilibre avec le liquide, la pression partielle de vapeur est égale à la pression de

vapeur saturante  $P_{sat}$ . Ceci permet de déterminer la fraction molaire  $x_s$  de la vapeur à la surface de goutte :

$$x_s = P_{sat}(T_s)/P \quad (4.2)$$

où  $P$  est la pression totale et  $T_s$  est la température de surface. La règle du 1/3 (Chapitre 1 section 2.1) permet de définir un état de référence pour le calcul des propriétés de la phase gazeuse. Les propriétés de la vapeur mélangée à l'air qui sont évaluées à cet état de référence, sont désignées par l'indice *réf*. Les lois de mélange établies au Chapitre 1 section 2.6 permettent de déterminer  $\mu_{g,réf}$ ,  $\rho_{g,réf}$ ,  $Cp_{g,réf}$ ,  $\lambda_{g,réf}$  et  $D_{g,réf}$ .

### Etape 2 : Calcul des nombres de Nusselt et Sherwood $Nu_0$ et $Sh_0$ d'une goutte en situation de faible évaporation :

Ce calcul fait appel à la corrélation de Clift, qui doit être privilégiée pour des faibles nombres de Reynolds par rapport aux corrélations de Frossling et de Ranz-Marshall.

$$Sh_0 = 1 + (1 + Re Sc)^{1/3} f(Re), \quad (4.3)$$

$$Nu_0 = 1 + (1 + Re Pr)^{1/3} f(Re), \quad (4.4)$$

avec  $Re = \rho_\infty u D / \mu_{réf}$ ,  $f(Re) = 1$  si  $Re \leq 1$  et  $f(Re) = Re^{0,0777}$  si  $1 < Re < 40$ .

### Etape 3 : Calcul du débit de vapeur $\dot{m}_{iso}$ et du flux de chaleur $Q_{l,iso}$ de la goutte isolée :

Cette étape commence par l'évaluation du nombre de Spading  $B_M$ :

$$B_M = (Y_s - Y_\infty) / (1 - Y_s) \quad (4.5)$$

Le débit de vapeur  $\dot{m}_{iso}$  de la goutte isolée peut être ensuite évalué selon l'expression :

$$\dot{m}_{iso} = \pi D \rho_{réf} D_{réf} Sh_{iso} B_M \quad (4.6)$$

avec d'après (1.59),  $Sh_{iso} = \frac{\ln(1 + B_M)}{B_M} \left[ 2 + \left( \frac{Sh_0 - 2}{F_M(B_M)} \right) \right]$  (4.7)

En revanche,  $Q_{l,iso}$  n'étant pas connue à l'instant  $t_{i+1}$ ,  $B_{T,iso}$  doit être évalué de manière itérative en s'appuyant sur la relation (1.66) à savoir :

$$B_{T,iso} = (1 + B_M)^a - 1 \quad (4.8)$$

avec  $a = Le \frac{Cp_g}{Cp_v} \frac{2 + (Sh_0 - 2)/F_M}{2 + (Nu_0 - 2)/F_{T,iso}}$ ,  $F_{T,iso} = F(B_{T,iso})$ ,  $F_M = F(B_M)$  et  $F(B) = (1 + B)^{0,7} \frac{\ln(1 + B)}{B}$ .

A la première itération, le paramètre  $F_{T,iso}$  dans l'exposant  $a$  peut être approximé par sa valeur à l'instant  $t_i$ . Une nouvelle estimation de  $B_{T,iso}$  à l'instant  $t_{i+1}$  s'obtient en utilisant (4.8). Elle sert à recalculer  $F_{T,iso}$  qui peut être introduit dans le calcul de  $B_{T,iso}$  selon la relation (4.8). Les

calculs sont répétés jusqu'à convergence de  $B_{T,iso}$ . Finalement, le flux de chaleur entrant dans la goutte à l'instant  $t_{i+1}$  est déterminé à partir de l'expression :

$$Q_{l,iso} = \dot{m}_{iso} \left[ \frac{Cp_v (T_\infty - T_s)}{B_{T,iso}} - Lv \right] \quad (4.9)$$

provenant directement de l'équation (1.34). Les paramètres  $Cp_v$  et  $L_v$  sont calculés ici à la température de surface  $T_s$ .

#### Etape 4 : Prise en compte des effets d'interaction :

Les effets d'interaction entre des gouttes voisines tendent à réduire le débit de vapeur et le flux de chaleur échangés entre la phase liquide et la phase gazeuse. La prise en compte de ces effets passe par l'introduction de deux paramètres  $\eta_M = Sh/Sh_{iso}$  et  $\eta_T = Nu/Nu_{iso}$  qui sont à priori fonction de l'écartement des gouttes adimensionnalisé  $C$  (paramètre de distance) et de plusieurs paramètres aérothermiques ( $B_M, B_T, Le, Re...$ ). La nature de ces dépendances est à priori connue dans la résolution du problème direct. On pourra se référer au Chapitre 1 section 2.7 pour des exemples de corrélations. Sur la base de (1.105), on peut écrire :

$$\dot{m} = \eta_M \dot{m}_{iso} \text{ et } \Phi_g = \eta_T \Phi_{g,iso}, \quad (4.10)$$

où  $\Phi_g = Q_l + L_v$  et  $\dot{m}$  désigne le flux de chaleur échangée par convection entre la goutte et le gaz.

#### Etape 5 : Calcul de la taille, de la vitesse et de la température moyenne à l'instant $t_{i+1}$ :

La température moyenne  $T_{m,i+1}$  et le diamètre  $D_{i+1}$  à l'instant  $t_{i+1}$  sont déterminés par :

$$T_{m,i+1} = T_{m,i} + \frac{Q_l}{(m - \dot{m} dt) Cp_l} \quad (4.11)$$

$$\rho_l (T_{m,i+1}) D_{i+1}^3 = \rho_l (T_{m,i}) D_i^3 - \frac{6}{\pi} \dot{m} dt \quad (4.12)$$

Le mouvement d'une goutte est influencé par la traînée aérodynamique, la pesanteur et l'inertie. Dans les expériences, les gouttes sont injectées verticalement vers le haut dans un écoulement d'air ascendant à faible vitesse. En adoptant un schéma de type explicite:

$$V_{i+1} = V_i - \frac{dt}{m} \left( \frac{1}{2} \rho_g V_i^2 S C_d + m g \right) \quad (4.13)$$

Comme présenté au Chapitre 1 section 2.8, le coefficient de traînée  $C_d$  d'une goutte en évaporation et en interaction dépend de plusieurs paramètres parmi lesquels le nombre de Reynolds, le nombre de Spalding et l'écartement des gouttes.



### Etape 6 : Calcul du champ de température interne à $t_{i+1}$ :

Le modèle de conductivité thermique effective (ETC) a été retenu pour effectuer les comparaisons avec les expériences. Dans le cadre de cette approche, l'équation de chaleur peut se mettre sous la forme :

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \xi \frac{\dot{R}}{R} \frac{\partial T}{\partial \xi} = \frac{\alpha_{eff}}{R^2 \xi^2} \frac{\partial}{\partial \xi} \left( \xi^2 \frac{\partial T}{\partial \xi} \right), \quad 0 \leq \xi \leq 1 \text{ et } \alpha_{eff} = \lambda_{eff} / \rho_l C_p l \quad (4.14)$$

Cette équation a été obtenue en effectuant le changement de variable  $\xi = r/R$  permettant de tenir compte de manière simple de la variation de taille de la goutte du fait de la dilatation thermique et de l'évaporation. Le taux de variation relative du rayon de la goutte  $\dot{R}/R$  peut être approximé par :

$$\frac{\dot{R}}{R} \approx \frac{1}{dt} \frac{D_{i+1} - D_i}{D_{i+1} + D_i} \quad (4.15)$$

D'après (1.102), la diffusivité effective  $\alpha_{eff} = \chi(Pe_T)\alpha$  peut être évaluée en utilisant la relation :

$$\chi_T = 1,86 + 0,86 \tanh \left( 2,225 \log_{10} \left( \frac{Pe_T}{30} \right) \right) \text{ avec } Pe_T = U_s D / \alpha \quad (4.16)$$

Dans cette expression du nombre de Péclet thermique  $Pe_T$ ,  $U_s$  est une vitesse caractéristique de l'écoulement interne dans la goutte. Elle est évaluée en modélisant l'écoulement interne à l'aide d'un tourbillon de Hill à partir du frottement visqueux s'exerçant sur la surface de la goutte. D'après (1.96) :

$$U_s = \frac{\mu_g}{\mu_l} \frac{\| \vec{V}_\infty - \vec{V} \| Re_{réf}}{32} C_F. \quad (4.17)$$

Le coefficient de frottement  $C_F$  d'une goutte en interaction est réduit par rapport celui de la goutte isolée. Suite aux travaux de Castanet et al. [54], la relation (1.125) a été proposée:

$$\frac{C_F}{C_{F,iso}} = \frac{C_d}{C_{d,iso}} - 0,1. \quad (4.18)$$

Le calcul de  $C_{F,iso}$  fait appel à la relation (1.97), tandis que le rapport  $C_d/C_{d,iso}$  est déterminé avec la relation (1.123).

L'équation de la chaleur (4.14) est complétée par les conditions suivantes :

$$T(r, t_i) = T_i(r) \quad \forall r \quad (4.19)$$

$$4\pi R^2 \lambda_l \frac{\partial T}{\partial r} = Q_l \text{ en } r=R \text{ et } \forall t. \quad (4.20)$$

L'équation (4.14) associée à (4.19) et (4.20) est résolue numériquement à l'aide d'un schéma de Crank-Nicholson. Ceci permet notamment de déterminer la température de surface à l'instant  $t_{i+1}$  qui est notée  $T_{s,i+1}$ .

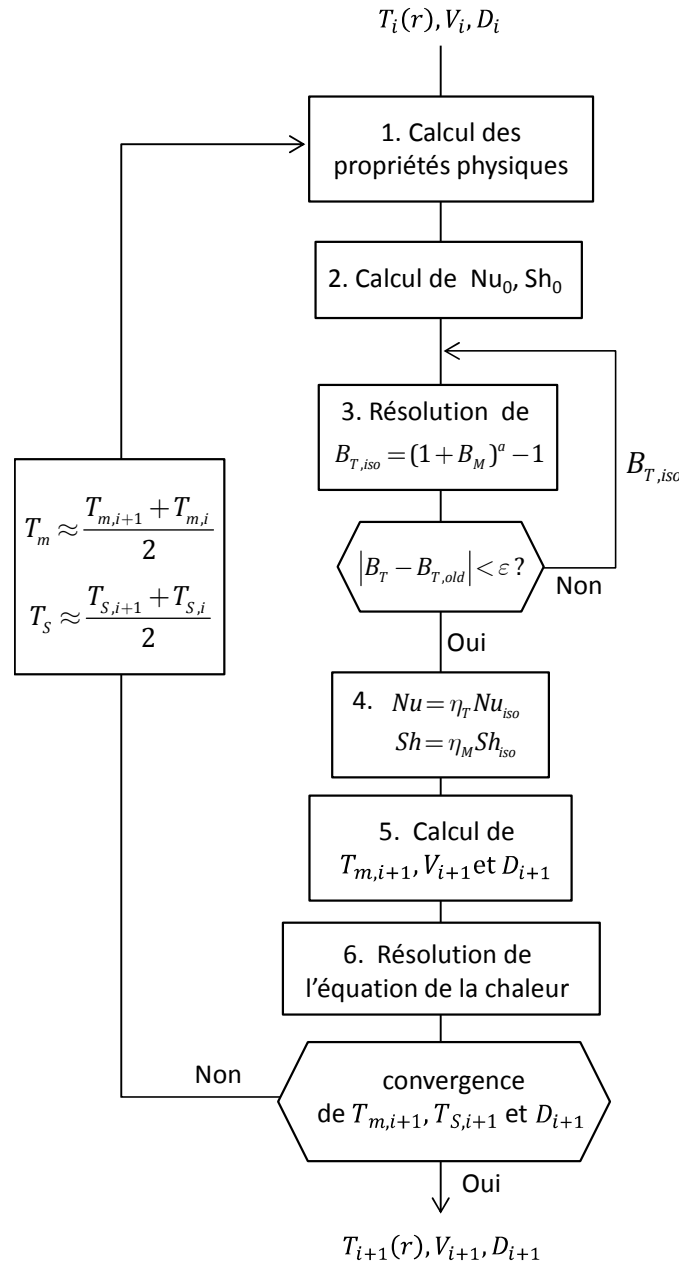
### Passage au pas de temps suivant :

Cette description de la résolution du problème direct s'accompagne du schéma de la Figure 4.13. Au lieu de passer directement au pas de temps suivant après l'étape 6, le calcul retourne à l'étape 1 de façon à déterminer les propriétés physiques du liquide et du gaz à une température plus représentative de l'intervalle  $[t_i, t_{i+1}]$ . Les propriétés physiques à l'étape 1 sont alors évaluées aux températures suivantes :

$$T_{LF} \approx (T_c + T_m)/2 \text{ et } T_s \approx \frac{T_{s,i+1} + T_{s,i}}{2} \quad (4.21)$$

où  $T_{m,i+1}$  et  $T_{s,i+1}$  sont calculées éventuellement à plusieurs reprises en effectuant la boucle décrite sur la Figure 4.13.

Le passage au pas de temps suivant s'effectue lorsque les paramètres  $T_{m,i+1}$ ,  $T_{s,i+1}$  et  $D_{i+1}$  ont convergés avec une précision satisfaisante. Les critères de convergence retenus sont  $0,1^\circ\text{C}$  pour  $T_{m,i+1}$  et  $T_{s,i+1}$ , et 1% pour la variation relative de la taille  $|D_{i+1} - D_i|/D_i$ . Le pas de temps  $dt$  adopté est en général de 0,01 ms, mais ce paramètre doit être augmenté ou diminué selon la rapidité à laquelle la goutte s'échauffe et s'évapore. Pour la résolution de l'équation de la chaleur avec le modèle ETC, un maillage régulier constitué d'une centaine de nœuds est choisi et le pas de temps est fixé à  $dt/1000$ .



**Figure 4.13 :** Schéma de l'algorithme adopté pour la résolution du problème directe.

## 2.2. Résolution du problème direct

Le choix de conditions initiales appropriées pour la simulation pose des difficultés dans le cas de la température. La température des gouttes ne peut pas être mesurée entre la sortie de l'injecteur et l'arrivée dans l'enceinte. Les gouttes sont déjà partiellement échauffées quand elles atteignent le premier point de mesure situé à 30 mm de la sortie de l'injecteur. Le fait de considérer des gouttes en échauffement, y compris pendant la traversée de l'orifice d'entrée de l'enceinte, impose d'avoir  $T(r) \geq T_{inj}$ , où  $T_{inj}$  est la température d'injection du liquide mesurée par le thermocouple situé dans la tête de l'injecteur. Le profil envisagé pour la température à l'intérieur de la goutte au niveau du premier point de mesure est le suivant :

$$\begin{cases} T(r) = A(r-a)^2 + B(r-a) + C & \text{si } r \geq a \\ T(r) = T_{inj} & \text{si } r < a \end{cases} \quad (4.22)$$

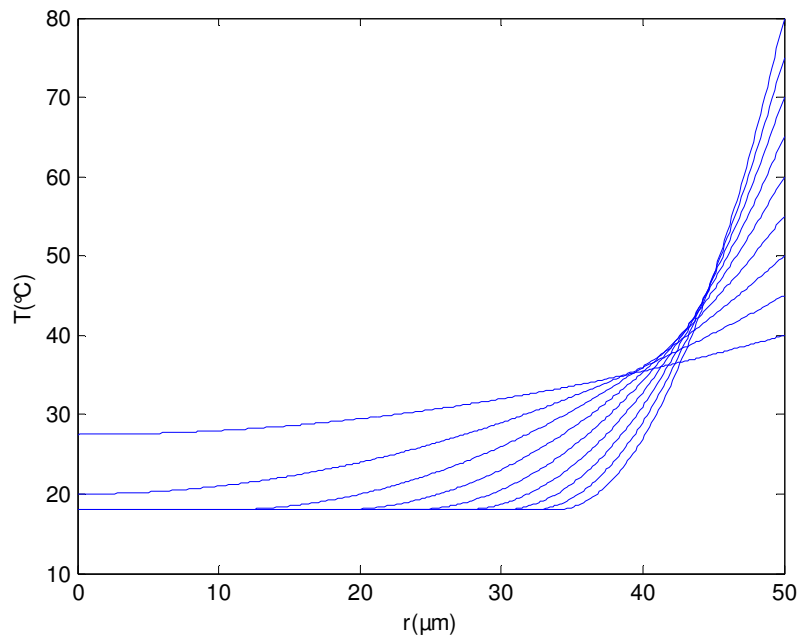
Si  $a > 0$ , l'échauffement se limite à une couronne d'épaisseur  $R-a$ , tandis qu'au centre la température reste égale à  $T_{inj}$ . Dans le cas où  $a = 0$ , le profil de température est une simple parabole et la température au centre en  $r = 0$  doit être supérieure ou égale à  $T_{inj}$ . En s'appuyant sur  $T_m$ ,  $T_{inj}$  et  $T_s$ , il est possible d'expliciter les paramètres de (4.22) comme suit :

- Si  $T_m \leq (3T_s + 2T_{inj})/5$ , alors  $a > 0$ ,  $A = (T_s - T_{inj})/(R-a)^2$ ,  $B = 0$  et  $C = T_{inj}$ .

Le rayon  $a$  correspond à la racine positive du polynôme d'ordre 3 obtenu à partir de l'équation  $\int_0^R T(r)r^2 dr = R^3 T_m/3$ .

- Si  $T_m > (3T_s + 2T_{inj})/5$ , alors  $a = 0$ ,  $A = 5(T_s - T_m)/2R^2$ ,  $B = 0$  et  $C = (3T_s + 5T_m)/2$ .

Quelques profils obtenus pour une même valeur de  $T_m$  et  $T_{inj}$  sont présentés à la Figure 4.14 tandis que la température de surface  $T_s$  varie. En dessous d'une certaine valeur de  $T_s$  (comprise entre 45°C et 50°C sur la Figure 4.14), le respect de la température moyenne  $T_m$  impose d'avoir une parabole dont le minimum au centre est supérieur à  $T_{inj}$ .



**Figure 4.14 :** Profils de température obtenus pour différente température de surface

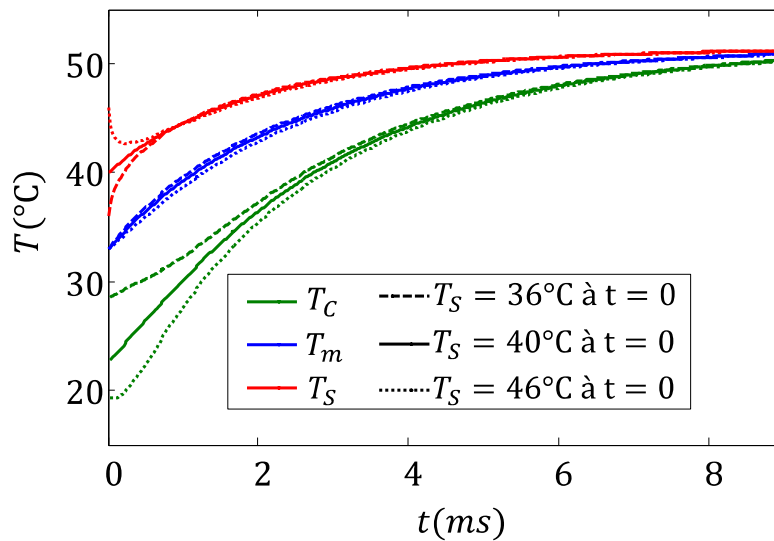
( $40^\circ\text{C} \leq T_s \leq 80^\circ\text{C}$ ) en fixant  $R=50\mu\text{m}$ ,  $T_{inj}=18^\circ\text{C}$  et  $T_m=35^\circ\text{C}$ .

Dans la pratique,  $T_m$  et  $T_{inj}$  sont connues<sup>1</sup> et il convient de trouver la valeur de  $T_s$  la plus appropriée. La Figure 3.15 montre plusieurs évolutions de la température obtenues en faisant varier la valeur initiale de  $T_s$ . Si  $T_s$  est supérieure à une valeur critique  $T_{s,crit}$  (à peu près égale

<sup>1</sup> Même si  $T_m$  n'est pas tout à fait égale à la température mesurée par la technique 2cLIF, on peut supposer en première approximation que  $T_m \approx 2 T_{LIF} - T_{inj}$ .

à 40°C pour l'exemple de la Figure 3.15), la température de surface commence par décroître puis finie par augmenter, ce qui n'est pas réaliste. A l'inverse, si  $T_s$  est inférieure à  $T_{s,crit}$ ,  $T_s$  augmente d'abord rapidement, puis l'augmentation de  $T_s$  s'effectue à un rythme fortement ralenti. Ce comportement est également assez peu probable.

Pour la condition initiale, le choix de  $T_s$  s'est donc porté sur  $T_{s,crit}$ , qui correspond à la valeur de  $T_s$  la plus élevée pour laquelle la surface ne subit aucun refroidissement transitoire. Comme l'indique la figure 3, un écart sur la valeur initiale de  $T_s$  n'a pas nécessairement beaucoup de conséquence sur l'évolution de la température moyenne. Cette méthode sera donc appliquée aux différentes simulations réalisées.



**Figure 4.15 :** Evolution de la température pour 3 températures initiales de surface. A  $t=0$ ,  $T_m=33^\circ\text{C}$  et  $T_{inj}=19^\circ\text{C}$  (gouttes d'éthanol,  $\eta_T = \eta_M = 0,6$ ,  $V=12$  ms,  $T_{amb}=540^\circ\text{C}$ ).

### 2.3. Effet de la présence de gradients de température à l'intérieur de la goutte sur la mesure de température

Pendant la phase d'échauffement, les gouttes ne sont pas, par définition, à l'équilibre thermique et le champ de température à l'intérieur de celles-ci n'est pas uniforme. Un point important pour la comparaison entre les modèles et l'expérience est de savoir si la température mesurée par la technique 2cLIF correspond à la température moyenne au sens algébrique, à savoir  $T_m = \frac{6}{\pi D^3} \int_0^{r/2} T(r, t) 4\pi r^2 dr$ . Ainsi, il convient d'examiner plus en détail la configuration optique du système de mesure. Lorsque le système de deux faisceaux laser gaussiens traverse l'interface de la goutte, le champ d'excitation de la fluorescence n'est pas uniforme à l'intérieur de la goutte. Ceci est dû à la combinaison de trois phénomènes : la réfraction de la lumière à l'interface sphérique (effet de lentille), le caractère gaussien des faisceaux laser et en dernier lieu, l'absorption du faisceau laser dans la goutte ensemencée en colorant fluorescent, ce dernier point ayant l'impact le plus marginal. La température mesurée qui correspond à l'intégration du signal de fluorescence sur l'ensemble du volume de collection, ne sera pas directement la moyenne arithmétique du champ de température, puisqu'il existe une pondération liée à la distribution du champ d'excitation laser. D'autre

part, les photons de fluorescence selon l'endroit de leur émission à l'intérieur du volume de collection n'ont pas la même probabilité de ressortir de la goutte en direction du détecteur. Afin de quantifier ces effets, il est nécessaire de prendre en compte les caractéristiques du système optique, celles des faisceaux excitateurs, du champ de détection ainsi que les caractéristiques de la goutte.

### Calcul du champ d'excitation interne

Le volume d'excitation laser est formé par l'intersection des deux faisceaux laser focalisés de diamètres 136  $\mu\text{m}$  au niveau du plan focal. La zone imagée par la fibre optique derrière le doublet de lentilles achromatiques correspond à un disque de 140  $\mu\text{m}$ . Dans le but de décrire la propagation de la lumière à l'intérieur de la goutte et son influence sur le signal de fluorescence, les lois de l'optique géométrique ont été utilisées en association avec une simulation de type lancer de rayons.

La goutte est placée dans un maillage cartésien  $(x, y, z)$ . La propagation d'un rayon lumineux s'obtient en appliquant les lois de Snell-Descartes pour la réfraction sous leur forme vectorielle en 3D. Pour cela, le vecteur normal  $\vec{n}$  à la surface de la goutte est déterminé à partir de l'équation de la surface de la goutte  $f(x, y, z) = 0$  :

$$\vec{n} = \nabla \bar{f} / \|\nabla \bar{f}\| \quad (4.23)$$

La fraction d'énergie transmise à la traversée de l'interface est déterminée à partir des coefficients de Fresnel. Le lancer de plusieurs millions de rayons assure une bonne convergence des calculs.

Les faisceaux laser sont tout d'abord discrétisés en un ensemble de rayons lumineux transportant chacun une partie de l'énergie lumineuse. Une intensité lumineuse  $I_{\text{rayon}}$  est ainsi attribuée à chaque rayon en respectant le profil Gaussien dans la direction transverse des faisceaux. Dans chaque éléments du maillage 3D, l'énergie  $I_{\text{laser}}$  servant à l'excitation de la fluorescence est donnée par :

$$I_{\text{laser}}(x, y, z) = \sum_i I_{\text{rayon},i} dl_i \quad (4.24)$$

où  $i$  désigne le  $i^{\text{ème}}$  rayon traversant l'élément de maillage sur une longueur  $dl_i$ .

Les rayons sont soumis à l'absorption du colorant fluorescent en solution dans le liquide, ce qui peut être décrit par la loi de Beer-Lambert. Les calculs sont limités au rayon d'ordre 1, qui ne subissent pas de réflexions internes, les rayons d'ordre plus élevés ne transportant à priori que très peu d'énergie sauf lorsque l'angle d'incidence est supérieur à l'angle critique de la réfraction.

Afin de simuler la détection du signal de fluorescence par le doublet achromatique, une deuxième série de lancer de rayon est effectuée. Une approximation acceptable consiste à faire l'hypothèse que tous les rayons parvenant aux détecteurs sont para-axiaux. En appliquant

le principe du retour inverse de la lumière, les rayons issus du dispositif de collection sont lancés selon la direction de l'axe optique. Chaque rayon partant d'un point  $A$  au niveau de la surface frontale du doublet achromatique transporte une intensité lumineuse donnée par l'intégrale sur le chemin du rayon :

$$I_{\text{détecteur},j}(A) = \int_{\text{Chemin dans la goutte}} I_f(x, y, z) \exp(-\varepsilon_j C l) dl, \quad (4.25)$$

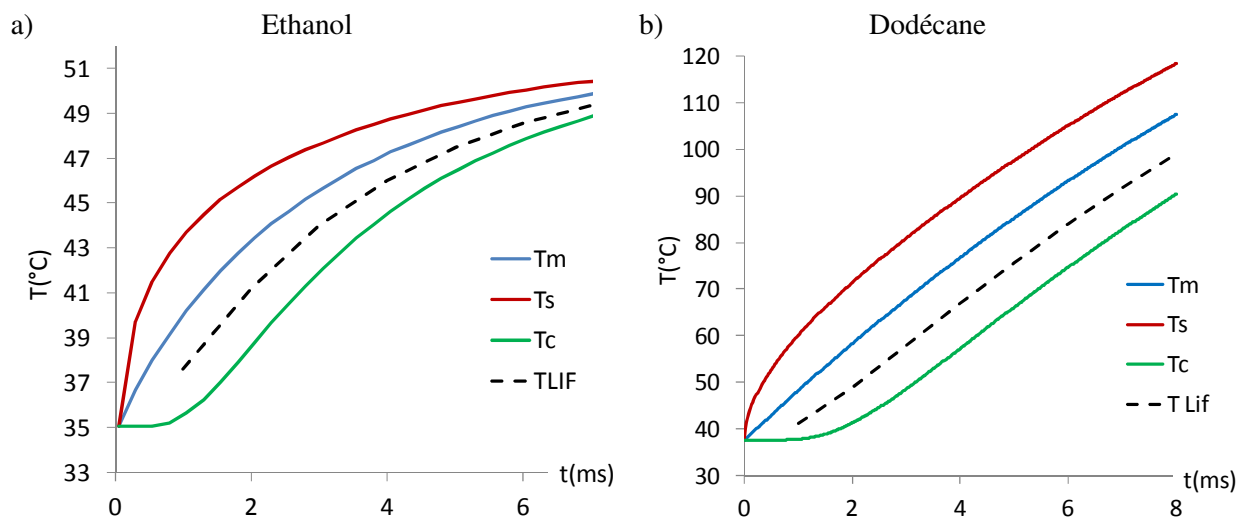
Où  $I_f(x, y, z)$  désigne le champ de fluorescence au point de coordonnées  $(x, y, z)$ , et  $\varepsilon_j$  est le coefficient d'extinction molaire par le colorant fluorescent sur la bande spectrales  $j$ .

### **Effets combinés du champ d'excitation interne et du champ de température non-uniformes**

Afin d'évaluer l'effet du système optique sur la température mesurée par 2cLIF, une simulation numérique du champ de température a été effectuée en supposant des conditions réalistes et proches de celles des conditions expérimentales. La méthode de résolution décrite précédemment pour résoudre le problème directe est utilisée pour simuler l'évolution temporelle de la température à l'intérieur de la goutte en s'appuyant sur le modèle de conductivité effective. L'utilisation de ce modèle conduit à un champ de température purement radial. Deux cas de figure ont été considérés :

- le cas d'un liquide volatile, l'éthanol, présentant un échauffement modéré et ainsi des gradients de température interne relativement faibles (gouttes de diamètre initial  $D_0=109 \mu\text{m}$ , injecté dans une atmosphère à  $T_{\text{amb}}=540^\circ\text{C}$ ),
- le cas d'un liquide peu volatile, le n-dodécane, présentant un échauffement important et ainsi des gradients de température interne élevés (gouttes de diamètre initial  $D_0=111,6 \mu\text{m}$ , injecté dans une atmosphère à  $T_{\text{amb}}=540^\circ\text{C}$ ).

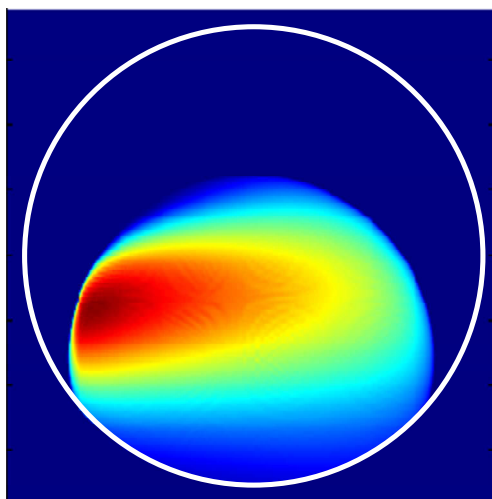
Les évolutions temporelles des températures caractéristiques (température au centre, de surface et moyenne arithmétique volumique, respectivement notées  $T_c$ ,  $T_s$  et  $T_m$ ) sont représentée sur la Figure 4.16 pour les deux cas de simulation.



**Figure 4.16 :** Evolution temporelle de la température au centre de la goutte  $T_c$ , de la température de surface  $T_s$ , de la moyenne arithmétique volumique  $T_m$  et évolution de la température  $T_{LIF}$  mesurée par le système 2cLIF. Les calculs correspondent aux simulations des cas expérimentaux **a-** de gouttes d'éthanol ( $T_0=35,1^\circ\text{C}$ ,  $D_0=111,6 \mu\text{m}$ ,  $V_0=11,8 \text{ m/s}$ ,  $C_0=5,4$ ) et **b-** de gouttes de dodécane ( $T_0=25,1^\circ\text{C}$ ,  $D_0=109 \mu\text{m}$ ,  $V_0=11,6 \text{ m/s}$ ,  $C_0=5,5$ ) pour une température ambiante  $T_{amb}=540^\circ\text{C}$ .

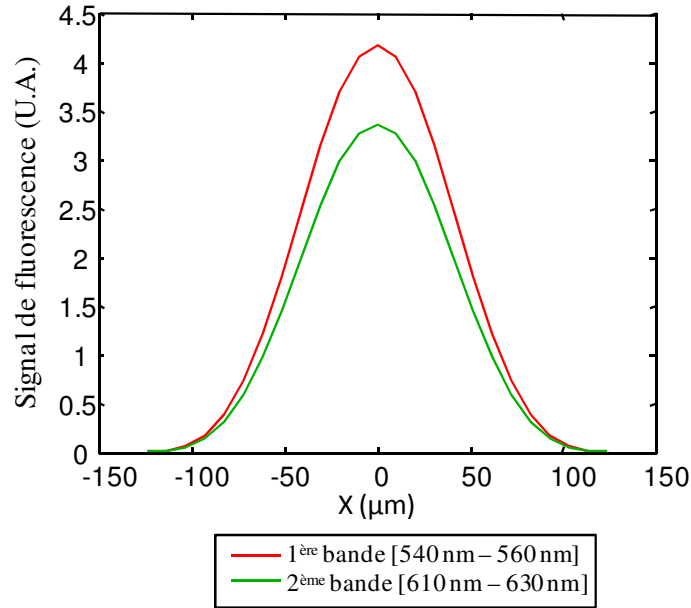
Le calcul consiste à déterminer le signal de fluorescence dans la goutte reçu par le dispositif optique de collection du signal de fluorescence. Pour cela, l'intensité locale de l'énergie d'excitation laser est calculée en chaque point à l'aide du code de lancer de rayons. En utilisant la température locale déterminée par la simulation numérique (résolution du problème direct), l'intensité de fluorescence peut être évaluée en chaque point de la goutte et sur chacune des bandes spectrales, la sensibilité en température du traceur fluorescent ayant été caractérisé par les calibrations préliminaires Chapitre 3 section 2.4. Le calcul du signal de fluorescence collecté par le dispositif optique est également réalisé par le lancer de rayons, en prenant en compte la réabsorption de la fluorescence sur le chemin optique et ce pour chacune des bandes spectrales considérées. A titre d'exemple, la figure 4.17 illustre le champ de fluorescence détecté par le système optique de collection dans le cas d'une goutte légèrement décentrée par rapport à la bissectrice des faisceaux laser et à l'axe optique du système de détection.





**Figure 4.17 :** Image du champ de fluorescence détecté par le dispositif optique. Cas d'une goutte de  $112\mu\text{m}$  décalée verticalement de  $40\mu\text{m}$  par rapport à l'axe du volume de mesure.

Les calculs sont répétés pour différentes positions verticales de la goutte afin de tenir compte de la variation du signal du fait du déplacement vertical de la goutte dans le volume de mesure. Ceci permet de déterminer les profils de l'intensité de fluorescence en fonction de la coordonnée verticale (Figure 4.18) pour les deux bandes spectrales de détection considérées. Le signal de fluorescence est ensuite intégré sur le temps de transit complet de la goutte dans le volume de mesure. Le rapport de fluorescence est déterminé à partir des intensités collectées sur chacune des bandes spectrales de détection, puis est converti en température à l'aide d'un point de référence virtuel (ici obtenu en effectuant les mêmes calculs avec une goutte de température uniforme). La température ainsi déterminée est notée  $T_{LIF}$ . Elle correspond à la température résultant de la mesure par le système 2cLIF utilisé.



**Figure 4.18** : Evolution du signal de fluorescence en fonction de la position verticale de la goutte dans le volume de mesure ( $X=0$  correspond au centre de la goutte dans le volume de mesure).

L'évolution temporelle de la température  $T_{LIF}$  est reportée sur la figure 4.16 pour les deux exemples de jets de goutte mentionnés précédemment. La température  $T_{LIF}$  peut s'écarter de la moyenne arithmétique de quelques degrés dans le cas d'un liquide volatiles et de plus de  $10^{\circ}\text{C}$  pour les liquides faiblement volatiles. Ainsi, dans le cas d'une goutte en échauffement, la température  $T_{LIF}$  sous-estime toujours la température moyenne  $T_m$ , ce qui indique que le centre de la goutte influence de manière très significative la mesure de température d'une goutte en échauffement. A partir de plusieurs cas tests comme ceux présentés sur la figure 4.16, il est possible d'établir de façon approchée :

$$T_{LIF} \approx (T_c + T_m) / 2 \quad (4.26)$$

Cette température sera utilisée dans les futures comparaisons qui seront réalisées entre les simulations numériques et les expériences.

## 2.4. Résolution du problème inverse

Le problème inverse consiste à déterminer les paramètres  $\eta_T = Nu / Nu_{iso}$  et  $\eta_M = Sh / Sh_{iso}$  permettant de retrouver par la méthode « directe » les évolutions expérimentales de la taille et de la température des gouttes. Par la suite, on utilise la même notation que pour le résolution du problème direct. Ainsi, on désigne par  $T_{m,i}$ ,  $D_i$  et  $V_i$  la température moyenne, la taille et la vitesse de la goutte évaluées à l'instant  $t_i$ .

## Description du modèle d'inversion

Dans un premier temps, une interpolation des points de mesure permet de déterminer les paramètres cibles de l'inversion à savoir la température  $T_{exp,i+1}$ , le diamètre  $D_{exp,i+1}$  et la vitesse  $V_{exp,i+1}$  de l'expérience à l'instant  $t_{i+1}$ . Le choix de la méthode d'interpolation s'est porté sur l'interpolation par spline cubique qui permet d'éviter le phénomène de Runge qui se manifeste dans l'interpolation polynomiale et qui est particulièrement préjudiciable à la qualité de l'inversion. Un lissage des données est également pratiqué afin de limiter les erreurs d'inversion, dont l'intérêt sera illustré par la suite. Les principales étapes de l'algorithme d'inversion sont présentées sur la Figure 4.19. Beaucoup sont communes au problème « direct ».

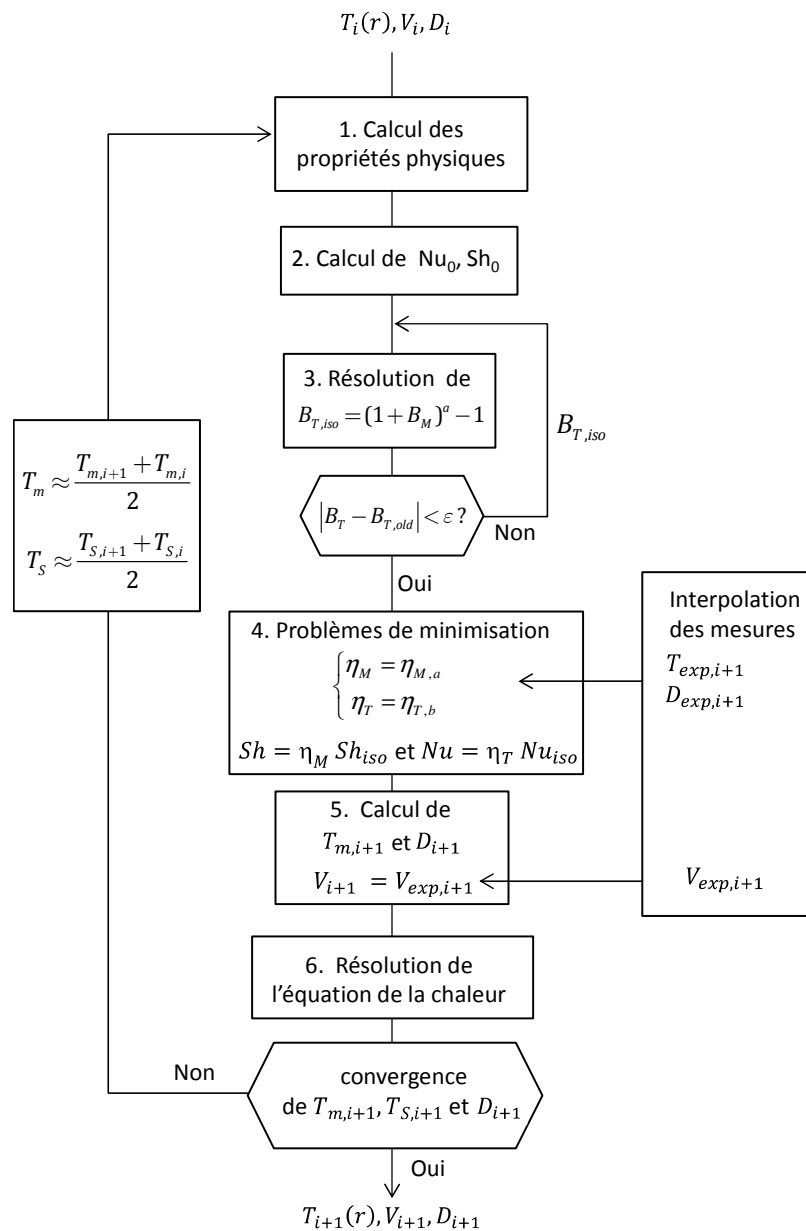


Figure 4.19 : Algorithmes adoptés pour la résolution du problème inverse.

L'inversion peut se résumer à la résolution d'un double problème de minimisation :

- a- La recherche du couple  $(\eta_{T,a}, \eta_{M,a})$  minimisant l'écart  $|D_{i+1} - D_{exp,i+1}|$  à l'instant  $t_{i+1}$ .
- b- La recherche du couple  $(\eta_{T,b}, \eta_{M,b})$  minimisant l'écart  $|T_{LIF,i+1} - T_{exp,i+1}|$  à l'instant  $t_{i+1}$ .  
La température  $T_{LIF}$ , calculée à partir de la simulation, tient compte des caractéristiques du système de mesure (voir paragraphe précédent).

La méthode utilisée pour déterminer les solutions de  $a$  et  $b$  consiste à tester un grand nombre de couples  $(\eta_M, \eta_T)$ , typiquement  $200 \times 200$  valeurs de  $\eta_T$  et  $\eta_M$  comprises entre 0 et 2. Pour chacun de ces couples, les étapes 4, 5 et 6 de l'algorithme du problème direct sont mises en œuvre. Parmi les cas testés, les deux couples minimisant  $|D_{i+1} - D_{exp,i+1}|$  ou  $|T_{LIF,i+1} - T_{exp,i+1}|$  sont identifiés. Ils sont solutions approchées des problèmes de minimisation  $a$  et  $b$ .

Finalement, pour l'inversion, posons :

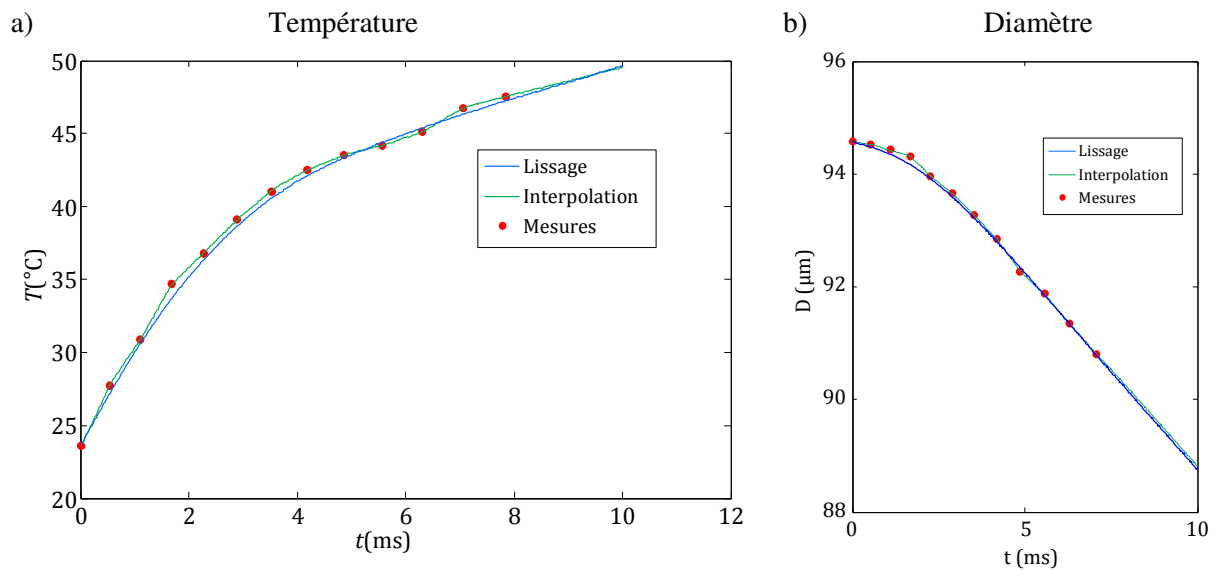
$$\begin{cases} \eta_M = \eta_{M,a} \\ \eta_T = \eta_{T,b} \end{cases} \quad (4.27)$$

En toute rigueur, ce choix ne garantit pas d'atteindre exactement les valeurs cibles à  $t_{i+1}$ . En fait, il s'agit d'un compromis entre le suivi de la taille et de la température. L'algorithme impose également  $V_{i+1} = V_{exp,i+1}$  à l'étape 5 et la résolution se déroule pour le reste de façon identique au problème direct (Figure 4.19).

## Bruit et stabilité de l'inversion

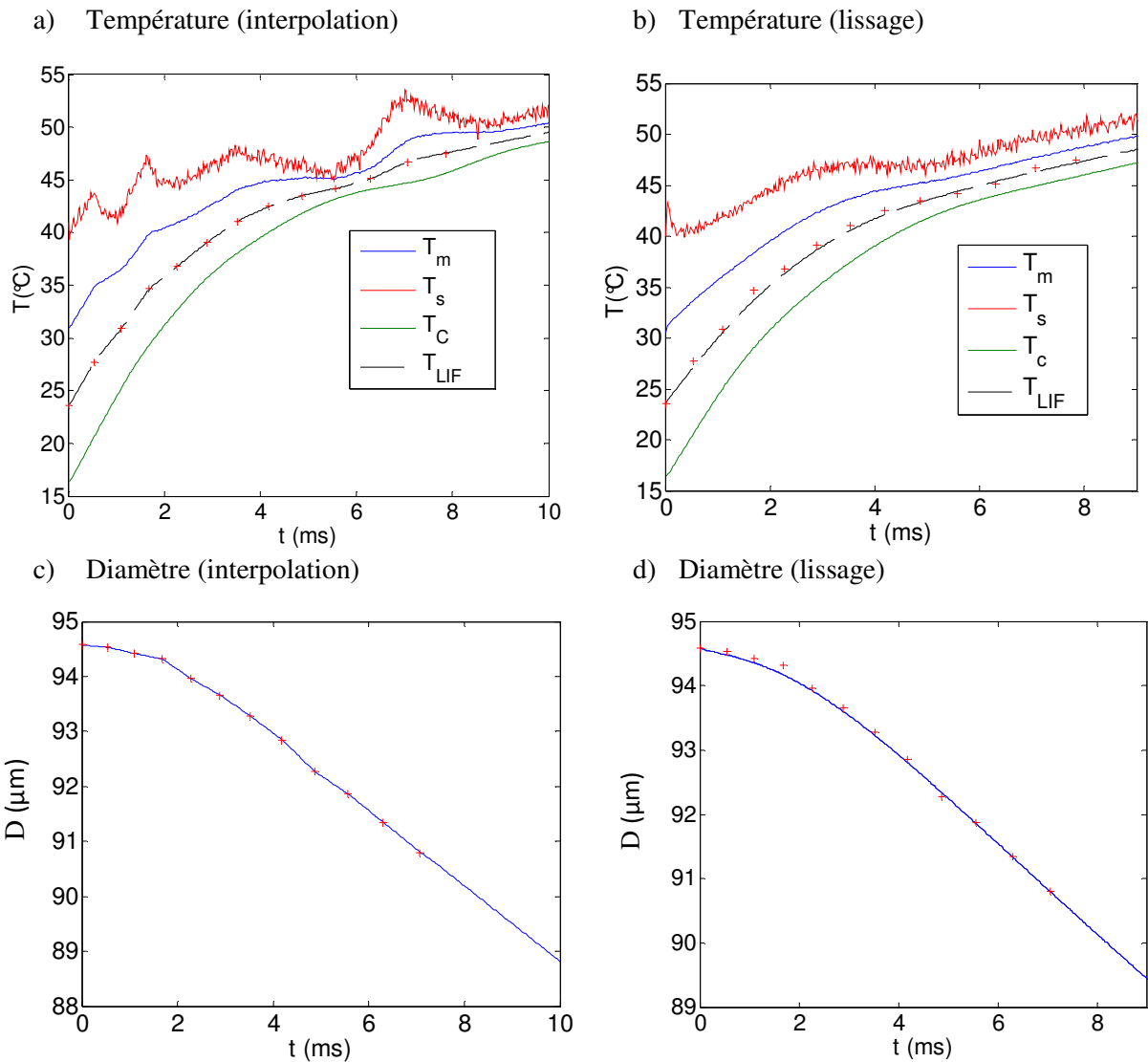
La méthode d'inversion décrite précédemment a été testée sur plusieurs jets de gouttes monodisperse. Sa mise en œuvre s'est avérée délicate du fait de la sensibilité de l'inversion au bruit et aux erreurs de mesures inhérents aux paramètres cibles de l'inversion ( $T_{exp}$ ,  $D_{exp}$  et  $V_{exp}$ ). Pour illustrer ce comportement, l'exemple d'un jet d'éthanol (Ethanol 2) a été retenu.

La Figure 4.20 montre des profils de température et de diamètre qui s'appuient sur les mêmes points expérimentaux. Les courbes vertes sont obtenues grâce à l'interpolation par spline cubique. Les courbes bleues correspondent à des profils approchés, qui ne passent pas par tous les points de mesure, mais plus lisses. Ces courbes ont été réalisées par un filtre à moyenne glissante pour le lissage. On notera que les écarts entre les deux types de profil (interpolé et lissé) restent inférieurs ou comparables aux incertitudes de mesure.



**Figure 4.20 :** profils de température et de diamètre utilisés pour l'inversion (lissage et interpolation). Cas d'un jet d'éthanol (Ethanol 2).

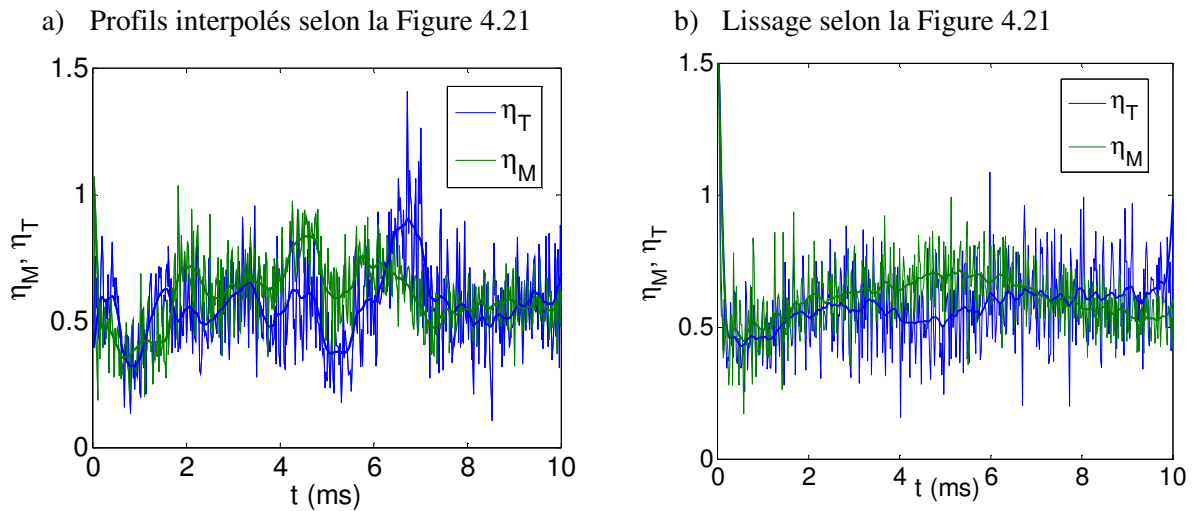
Les évolutions de la température et de la taille des gouttes calculées par le programme d'inversion en même temps que  $\eta_T$  et  $\eta_M$  sont représentées à la Figure 4.21. On vérifie bien que les valeurs calculées sont identiques aux données de départ, ce qui justifie le choix de (4.27). Cependant, on remarque qu'un bruit non-négligeable (de l'ordre de 1°C) affecte la température de surface quel que soit le type de traitement choisi pour les données expérimentales  $T_{exp}$ . Dans le cas de l'interpolation par spline cubique, la température de surface est sujette à des fluctuations d'amplitude non-négligeables qui semblent assez peu physiques (Figure 4.21-a). Ainsi,  $T_s$  augmente puis diminue de plusieurs degrés et dépasse même par moment la température d'équilibre de l'éthanol proche de 51°C pour une température ambiante de 540°C. Ce comportement de  $T_s$  est la conséquence du bruit et des erreurs qui perturbent les grandeurs expérimentales ( $T_{exp}$  et  $D_{exp}$ ). Le lissage permet de gommer partiellement les fluctuations de  $T_s$ , mais une erreur est néanmoins commise puisque les profils lissés de la Figure 4.20 sont des approximations construites en s'écartant des points de mesure.



**Figure 4.21 :** Température et diamètre recalculées par le programme d'inversion. Cas du jet de gouttes monodisperse de la Figure 4.20.

Les évolutions temporelles de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  déterminées par l'inversion sont présentées à la Figure 4.22. Le bruit d'inversion est encore plus marqué que pour la température de surface (Figure 4.21). En se basant sur l'écart-type, ce bruit peut être estimé à 0,15 ce qui représente à peu près 25% de la valeur de  $\eta_M$  et  $\eta_T$ . Dans le cas des profils interpolés (Figure 4.22-a), s'ajoutent au bruit d'inversion des fluctuations de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  qui sont à mettre en lien avec les variations de  $T_s$  observées sur la Figure 4.21-a. Ainsi, les valeurs de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  obtenues par l'inversion sont dépendantes du conditionnement des données expérimentales (type de lissage, méthode d'interpolation,...) en plus du bruit et des erreurs de mesure. De ce fait, il convient plutôt de s'attacher à la valeur moyenne prise par ces paramètres plutôt que de s'attacher à leurs fluctuations. Il est ainsi particulièrement intéressant de constater que  $\eta_M$  et  $\eta_T$  ont des valeurs moyennes très proches sur l'intervalle [0 - 10 ms] quel que soit le profil considéré (lissage ou interpolation), pour le cas considéré :

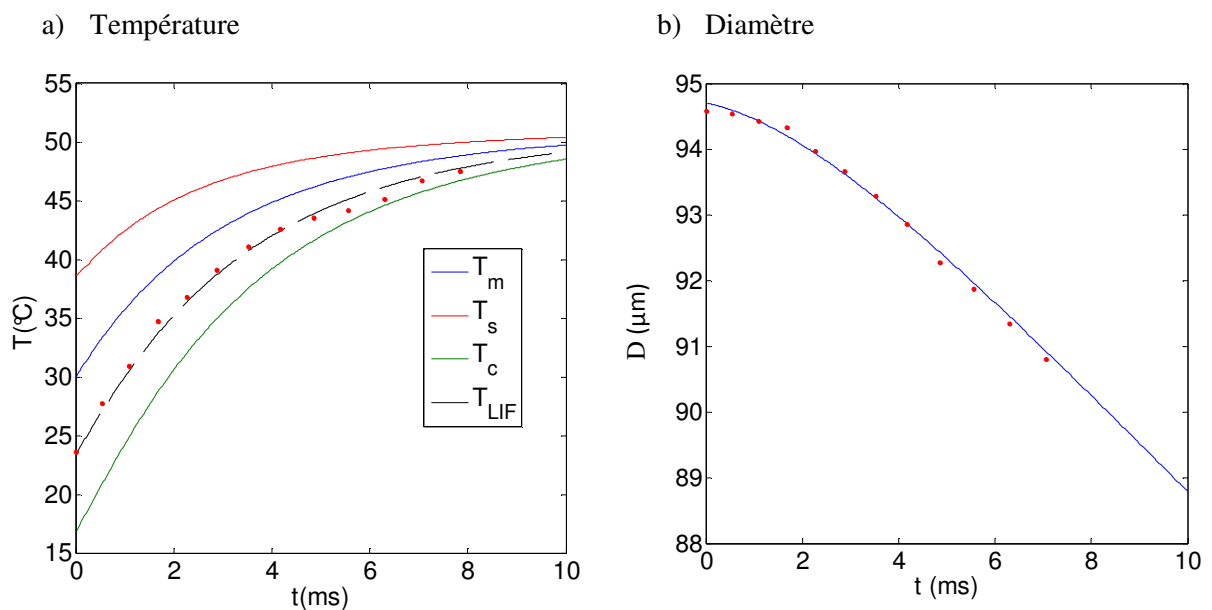
- pour l'interpolation de spline cubique :  $\eta_M=0,596$ ,  $\eta_T=0,562$
- pour les profils lissés  $\eta_M=0,608$ ,  $\eta_T=0,574$ .



**Figure 4.22 :** Estimation de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  par le modèle d'inversion. Cas du jet d'éthanol de la Figure 4.21.

### Ajustement des paramètres $\eta_M$ et $\eta_T$ par des constantes

Les valeurs moyennes de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  estimées à partir du modèle d'inversion, ici  $\eta_M=0,6$  et  $\eta_T=0,57$ , peuvent être utilisées pour résoudre le problème direct. Le diamètre et la température ainsi obtenus sont représentés sur la Figure 4.23. L'écart entre les points expérimentaux et la simulation numérique est particulièrement faible. Ainsi, il paraît acceptable de rechercher  $\eta_M$  et  $\eta_T$  sous la forme de deux constantes. La pertinence d'une telle approche a été vérifiée dans une très grande majorité des cas étudiés. La recherche de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  constants peut s'appuyer sur la solution du problème inverse, ou bien elle peut être réalisée directement par la recherche du couple  $(\eta_M, \eta_T)$  qui minimise l'écart au sens des moindres carrés entre les mesures et la solution du problème direct.



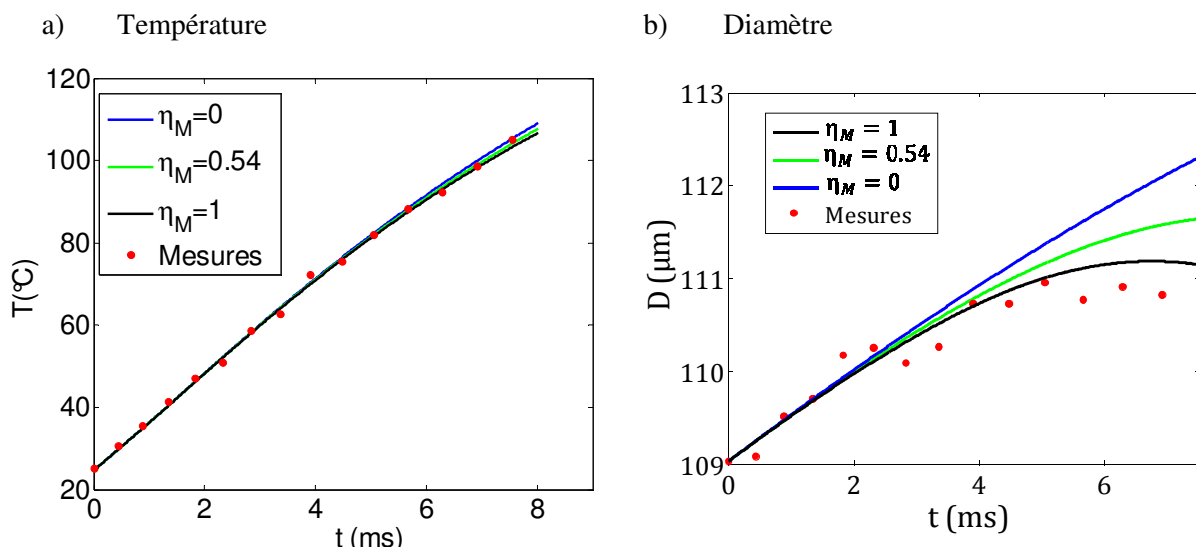
**Figure 4.23 :** Température et diamètre calculés par l'approche directe en supposant  $\eta_M=0,6$  et  $\eta_T=0,57$ . Cas du jet d'éthanol de la Figure 4.20.

## Précision de l'estimation des paramètres $\eta_M$ et $\eta_T$

Une question importante concerne la précision avec laquelle peuvent être estimés les paramètres  $\eta_M$  et  $\eta_T$ . Pour répondre à cette question, une étude de sensibilité a été réalisée en faisant varier  $\eta_M$  et  $\eta_T$  autour des valeurs retenues pour leurs ajustements. Pour illustrer les résultats de cette étude, trois situations sont considérées : le cas d'une goutte en situation de faible évaporation, celui d'une goutte à l'équilibre thermique et une situation intermédiaire où échauffement et évaporation jouent tout deux un rôle significatif.

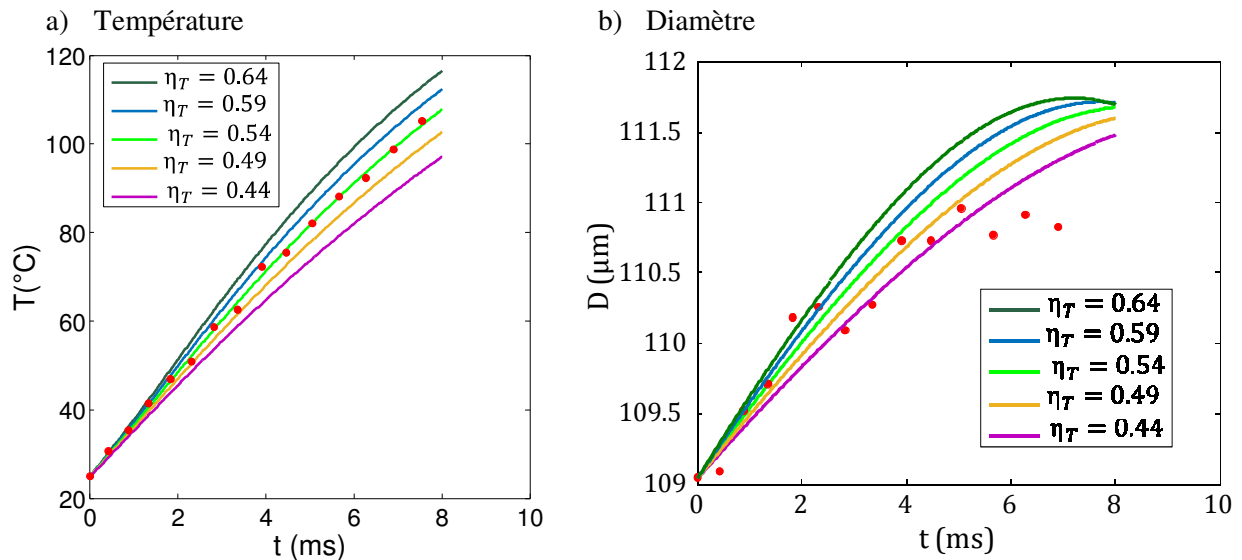
### ▪ Cas d'une goutte en faible évaporation

Cette situation est rencontrée dans le cas de gouttelettes constituées de composants peu volatiles comme le n-dodécane injecté à une température modérée. Une dizaine de cas expérimentaux parmi ceux qui ont été étudiés entrent dans cette catégorie. Les Figure 4.24 et Figure 4.25 font références à un jet de gouttes de n-dodécane injecté à la température de 13°C et dont le premier point de mesure dans l'enceinte correspond à une température mesurée par 2cLIF de 33°C. Pour ce cas, l'ajustement qui a été retenu est  $\eta_M=0,54$  et  $\eta_T=0,54$ . La Figure 4.24 met en évidence une influence négligeable de  $\eta_M$  sur l'échauffement de la goutte. Pour ces gouttes qui s'évaporent peu, faire varier le nombre de Sherwood a très peu d'effet sur l'échauffement. Il n'en est pas de même pour le nombre de Nusselt comme le montre la figure 4.25. L'incertitude sur l'ajustement de  $\eta_T$  peut être évaluée à environ 0,05.



**Figure 4.24 :** Sensibilité de la variation de taille et de température au paramètre  $\eta_M$  pour une valeur de  $\eta_T$  fixée à 0,54. Cas d'un jet de gouttes de n-dodécane en échauffement.



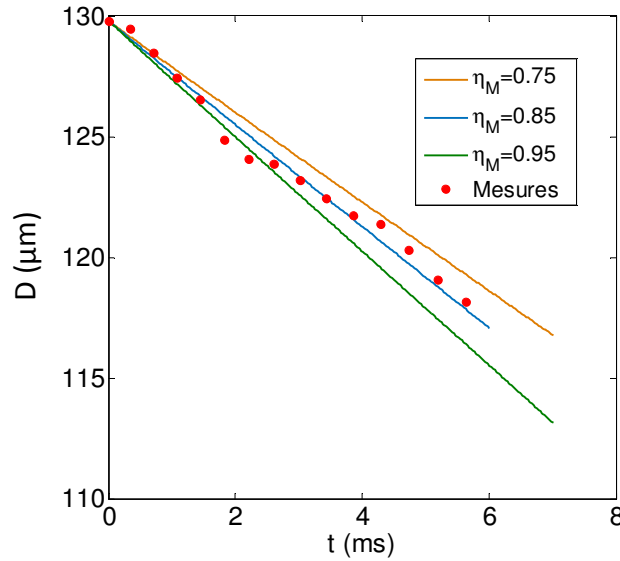


**Figure 4.25 :** Sensibilité de la variation de taille et de température au paramètre  $\eta_T$  pour une valeur de  $\eta_M$  fixée à 0,54. Cas d'un jet de gouttes de n-dodécane en échauffement.

Les variations de la taille des gouttes étant essentiellement le résultat de la dilatation thermique, les mesures de diamètre ne permettent pas réellement de déterminer de  $\eta_M$ . L'incertitude sur  $\eta_M$  est donc importante. Toutefois, on peut constater sur la Figure 4.24-b que la prise en compte de l'évaporation ( $\eta_M > 0$ ) est nécessaire pour obtenir un meilleur accord entre les mesures de taille et les simulations.

▪ **Cas d'une goutte à l'équilibre thermique**

La température des gouttes à l'équilibre thermique est le résultat d'un équilibre entre le flux de chaleur échangé par convection avec le milieu ambiant et le flux de chaleur prélevé pour l'évaporation. L'exemple considéré est celui d'un jet de gouttes de n-dodécane injecté à 170°C, cette température étant à peu près égale à la température d'équilibre déterminée expérimentalement dans l'air à 540°C. Les gouttes de ce jet sont particulièrement écartées ( $C=10,1$ ) et de ce fait les valeurs ajustées  $\eta_M=0,85$  et  $\eta_T=0,85$  sont proches de 1. D'après la Figure 4.26, le paramètre  $\eta_M$  a une influence non-négligeable sur les variations de la taille des gouttes. Typiquement,  $\eta_M$  peut être estimé avec une incertitude de l'ordre de 0,05.

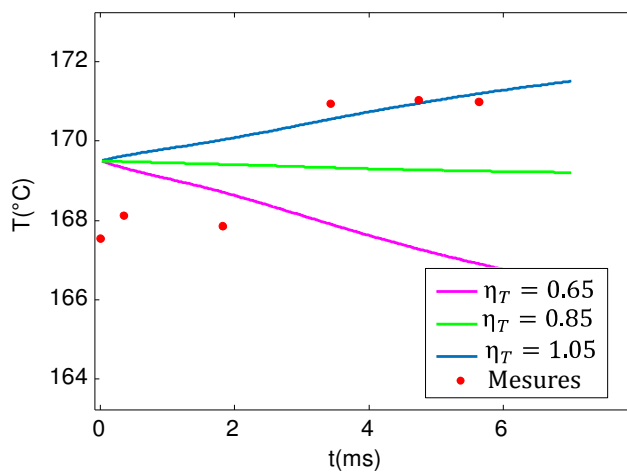


**Figure 4.26 :** Influence de  $\eta_M$  sur le taux d'évaporation pour une valeur de  $\eta_T$  fixée à 0,85. Cas de gouttes de *n*-dodécane à l'équilibre thermique.

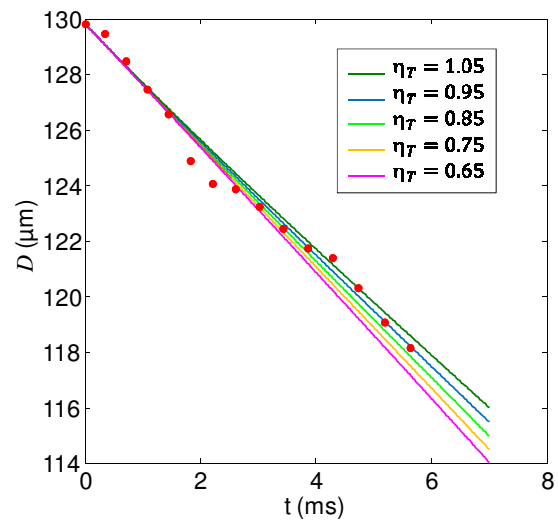
Pour une valeur de  $\eta_M$  fixée, le paramètre  $\eta_T$  modifie la température d'équilibre  $T_{\acute{e}q}$  des gouttes, cette dernière étant solution de l'équation **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** :

$$Nu B_T = Le \frac{Cp_g}{Cp_v} Sh B_M \quad (4.28)$$

avec  $B_T = Cp_v(T_{amb} - T_{\acute{e}q})/L_v$  et  $B_M = Y_s(T_{\acute{e}q})/(1 - Y_s(T_{\acute{e}q}))$ . Les calculs indiquent que la température d'équilibre vaut 169,2°C pour  $\eta_T = 0,85$ , 173°C pour  $\eta_T = 1,05$ , et 164,5°C pour  $\eta_T = 0,65$ . Ainsi, il peut être observé sur la figure 4.27 que les gouttes s'échauffent ou se refroidissent de quelques degrés selon la valeur imposée au paramètre  $\eta_T$ . Mais néanmoins, la sensibilité à  $\eta_T$  reste relativement faible. Une variation de  $\pm 0,2$  sur  $\eta_T$  se traduit par une différence de 1°C-2°C sur la température  $T_{LIF}$ , ce qui est du même ordre de grandeur que l'incertitude de mesure. L'effet de  $\eta_T$  sur la réduction de la taille des gouttes est également faible sans être tout à fait négligeable (Figure 4.26).



**Figure 4.27:** Influence de  $\eta_T$  sur la température des gouttes pour une valeur de  $\eta_M$  fixée à 0,85. Cas du jet de la Figure 4.26.

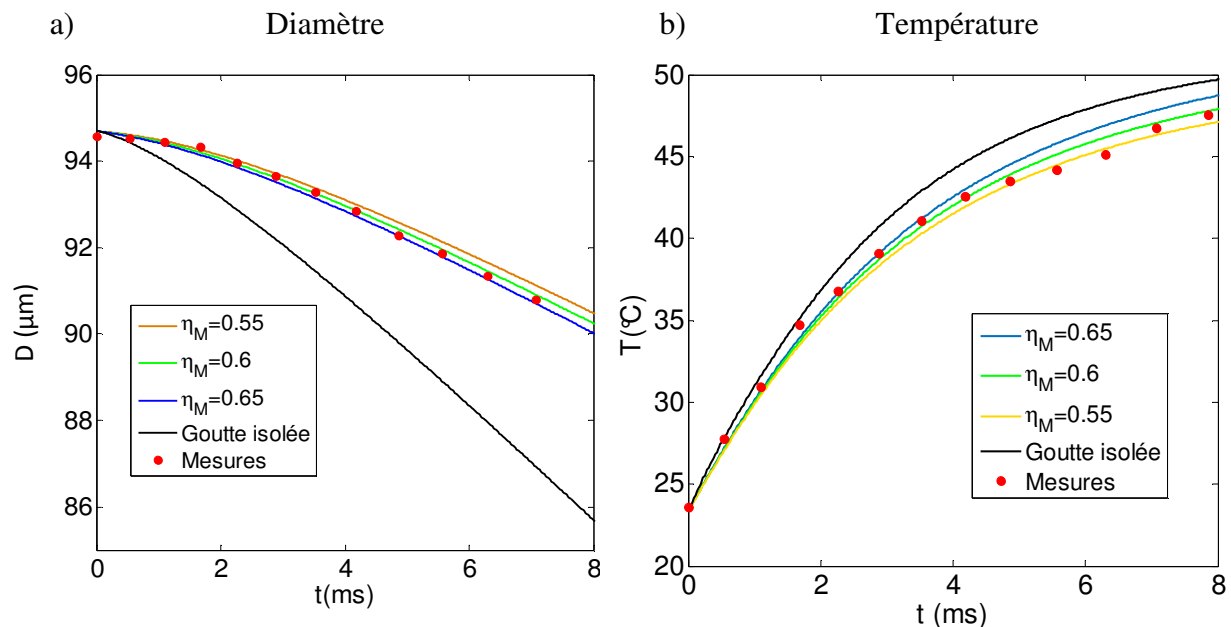


**Figure 4.28 :** Influence de  $\eta_T$  sur l'évolution de la taille des gouttes pour une valeur de  $\eta_M$  fixée à 0,85. Cas du jet de la Figure 4.26.

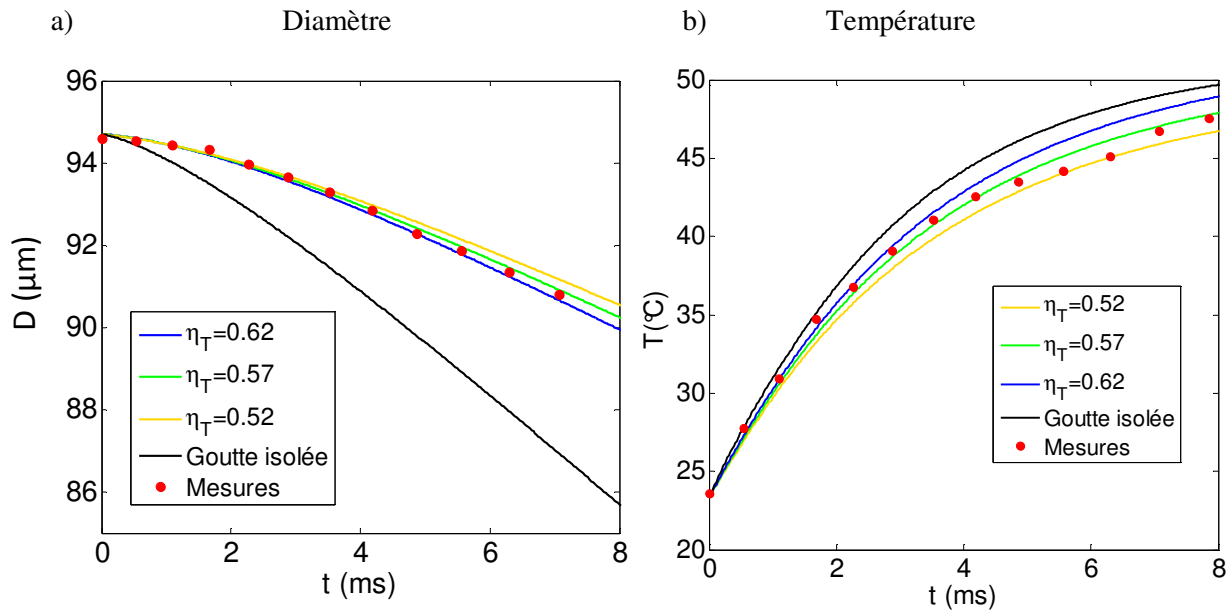
Sur l'ensemble des expériences réalisées (incluant le n-dodécane, l'éthanol et l'isohexane), la température d'équilibre ne semble pas dépendre des conditions d'injections en particulier l'écartement des gouttes. Sa valeur est systématiquement très proche de celle prédite pour la goutte isolée. De ce fait, d'après (4.28), l'hypothèse la plus plausible est que  $\eta_T = \eta_M$ , ce qui signifie concrètement que les nombres de Nusselt et de Sherwood seraient influencés de façon similaire par les effets d'interactions aérodynamiques. L'idée d'une analogie entre les transferts thermique et massique se trouve renforcée par le fait que le nombre de Lewis reste proche de 1 dans les gaz.

▪ **Cas d'une goutte en échauffement et en évaporation intense**

Le jet de goutte d'éthanol de la Figure 4.23 illustre clairement cette situation. Dans cet exemple, les ajustements ont permis d'établir  $\eta_T = 0,57$  et  $\eta_M = 0,6$  qui sont des valeurs très proches. Les figures 4.29 et 4.30 montrent l'effet d'une variation de  $\eta_T$  à  $\eta_M$  fixé et inversement. On constate que la taille et la température des gouttes présentent des sensibilités comparables à ces deux paramètres. L'incertitude est d'environ 0,05 pour  $\eta_M$  et  $\eta_T$  lorsque ces deux paramètres sont considérés séparément. Toutefois, l'erreur commise sur  $\eta_T$  se reporte sur  $\eta_M$  et vice versa, car elles sont intrinsèquement liées. Par exemple, si le paramètre  $\eta_T$  est surestimé,  $\eta_M$  devra être sous-estimée pour compenser l'évaporation supplémentaire induite par un échauffement de la goutte trop élevé. En général,  $\eta_T$  et  $\eta_M$  prennent de valeurs proches ce qui permet de retrouver aux temps longs la même température d'équilibre que la goutte isolée.



**Figure 4.29 :** Influence de  $\eta_M$  sur la taille et la température des gouttes pour une valeur de  $\eta_T$  fixée à 0,57. Cas du jet de gouttes d'éthanol en échauffement et en évaporation de la Figure 4.23.



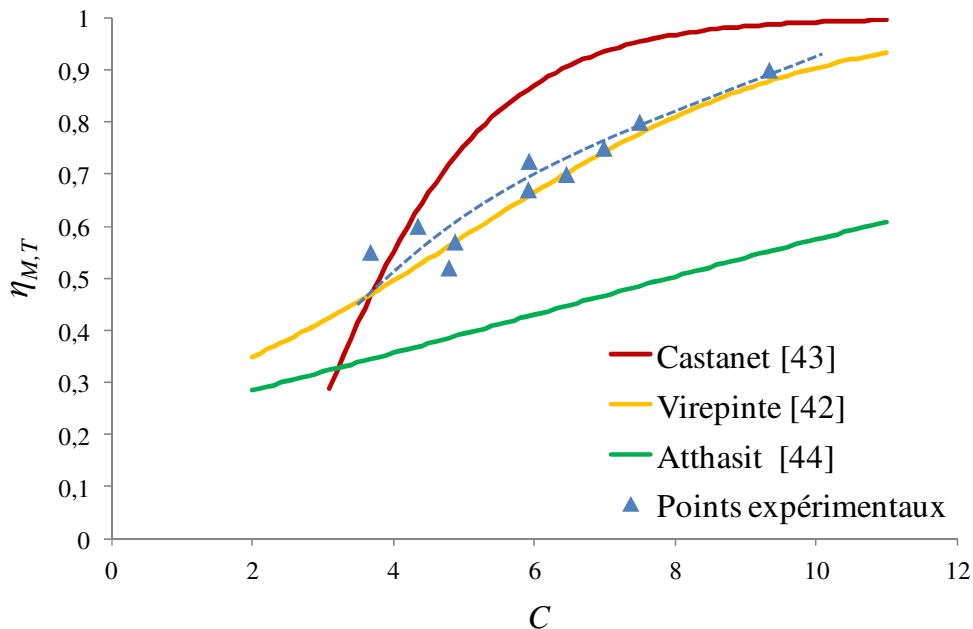
**Figure 4.30 :** Influence de  $\eta_T$  sur la taille et la température des gouttes d'un jet de gouttes d'éthanol en échauffement et en évaporation pour une valeur de  $\eta_M$  fixée à 0,85. Cas du jet d'éthanol en échauffement et en évaporation de la Figure 4.23.

### 3. Comparaison des résultats expérimentaux aux modèles existants

L'effet des interactions entre les gouttes sur les transferts de chaleur et de masse a été évalué à partir de  $\eta_M$  et de  $\eta_T$  grâce la méthode d'estimation décrite précédemment (problème inverse). Les données obtenues à partir des nombreux cas expérimentaux permettent de mettre en évidence l'influence de plusieurs paramètres aérothermiques. Quantifier l'effet des différents paramètres intervenant dans les effets d'interaction est un véritable défi du fait de leur nombre et des difficultés qu'il y a expérimentalement à découpler leur influence. Les contraintes expérimentales, liées notamment au dispositif d'injection, restreignent l'amplitude de variation de la vitesse, de la taille et de l'espacement des gouttes. La plupart des mesures étant réalisée avec le même orifice d'injection pour une même pression d'injection, le paramètre de distance et la taille des gouttes sont reliées par l'expression  $D_0^3/C_0 = Cte$ , où  $Cte$  est une constante directement liée au débit volumique de l'injecteur. Ce couplage entre  $C_0$  et  $D_0$  n'est pas sans poser des difficultés pour interpréter certains résultats qui seront présentés. Comme évoqué précédemment, les données expérimentales plaident en faveur d'une égalité entre les paramètres  $\eta_M$  et  $\eta_T$ . Ceci peut s'expliquer par l'analogie qu'il y a entre les transferts de chaleur et de masse. Le choix a donc été fait de ne pas distinguer  $\eta_M$  de  $\eta_T$ . On posera par la suite  $\eta = \eta_M = \eta_T$ .

### 3.1. Influence du paramètre de distance

Le paramètre de distance  $C$  est de loin le paramètre qui a fait l'objet du plus grand nombre d'études par le passé. La plupart des corrélations rappelées au chapitre 1 sont issues d'expériences dans lesquels l'écartement des gouttes était le principal paramètre d'étude. La Figure 4.31 représente des valeurs ajustées de  $\eta_M$  et  $\eta_T$  en fonction de  $C$  obtenues pour des jets de gouttes monodisperse d'éthanol. Comme attendu, plus les gouttes sont écartées, plus les paramètres  $\eta_M$  et  $\eta_T$  sont élevés et se rapprochent de 1 (cas de la goutte isolée). En principe,  $\eta$  doit tendre asymptotiquement vers 1 quand  $C$  devient grand. La présence d'une telle asymptote ne peut pas être attestée sur la seule base des points expérimentaux de la Figure 4.31 limités à  $C < 12$ . La comparaison aux principales corrélations existantes montre que les résultats expérimentaux sont en assez bon accord avec ceux de Castanet et al. [62] et de Virepinte et al. [43] établis dans le cas de gouttes d'éthanol en évaporation dans une flamme, pour laquelle la technique DRASC indique une température ambiante d'environ  $1000^\circ\text{C}$  à proximité du jet de gouttes. L'écart est en revanche plus important avec la corrélation d'Atthasit et al. [45] obtenue à partir de gouttes d'éthanol évoluant dans le panache thermique d'une paroi verticale chauffée, la température ambiante dans ces expériences est nettement plus basse que dans une flamme même si elle est difficile à déterminer du fait des forts gradients thermiques près de la paroi. Le paramètre de distance  $C$  n'étant pas le seul à intervenir dans les effets des interactions sur le transfert de chaleur et de masse, comme nous verrons par la suite, la comparaison à des corrélations fonction de  $C$  uniquement appelle à la prudence. S'il s'agit bien de gouttes d'éthanol dans toutes ces études, la vitesse des gouttes et la température ambiante, varient largement entre les expériences ayant servies à établir ces corrélations.



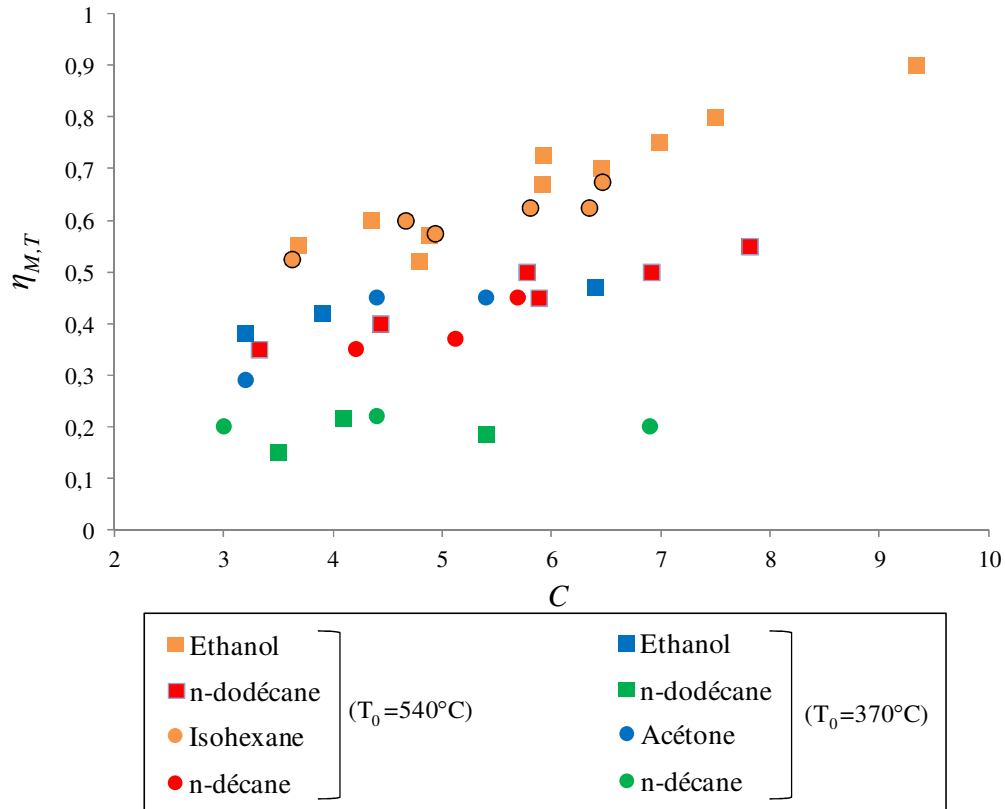
**Figure 4.31 :** Influence du paramètre de distance sur la réduction des nombres de Nusselt et de Sherwood en présence d'effets d'interaction dans des jets de gouttes monodisperse. Cas de gouttes d'éthanol avec  $14 < Re < 24$  pour les points expérimentaux.

### 3.2. Influence de la température ambiante

L'influence de la température ambiante sur les effets d'interaction n'a jamais été approfondie. Grâce à une température ambiante plus élevée ( $T_{amb}=540^{\circ}\text{C}$ ), cette étude complète utilement les travaux de Deprédurand limités à  $370^{\circ}\text{C}$ . La comparaison des résultats de ces deux études apporte des informations sur l'effet de  $T_{amb}$ . Comme le montre la Figure 4.32, le passage de  $370^{\circ}\text{C}$  à  $540^{\circ}\text{C}$  se traduit par une diminution des effets d'interactions, c'est-à-dire une augmentation de  $\eta$ . L'effet d'une telle hausse de  $T_{amb}$  est visible aussi bien pour des espèces très volatiles (éthanol, isohexane, acétone) que des espèces peu volatiles (n-dodécane et n-décane injectées vers  $20^{\circ}\text{C}$ ). Dans les deux cas,  $\eta$  augmente d'environ 0,2. Les couleurs adoptées sur la Figure 4.32 suggèrent un regroupement possible des points expérimentaux en quatre catégories se distinguant essentiellement par la volatilité du liquide :

- Orange : liquides très volatiles (éthanol, isohexane) dans l'air à  $T_{amb} = 540^{\circ}\text{C}$ .  
 $0,5 \text{ m.s}^{-1} < V_{stef}/V_0 < 0,8 \text{ m.s}^{-1}$  et  $4\% < V_{stef}/V_0 < 6\%$  ( $16 < Re < 39$ )
- Bleu : liquides très volatiles (éthanol, acétone) dans l'air à  $T_{amb} = 370^{\circ}\text{C}$ .  
 $0,07 \text{ m.s}^{-1} < V_{stef}/V_0 < 0,12 \text{ m.s}^{-1}$  et  $0,8\% < V_{stef}/V_0 < 1,5\%$
- Rouge : liquides peu volatiles dans l'air à  $T_{amb} = 540^{\circ}\text{C}$ .  
 $V_{stef} \sim 0,02 \text{ m.s}^{-1}$  et  $V_{stef}/V_0 \sim 0,2\%$  ( $14 < Re < 40$ )
- Vert : liquides peu volatiles dans l'air à  $T_{amb} = 370^{\circ}\text{C}$ .  
 $V_{stef} \sim 0,001 \text{ m.s}^{-1}$  et  $V_{stef}/V_0 < 0,01\%$

Les vitesses de l'écoulement de Stefan sont données à titre indicatif. Elles sont déterminées à partir du taux d'évaporation des gouttes, lui même calculé à partir des simulations ayant servies à déterminer  $\eta_M$  et  $\eta_T$ . L'intérêt d'utiliser la vitesse Stefan pour décrire l'effet des interactions sur les transferts de chaleur et de matière a déjà été montré par Deprédurand et al. [17]. Dans cette étude, la vitesse de l'écoulement de Stefan est utilisée pour estimer le temps caractéristique du transport (d'espèce et de chaleur) à travers le film introduit par Abramzon et Sirignano. La corrélation (1.110), qui découle de l'utilisation de ce temps et des données expérimentales de Deprédurand, ne permet pas cependant pas de rassembler les points de la Figure 4.32. De façon plus simple, la vitesse de l'écoulement de Stefan sera ici adimensionnée par la vitesse initiale des gouttes  $V_0$ . Aussi pertinents qu'ils puissent être, les paramètres  $V_{stef}/V_0$  et  $C$  ne sont peut-être pas suffisants pour décrire les effets d'interactions. Dans le cas des liquides peu volatiles, il semble assez difficile d'expliquer la nette augmentation de  $\eta$  entre  $370^{\circ}\text{C}$  à  $540^{\circ}\text{C}$  alors que la vitesse de l'écoulement de Stefan est pratiquement nulle pour ces deux températures ambiantes.



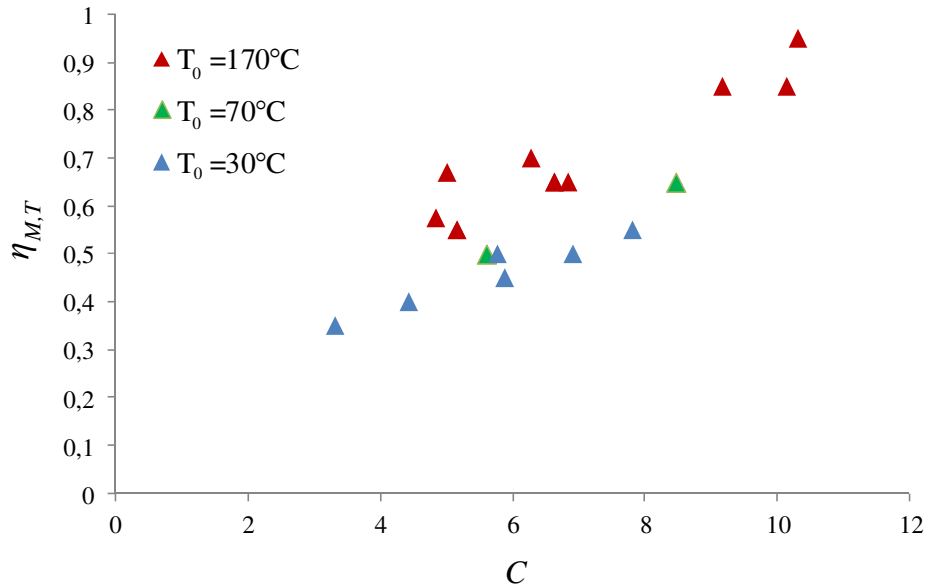
**Figure 4.32 :** Influence de la température ambiante sur la réduction des nombres de Nusselt et de Sherwood en présence d’effets d’interaction dans des jets monodisperse.

### 3.3. Influence de la température d’injection

Afin de confirmer un effet de la volatilité du liquide, des tests supplémentaires ont été réalisés sur des gouttes de n-dodécane en faisant varier la température d’injection. Pour ces tests, on a :

- Pour  $20^{\circ}\text{C} < T_0 < 40^{\circ}\text{C}$  ( $24 < Re < 39$ ) :  $V_{stef}/V_0 \sim 0,1\%$
- Pour  $T_0 \sim 70^{\circ}\text{C}$  ( $24 < Re < 29$ ) :  $V_{stef}/V_0 \sim 1\%$
- Pour  $T_0 \sim 170^{\circ}\text{C}$  ( $24 < Re < 39$ ) :  $V_{stef}/V_0 \sim 5\%$

La Figure 4.33 révèle que le paramètre  $\eta$  augmente avec la température d’injection des gouttes et par suite avec la vitesse réduite  $V_{stef}/V_0$ . D’autre part, la sensibilité du paramètre  $\eta$  à  $V_{stef}/V_0$  semble à peu près la même que celle observée sur la Figure 4.32.



**Figure 4.33 :** Influence de la température d'injection des gouttes sur la réduction des nombres de Nusselt et de Sherwood en présence d'effets d'interaction. Cas de gouttes de n-dodécane.

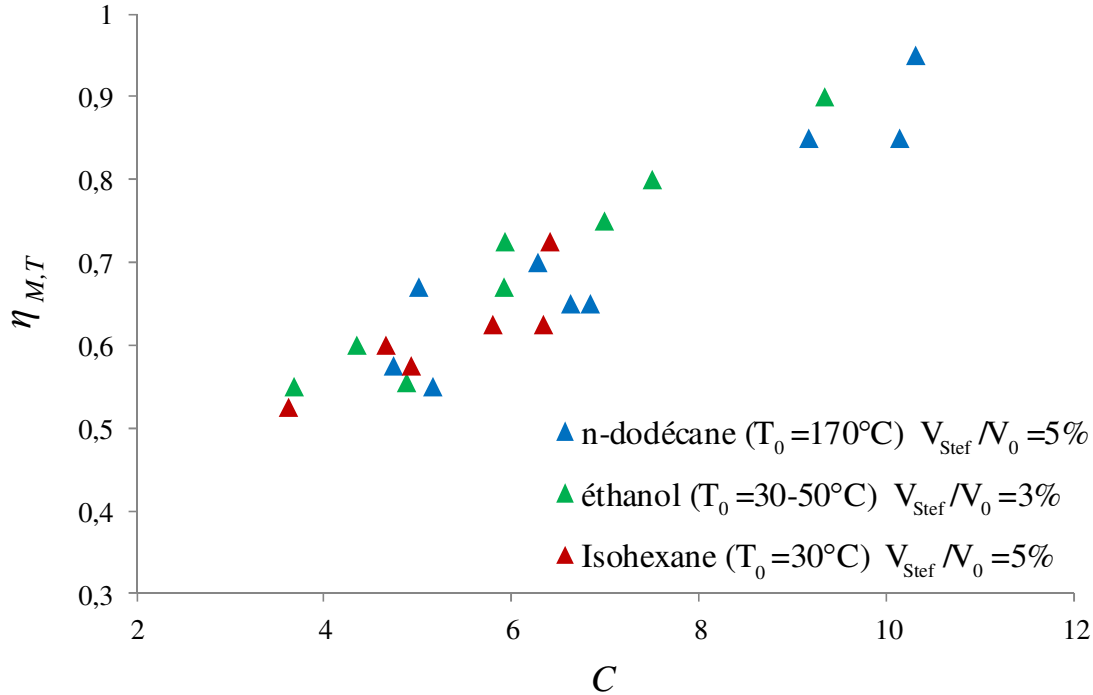
### 3.4. Comparaison des effets d'interaction pour des liquides de volatilité voisine

Une autre vérification de l'effet de la volatilité est de comparer les effets d'interaction pour des gouttes de liquide ayant une même vitesse de Stefan réduite. A l'équilibre thermique et pour  $T_{\text{amb}} = 540^\circ\text{C}$ , le taux d'évaporation des gouttes de n-dodécane est très proche de celui de gouttes d'isohexane, ce qui permet d'obtenir des valeurs comparables pour la vitesse réduite  $V_{\text{stef}}/V_0$ . Les points représentés sur la Figure 4.34 correspondent à trois liquides:

- n-dodécane ( $T_0=170^\circ\text{C}$  et  $24 < Re < 39$ ) :  $V_{\text{stef}}/V_0 \sim 5\%$
- isohexane ( $T_0 \sim 30^\circ\text{C}$  et  $16 < Re < 39$ ) :  $V_{\text{stef}}/V_0 \sim 5-6\%$
- éthanol ( $T_0 \sim 50^\circ\text{C}$  et  $23 < Re < 34$ ) :  $V_{\text{stef}}/V_0 \sim 3-4\%$

Sur la Figure 4.34, on vérifie bien que les valeurs de  $\eta$  sont relativement bien regroupées aux incertitudes près, de l'ordre de 0,05. L'éthanol, pourtant légèrement moins volatile, ne se distingue pas des autres composants.



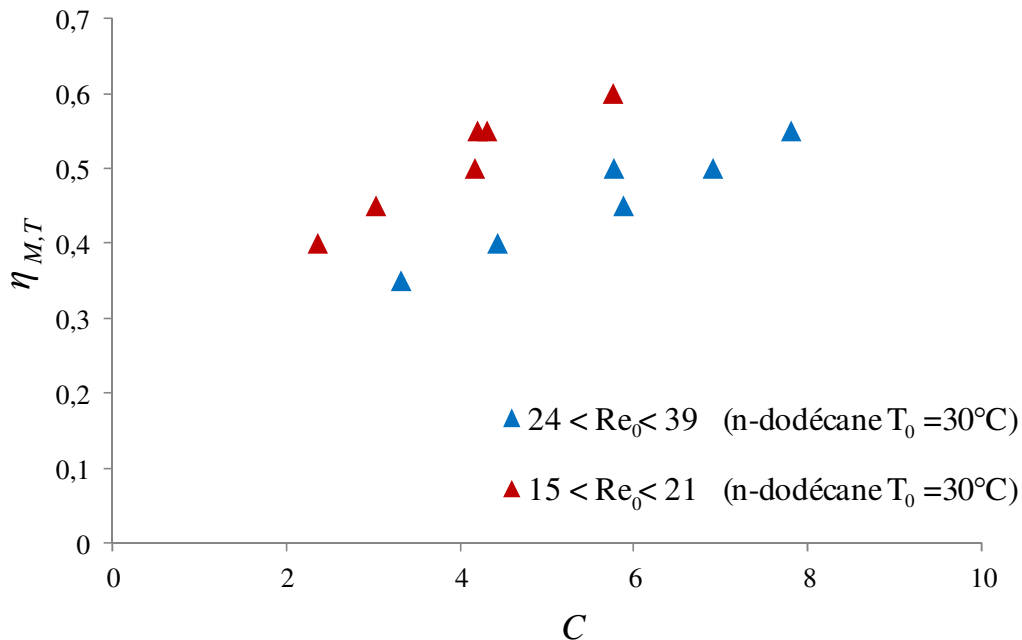


**Figure 4.34 :** Comparaison des effets d'interactions sur les transferts de chaleur et de masse dans le cas de gouttes de volatilité sensiblement identiques.

### 3.5. Influence de la vitesse d'injection

Les mesures réalisées sur des gouttes de n-dodécane injectées avec des vitesses différentes (8 m/s et 13 m/s) mettent en évidence un effet de la vitesse des gouttes (Figure 4.35). On constate sur la Figure 4.35 que plus la vitesse des gouttes est élevée, plus les effets d'interaction sont marqués, ce qui correspond à une valeur de  $\eta$  plus petite. L'effet de la vitesse est notable, puisque  $\eta$  varie de 0,15 lorsque  $V_0$  passe de 8 m/s à 13 m/s. Les résultats de la Figure 4.35 sont à rapprocher de ceux de la Figure 4.3. Il avait été établi que le taux d'échauffement des gouttes en régime de forte interaction était moins sensible aux variations de la vitesse que dans le cas de la goutte isolée. En construisant  $\eta$  comme le rapport  $Sh/Sh_{iso}$  ou  $Nu/Nu_{iso}$ , un effet de la vitesse des gouttes a donc été introduit dans le paramètre  $\eta$ . La question est de savoir si cette dépendance à  $V_0$  est déjà prise en compte dans la vitesse réduite  $V_{stef}/V_0$ , ou s'il est besoin d'envisager un effet supplémentaire, par exemple celui du nombre de Reynolds construit à partir de la taille et de la vitesse des gouttes. Pour les gouttes de n-dodécane de la Figure 4.35 injectées à 30°C, la vitesse de l'écoulement de Stefan est si faible ( $V_{stef}/V_0$  est de l'ordre de 0,1%) qu'il semble difficile d'envisager un rôle de l'écoulement de Stefan. Pour autant, les données expérimentales sont trop parcellaires pour apporter une réponse définitive sur le rôle du nombre de Reynolds. Ce dernier a le plus souvent été modifié en faisant varier la taille des gouttes en même temps que le paramètre de distance, ce qui introduit un lien intrinsèque entre  $Re$  et  $C$ . En général, une vitesse proche de 11-13 m/s a été imposée en sortie d'injecteur. Lorsque différents liquides et différentes températures d'injection ont été testés, le débit et la pression d'injection ont été ajustés pour maintenir à peu près la même vitesse ce qui s'est traduit par une certaine variation de la taille

des gouttes et du nombre de Reynolds à  $C$  fixé. Le domaine de variation du nombre de Reynolds pour chaque série de données a été mentionné dans le texte accompagnant les Figure 4.31 à Figure 4.35. Le nombre de Reynolds varie parfois du simple au double dans ces figures sans que cela n'empêche de mettre en évidence un effet du paramètre de distance et de la vitesse de l'écoulement de Stefan.

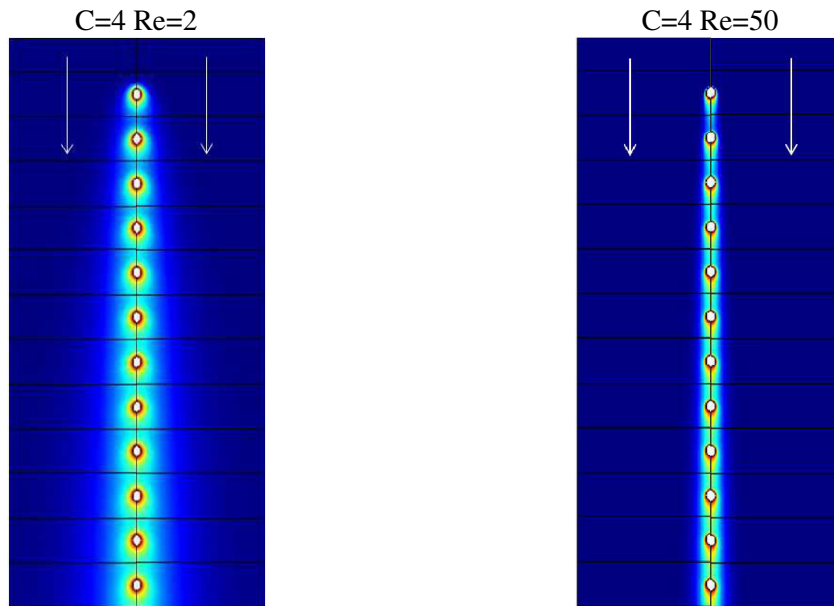


**Figure 4.35 :** Influence de la vitesse d'injection sur la réduction des nombres de Nusselt et de Sherwood en présence d'effets d'interaction. Cas de gouttes de n-dodécane en échauffement.

### 3.6. Mécanisme des effets d'interaction

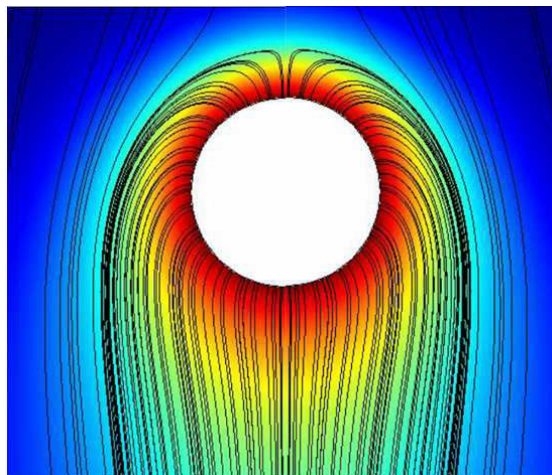
Au vu des résultats précédents, deux mécanismes peuvent être proposés pour expliquer les effets d'interaction et leur impact sur les transferts de chaleur et de masse :

- **Un effet de sillage aérodynamique.** L'importance de cet effet est liée à la distance entre les gouttes. La géométrie et le nombre de Reynolds sont évidemment importants pour décrire les effets de sillages. Dans le cas d'une ligne de gouttes, la disposition des gouttes est extrêmement favorable aux effets de sillage aérodynamique. Quand le nombre de Reynolds augmente, la vapeur est de plus en plus confinée au voisinage de la ligne de gouttes, ce qui renforce l'effet des interactions en diminuant le gradient de concentration de vapeur et de température au voisinage des gouttes et ainsi le transfert de chaleur et de masse. Ce phénomène, illustré à la Figure 4.36 par une simulation réalisée sur COMSOL Multiphysics il y a quelques années par Guillaume Castanet (résultats non publiés), va dans le sens des observations de la Figure 4.35.



**Figure 4.36 :** Illustration des effets de sillage sur le champ de concentration en vapeur autour d'une ligne de gouttes. Une même concentration en vapeur est imposée à la surface des gouttes. Image tirée d'une simulation sous COMSOL Multiphysics.

- **Un effet de soufflage lié à la vitesse de l'écoulement de Stefan.** L'écoulement de Stefan isole la surface de la goutte de l'écoulement externe, qui dans le cas du jet monodisperse peut être particulièrement perturbé par les effets de sillage. Ce phénomène est illustré à la Figure 4.37 par une simulation réalisée sur COMSOL Multiphysics il y a quelques années par Guillaume Castanet (résultats non publiés).



**Figure 4.37 :** Illustration de l'effet de soufflage lié à l'écoulement de Stefan sur l'écoulement et la distribution de vapeur autour d'une goutte. Image tirée d'une simulation sous COMSOL Multiphysics.

Dans les sprays particulièrement denses, le gaz est entraîné par les gouttes, ce qui crée au centre du spray une vitesse relative entre les gouttes et la phase gazeuse quasiment nulle. Dans ce cas limite, seule l'effet de l'écoulement de Stefan peut être invoqué. La conservation du débit massique impose une décroissance de la vitesse de l'écoulement

de Stefan en  $1/r^2$ . On retrouve ainsi la notion de sphère d'influence, exploré par plusieurs auteurs (Chapitre 1 section 1).

Un autre cas limite est celui de gouttes constituées d'un liquide très peu volatile. Pour ces gouttes, les effets de sillage sont à priori les seules à jouer un rôle. Cette situation pourrait correspondre aux jets de gouttes de la Figure 4.35 et aux composants peu volatiles de la Figure 4.32. L'effet de la température ambiante mis en évidence sur la Figure 4.32 pour ces gouttes pourrait provenir de l'augmentation de la viscosité de l'air avec la température ambiante (d'un facteur 2 entre 370°C et 540°C), ce qui diminue le nombre de Reynolds et par suite réduit les effets de sillage.

Dans un jet de gouttes monodisperse, en général, les effets de sillage et de soufflage dûs à l'écoulement de Stefan coexistent. Pour des gouttes en forte évaporation, les expériences ont montré que la vitesse de l'écoulement de Stefan n'est pas tout à fait négligeable devant la vitesse des gouttes (des valeurs de l'ordre de 5%-6% ont été obtenues pour le rapport  $V_{Stef}/V_0$ ). On peut dès lors s'orienter vers deux hypothèses :

- 1- l'écoulement de Stefan est capable d'étendre son influence à une échelle spatiale suffisamment grande pouvant atteindre les gouttes voisines ; la notion de sphères d'influence utilisée pour des gouttes immobiles pourrait alors être invoquée,
- 2- L'effet de l'écoulement de Stefan reste limité à une couche de faible épaisseur autour de la goutte comme le montre la Figure 4.37.

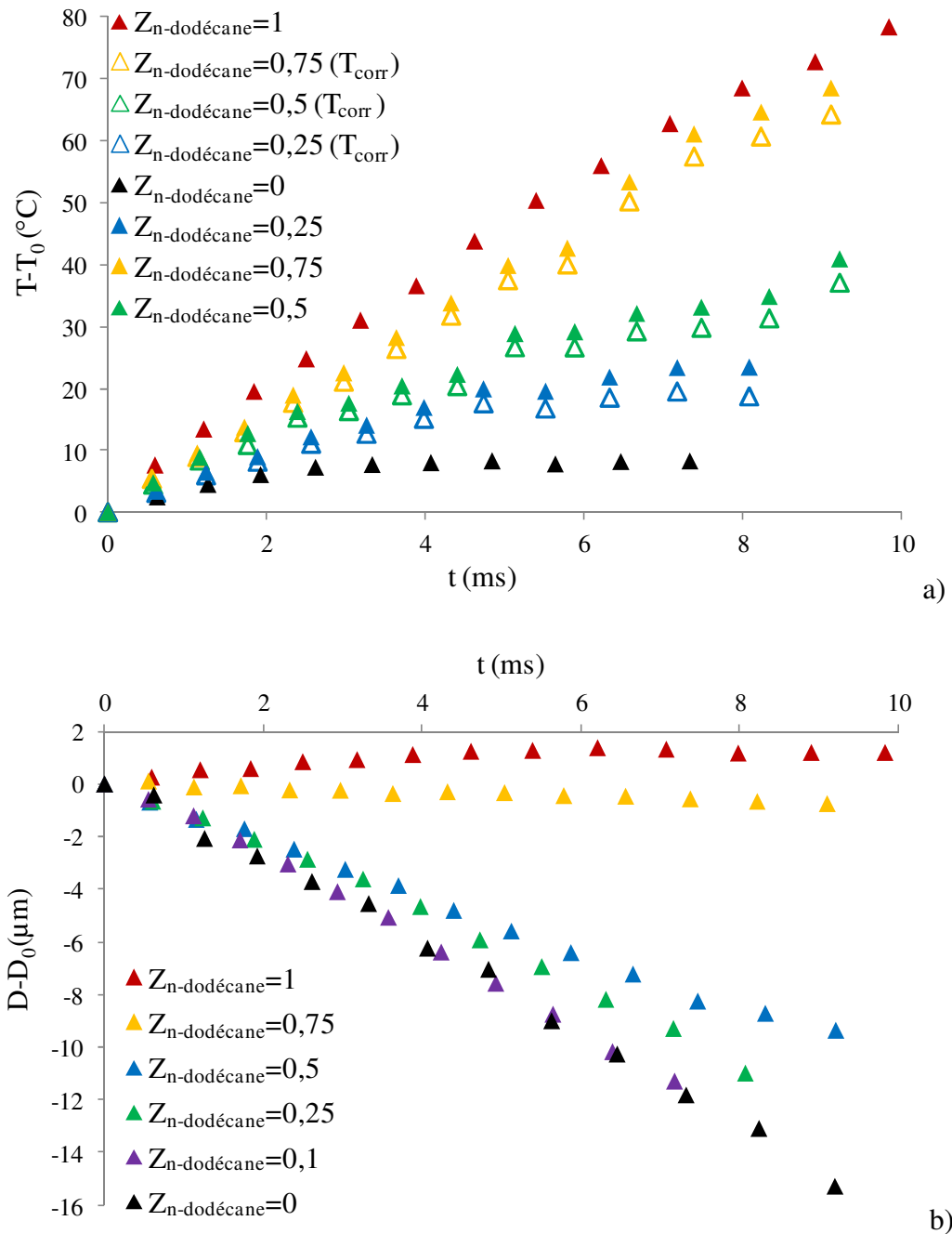
## 4. Echauffement et évaporation de gouttes multicomposant

### 4.1. Etude de mélanges binaires

L'étude de l'évaporation de gouttes constituées de mélange binaire s'est uniquement portée sur le mélange n-dodécane/isohexane du fait de la forte différence de volatilité entre ces deux corps purs.

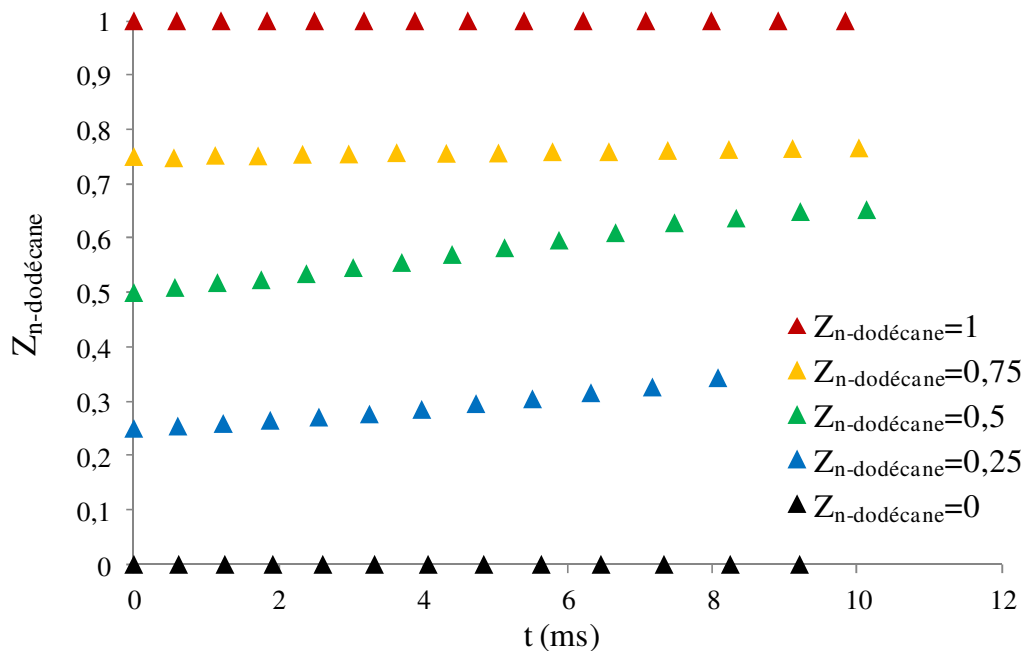
L'effet de la composition de ce mélange a été investigué pour différentes fractions volumiques de n-dodécane ( $Z_{n-dodécane}=1, 0,75, 0,5, 0,25, 0,1$  et 0). Puis ces mesures ont été comparées avec le cas de ces combustibles purs dans des conditions expérimentales similaires au regard du paramètre de distance, de la taille et de la vitesse des gouttes ainsi que de la température d'injection ( $C_0 \sim 6$ ,  $D_0 \sim 110 \mu\text{m}$ ,  $V_0 \sim 9 \text{ m.s}^{-1}$  et  $T_0 \sim 30^\circ\text{C}$ ). La température des gouttes binaires pour différentes compositions initiales a été déterminée en utilisant la calibration en température du rapport de fluorescence correspondant aux différentes compositions initiales. La variation temporelle de la température des gouttes mesurées pour ces différentes compositions est reportée sur la Figure 4.38-a. Les températures mesurées sont recalculées en prenant en compte l'effet du changement de composition liés à l'évaporation des gouttes sur le rapport de fluorescence, ceci en se basant sur la réduction de diamètre et en faisant l'hypothèse que seul l'isohexane s'évapore. La composition des gouttes déterminée sous cette

hypothèse est représentée sur la Figure 4.39 pour les mêmes cas de la Figure 4.38. Même s'il est difficile d'obtenir la température avec une précision égale à celle des corps purs, la température  $T_{LIF}$  des gouttes est comprise entre les mesures brutes et la température corrigée du fait des considérations discutées au Chapitre 3 section 2.3.2.6. La correction finalement apportée est similaire pour les différentes compositions initiales, de l'ordre de 4°C.



**Figure 4.38 :** **a-** Evolution temporelle de la variation de température des gouttes composées de mélanges binaires  $n$ -dodécane/isohehexane pour une fraction  $Z_{n-dodécane}=1$  0,75 0,5 0,25 et 0. **-b-** Evolution temporelle du diamètre (est ajouté  $Z_{n-dodécane}=0,1$ ). Cas identiques à la figure 4.1-a.

Une augmentation de la composition initiale en isohexane, espèce volatile, entraîne une plus forte évaporation (Figure 4.38-b) et un plus faible taux d'échauffement de la goutte. Un pseudo-équilibre en température est observé aux environ de 6 ms pour une fraction volumique en n-dodécane de 25% et 50% et se situe à des valeurs de plus en plus élevées avec la fraction volumique de n-dodécane. Cette relative stagnation de la température du liquide est accompagnée d'une variation quasi-linéaire du diamètre. Pour une fraction volumique de n-dodécane supérieure à 50%, la température augmente rapidement et dépasse même la température d'ébullition de l'isohexane (environ 60°C). Cependant, l'échauffement n'est pas encore assez rapide pour observer le phénomène d'ébullition ou de micro-explosion des gouttes comme il a pu être reporté par Frohn et Roth [83] pour des mélanges comparables de combustibles. Pour une fraction volumique de 10%, la réduction de taille est similaire au cas de l'isohexane pur, signe que sur le temps exploré par la mesure, la présence du n-dodécane est trop faible à la surface pour influencer l'évaporation de la goutte.

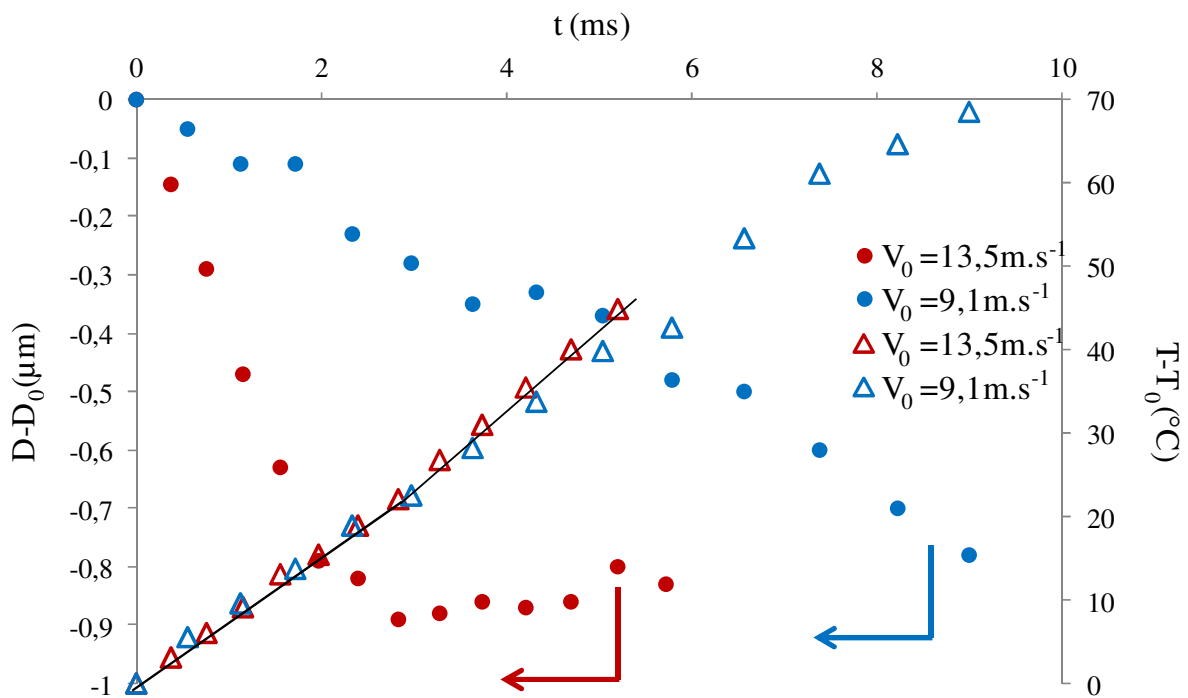


**Figure 4.39 :** Evolution de la fraction volumique de n-dodécane pour différentes compositions initiales représentées. ( $C_0 \sim 6$ ,  $D_0 \sim 110 \mu\text{m}$ ,  $V_0 \sim 9 \text{ m.s}^{-1}$  et  $T_0 \sim 30^\circ\text{C}$ ).

L'effet de la vitesse des gouttes a également été ponctuellement étudié pour deux cas de figure et indépendamment de tout autre paramètre, dans le cas d'une fraction volumique  $Z_{n-dodécane}=0,75$ . Pour une vitesse initiale de  $13,5 \text{ m.s}^{-1}$  l'évolution du diamètre se stabilise aux environ de 2 ms (Figure 4.40), contrairement à la tendance observée dans le cas d'une vitesse initiale de  $9,1 \text{ m.s}^{-1}$ . L'évaporation a lieu à la surface de la goutte pour l'espèce la plus volatile (l'isohexane) et le débit massique d'isohexane évaporé est sans doute plus important que le flux de diffusion de matière à l'intérieur de la goutte. Il s'en suit un appauvrissement en isohexane assez rapide à la surface. Cet appauvrissement finit par limiter l'évaporation à la surface, le n-dodécane, peu volatile, devenant alors fortement majoritaire en surface. Ainsi, la régression du diamètre s'arrête temporairement comme observé sur la Figure 4.40, dans le cas des gouttes injectées à  $13,5 \text{ m.s}^{-1}$ . Ainsi, le taux d'échauffement augmente légèrement à partir

de 2 ms, comme en atteste le changement de pente modéré observé sur l'évolution de la température reportée sur la Figure 4.40. Pour le cas des gouttes injectées à  $9,1 \text{ m.s}^{-1}$ , une diminution identique du diamètre se produit continument sur un temps beaucoup plus long (10 ms). Notons que dans les deux cas, la réduction de diamètre s'avère très modérée, de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$ . Deux phénomènes peuvent être mise en évidence :

- i- l'effet de la convection forcée est plus intense à plus grande vitesse, ce qui contribue à accroître le taux d'évaporation et ainsi à atteindre plus rapidement l'état où il n'y a plus d'isohexane à la surface de la goutte. Dans le cas de la plus faible vitesse, le taux d'échauffement observé est donc logiquement plus faible.
- ii- le temps de séjour est plus court (de l'ordre de 6 ms) pour la vitesse la plus élevée, alors qu'il est de l'ordre de 10 ms pour la vitesse la plus basse. Il est probable qu'une rupture de pente sur l'évolution du diamètre puisse également être observée dans ce dernier cas, mais à un instant situé hors du domaine d'étude.



**Figure 4.40 :** Evolution temporelle du diamètre et de la température de gouttes de  $110 \mu\text{m}$  composée d'un mélange binaire de n-dodécane/isohexane, injectées à  $30^\circ\text{C}$  avec une fraction volumique initiale de n-dodécane  $Z_{n\text{-dodécane}}=0,75$ , pour deux vitesses initiales différentes ( $C_0 \sim 6$  et  $D_0 \sim 110 \mu\text{m}$  pour chaque série ; en bleu :  $T_0=34,3^\circ\text{C}$  et  $V_0=9,1 \text{ m.s}^{-1}$ .; en rouge :  $T_0=29,9^\circ\text{C}$  et  $V_0=13,5 \text{ m.s}^{-1}$ ).

## 4.2. Etude de mélanges ternaires

Le mélange ternaire composé de n-dodécane/n-heptane/isohexane a été investigué pour différentes fractions volumiques initiales en n-heptane  $Z_{heptane}=0,25, 0,5$  et  $0,75$  (composé de

volatilité moyenne dans ce mélange) avec pour chaque mélange des fractions volumiques de n-dodécane et d'isohexane identiques.

La correction de l'effet de la composition sur le rapport de fluorescence est plus complexe que dans le cas du mélange isohexane/n-dodécane du fait de la présence d'un troisième composant. Néanmoins certaines observations autorisent des hypothèses simplificatrices qui permettent de proposer une correction de la température des gouttes.

Premièrement, il a été montré (Figure 3.21) que la variation de la fraction volumique de n-heptane au sein du mélange ternaire n'affectait que de manière marginale le rapport de fluorescence dans une gamme allant de  $Z_{n\text{-heptane}} = 0$  à  $Z_{n\text{-heptane}} = 0,75$ . Seule la variation relative des fractions volumiques du couple isohexane/n-dodécane au sein du mélange ternaire a une influence réelle sur le rapport de fluorescence. Par conséquent, la correction apportée au rapport de fluorescence se base sur la fonction déjà utilisée pour le mélange binaire isohexane/n-dodécane (3.29).

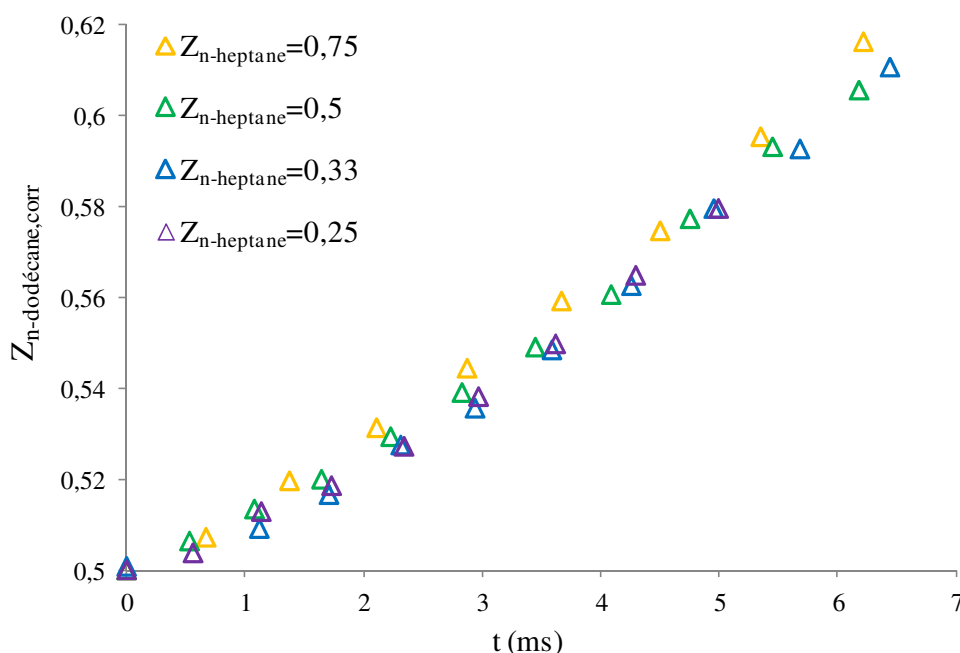
Il est donc nécessaire de connaître l'évolution relative de la fraction volumique de n-dodécane par rapport à celle de l'isohexane. Pour cela, l'aide de la simulation numérique est requise. Des simulations numériques des différents cas expérimentaux ont été réalisées en utilisant le modèle à composants discrets, associé au modèle de conduction et de diffusion effective afin de décrire les transferts chaleur et de masse à l'intérieur de la goutte. Ces simulations ont permis d'avoir une idée de l'évolution temporelle des fractions volumiques des différents composants à l'intérieur de la goutte. Les résultats obtenus sont rassemblés dans le Tableau 4.3, pour différents instants ( $t=0$ , 2 et 8 ms) correspondant au temps de séjour des gouttes dans l'enceinte chauffée. Ainsi, au vue de ces résultats, il apparaît que la fraction volumique de n-heptane évolue très peu, même après un temps de séjour de 8 ms.

$Z_{\text{heptane}} = 0,25$			
	$t=0$	$t=2 \text{ ms}$	$t=8 \text{ ms}$
$Z_{n\text{-heptane}}$	0,25	0,25	0,22
$Z_{n\text{-dodécane}}$	0,375	0,43	0,52
$Z_{\text{Isohexane}}$	0,375	0,32	0,26
$Z_{\text{heptane}} = 0,75$			
	$t=0$	$t=2 \text{ ms}$	$t=8 \text{ ms}$
$Z_{n\text{-heptane}}$	0,75	0,74	0,72
$Z_{n\text{-dodécane}}$	0,125	0,14	0,18
$Z_{\text{Isohexane}}$	0,125	0,11	0,08

**Tableau 4.3 :** Evolution de la fraction volumique moyenne de chaque composant du mélange ternaire n-dodécane/n-heptane/isohexane pour une fraction volumique initiale en n-heptane de 25% et 75% d'après les simulations numériques.

La fraction volumique de n-heptane sera donc supposée constante au cours du temps, ainsi, en considérant que l'évaporation du n-dodécane reste négligeable, il sera aisé de déterminer les fractions volumiques de n-dodécane et d'isohexane à partir de l'évolution expérimentale du diamètre de la goutte.



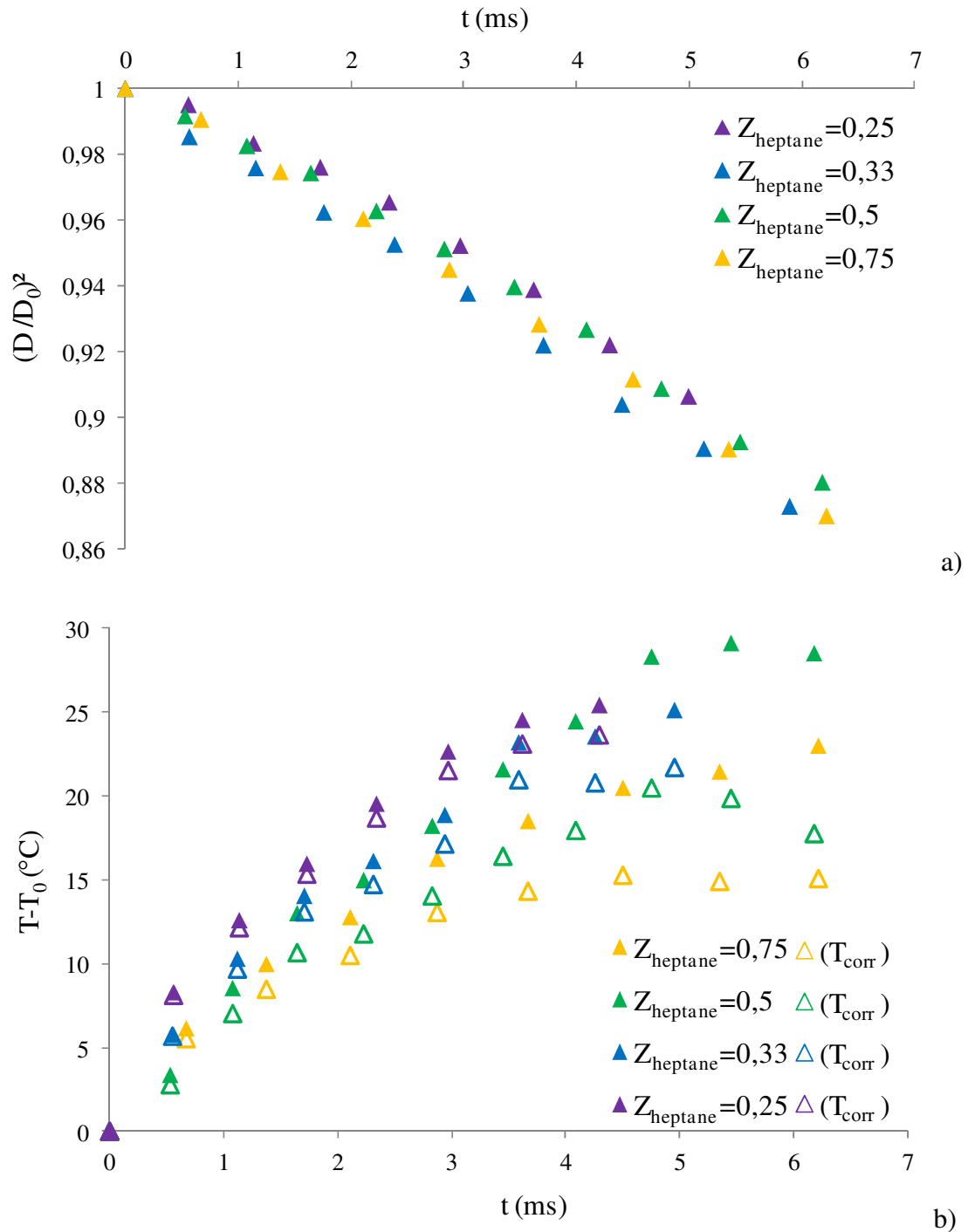


**Figure 4.41 :** Evolution de la fraction volumique de n-dodécane pour les différents cas représentés sur la figure 4.5 en prenant uniquement en compte le volume de n-dodécane et d'isohexane des différents mélanges ternaires,

La Figure 4.42-a, présente les courbes d'évolution temporelle du diamètre au carré des gouttes pour les différentes valeurs initiales de  $Z_{n-heptane}$ . Ces évolutions restent proches en dépit de l'importante variation de la fraction initiale de n-heptane. Ceci semble indiquer que dans ces conditions, seul l'isohexane (composant le plus volatil) contrôle l'évaporation de la goutte. Des mesures effectuées sur des gouttes de n-heptane pur réalisées dans des conditions similaires (reportées Figure 4.43), ont précédemment montré que l'évaporation du n-heptane devenait significative seulement lorsque la goutte atteint une température d'environ 45°C. Les calibrations du rapport de fluorescence en fonction de la température (Figure 3.26) en fonction de la fraction volumique initiale de n-heptane ont ensuite été utilisées.

La figure 4.42-b présente l'évolution temporelle de la température des gouttes pour les différentes valeurs initiales de  $Z_{n-heptane}$ , les valeurs avec et sans correction de l'effet de la composition sur la température étant reportées. Même si les températures initiales ne sont pas tout à fait identiques, il apparaît clairement que les gouttes comportant la plus faible fraction volumique de n-heptane s'échauffent plus rapidement, ceci étant dû à une plus forte fraction volumique de n-dodécane dans le mélange. La correction en température effectuée dans le cas des fractions volumiques de n-heptane égales à 0,5 et 0,75 sont plus importantes que pour les autres cas (environ 6°C en moins pour les valeurs corrigées), du fait de la forte modification de la fraction d'isohexane par rapport à celle de n-dodécane. Pour la composition initiale  $Z_{n-heptane} = 0,5$ , la température indique une légère baisse d'environ 2°C sur la valeur corrigée au temps  $t = 5,5$  ms ce qui correspond à une amplification de l'erreur de mesure déjà constatée sur les valeurs non corrigées, du fait de la plus faible sensibilité en température du traceur fluorescent dans le cas de ce mélange ternaire. Dans ce cas, la température non corrigée

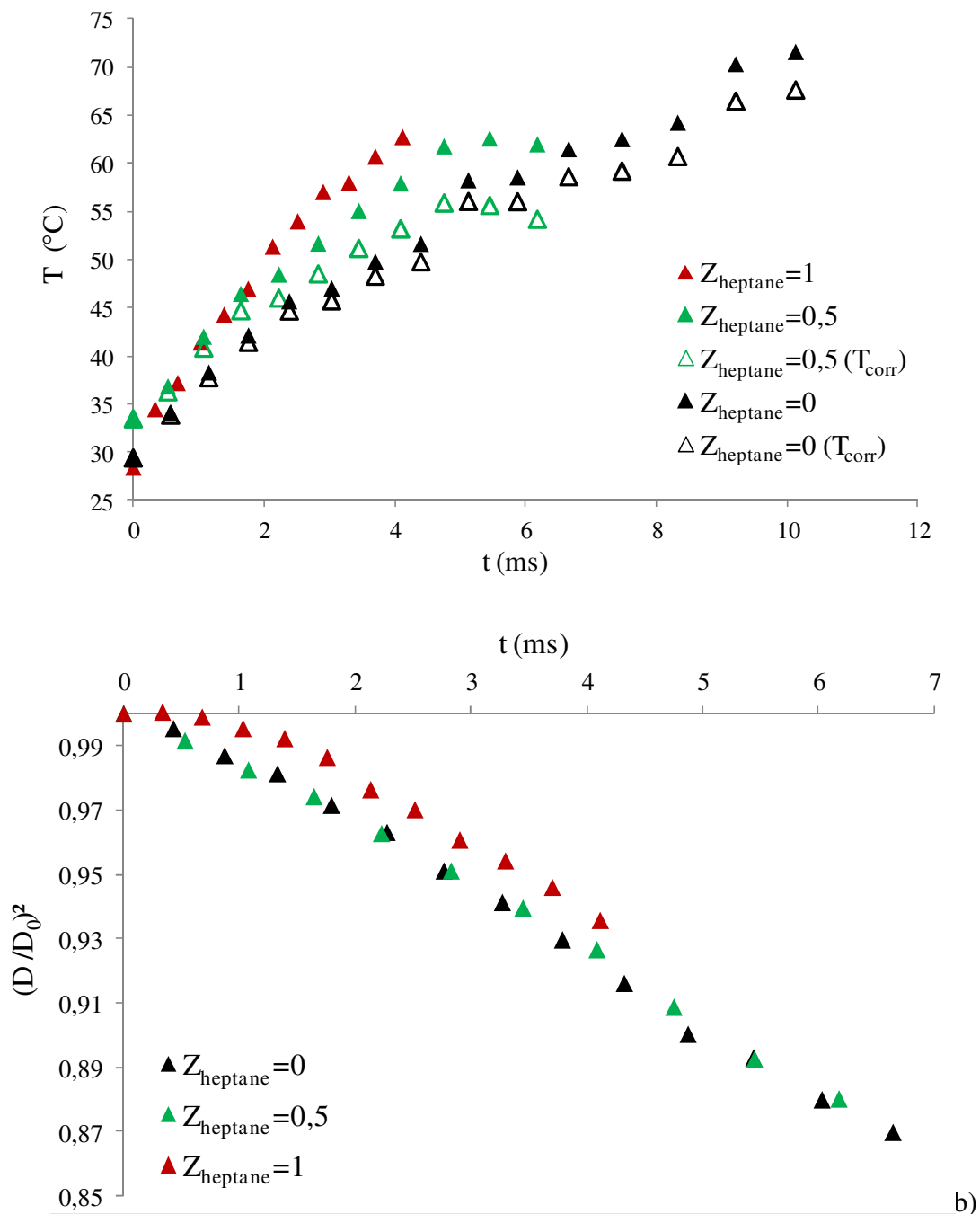
semble se terminer par un plateau, éventuellement à rapprocher des pseudo-équilibres évoqués pour le mélange binaire.



**Figure 4.42-a :** Evolution temporelle du diamètre normalisé de gouttes composées de mélanges ternaires n-dodécane/n-heptane/iso-hexane avec des fractions volumiques de n-heptane  $Z_{\text{heptane}}=0,25$  0,33 0,5 et 0,75. **-b-** Evolution temporelle de la température avant et après correction des effets de la composition. ( $D_0 \sim 100 \mu\text{m}$ ,  $C_0 \sim 4,5$  et  $41^\circ\text{C} > T_0 > 28^\circ\text{C}$ ).

La Figure 4.43 confirme les tendances observées précédemment : en l'absence de n-heptane, pour des gouttes ne contenant qu'un mélange iso-hexane/n-dodécane dans les mêmes

proportions volumiques, l'échauffement et le taux d'évaporation sont identiques à celui du mélange ternaire comportant une fraction volumique initiale  $Z_{heptane} = 0,5$ , ce qui tend à donner du crédit à la stratégie de correction appliquée et aux mesures présentées.



**Figure 4.43-a** : Evolution temporelle de la température de gouttes composées de mélanges n-dodécane/n-heptane/isohexane avec des fractions volumiques de n-heptane  $Z_{heptane} = 0, 0,5$  et  $1$ , **-b** évolution temporelle du diamètre normalisé. ( $D_0 \sim 100 \mu m$ ,  $C_0 \sim 4,5$  et  $41^\circ C > T_0 > 28^\circ C$ ).

### 4.3. Conclusion

Des mesures préliminaires de l'évolution de la température et du diamètre de gouttes composées de mélanges binaires et ternaires de corps purs ont été présentées. La mesure de température nécessite la mise en place d'une stratégie de correction complexe, dépendant de la composition du mélange et sous-jacente à des hypothèses concernant l'évolution de celle-ci.

Toutefois, les variations de compositions attendues, relativement modestes dans les cas étudiés, permettent de donner du crédit aux corrections mises en place et à la valeur des mesures fournies. Néanmoins, il convient de nuancer cela, car il faudrait pour être exhaustif prendre en compte la convolution entre le champ de composition simulé à l'intérieur de la goutte, soit avec le modèle de diffusion effective soit avec le modèle plus réaliste du vortex de Hill et du volume de mesure appliqué afin de réellement analyser la validité de la correction qui a été utilisée pour des valeurs moyennes de variations de composition.

# **Conclusions et perspectives**

## Conclusions et perspectives

Ce travail de doctorat s'inscrit dans le cadre de l'étude expérimentale des phénomènes d'échauffement et d'évaporation de gouttes de combustible dans un environnement à haute température et en présence de fortes interactions aérodynamiques entre gouttelettes.

Dans un premier temps, un panorama des différents modèles d'échauffement et d'évaporation de gouttelettes mono et multicomposant a été présenté ainsi qu'un état de l'art sur le sujet. Celui-ci laisse apparaître qu'il n'y a pas assez de données expérimentales disponibles sur l'échauffement et l'évaporation de gouttes de combustibles, en particulier dans le cas où les interactions aérodynamiques entre gouttes ont un effet majeur sur les transferts de chaleur et de masse. Il manque des expériences de référence avec des conditions aux limites les plus propres et les mieux déterminées possibles. Les expériences rapportées dans la littérature sont le plus souvent réalisées dans des conditions de température trop faible pour caractériser simultanément un flux de masse et de chaleur pour une large gamme de combustibles de volatilité différente. Pour aller plus loin dans l'étude de l'échauffement et de l'évaporation de gouttes de combustible, une nouvelle expérience a été développée. Elle consiste à injecter un jet de gouttes monodisperse dans un écoulement d'air à basse vitesse et à haute température (jusqu'à 540°C). L'enceinte dans laquelle les gouttes et l'air chaud sont confinés, est équipée de plusieurs accès optiques afin de mettre en œuvre plusieurs diagnostics optiques non-intrusifs.

Parmi les développements réalisés, une nouvelle technique de mesure a été conçue pour caractériser le diamètre instantané des gouttes. Cette technique est basée sur l'observation des gouttes par ombroscopie en utilisant comme éclairage la fluorescence d'une plaque de PMMA dopée en colorant et excitée par les impulsions d'un laser à double cavité. Les doubles impulsions du laser permettent de déterminer la vitesse des gouttes, de manière similaire à la PIV, mais dans une configuration d'écoulement extrêmement simplifiée. La mesure de la taille des gouttes nécessite un étalonnage du système d'imagerie à l'aide d'une mire micrométrique et une correction de la distorsion optique. De l'ordre de 1  $\mu\text{m}$  en absolu, la précision de la mesure du diamètre peut descendre en relatif à quelques dixièmes voire centièmes de microns dans des conditions d'éclairage et de mise au point parfaitement maîtrisées. Ainsi, la caractérisation du flux massique de vapeur peut être extrêmement fiable et précise.

La mesure de la température des gouttes en mouvement fait appel à la fluorescence induite par laser à deux couleurs (2cLIF), technique développée et maîtrisée au LEMTA depuis une quinzaine d'années. La 2cLIF a fait l'objet de développements et d'avancées substantielles au cours de ce travail de thèse. Le pyrrométhène 597-8C9, dont l'usage avait été initié par Deprédurand [17], a été utilisé comme traceur fluorescent du fait de son excellente solubilité dans différents combustibles tels que les alcanes et les alcools. Cependant, la technique a nécessité une adaptation à la longueur d'onde 532 nm d'un laser Nd-Yag, alors que par le

passé l'excitation du pyrrométhène 597-8C9 se faisait à l'aide de la raie verte à 514,5 nm d'un laser à argon ionisé. L'adaptation de la 2cLIF à des mélanges binaires ou ternaires a requis de nombreuses études spectroscopiques et des étalonnages préliminaires pour garantir une interprétation correcte des résultats de mesure dans ces mélanges. En effet, une dépendance du signal de fluorescence à la composition a été identifiée pour certains mélanges. Cette sensibilité du signal de fluorescence à la composition peut nuire à la qualité des mesures de température étant donnée les difficultés qu'il peut y avoir à séparer les effets respectifs de la température et de la composition sur le rapport de fluorescence. Enfin, l'apparition de résonances morphologiques (MDRs) et les perturbations qu'elles occasionnent sur la mesure de température par 2cLIF ont été mises en évidence pour la première fois. Les MDRs se produisent à des longueurs qui sont très peu réabsorbées par le traceur fluorescent. Elles peuvent fausser significativement les mesures de température lorsqu'elles coïncident avec l'une des deux bandes de détection de la 2cLIF. L'ajout d'un colorant non-fluorescent, mais absorbant dans la région spectrale des MDRs a permis d'éliminer totalement ce phénomène parasite et ainsi de fortement améliorer la précision des mesures de température.

Les conditions aérothermiques étudiées correspondent au régime des fortes interactions (paramètres de distance inférieur à 10). Il a été possible de quantifier l'effet de ces interactions en introduisant un coefficient de réduction des nombres de Nusselt ( $Nu$ ) ou de Sherwood ( $Sh$ ) par rapport au cas de la goutte isolée ( $Nu_{iso}$  ou  $Sh_{iso}$ ). Ce paramètre de correction  $\eta = Nu/Nu_{iso}$  ou  $Sh/Sh_{iso}$  peut être estimé le plus souvent avec une incertitude de quelques pourcents. Le paramètre  $\eta$  présente une dépendance au paramètre de distance déjà mise en évidence de longues dates. La comparaison aux travaux antérieurs de Deprédurand [17], réalisés avec une température ambiante nettement plus basse (370°C), révèle une nette diminution des effets d'interactions avec l'augmentation de la température ambiante. Cet effet, qui n'avait jamais été décrit, a été attribué à la volatilité des combustibles qui s'évaporent bien plus rapidement à haute température. La vitesse de l'écoulement de Stefan rapportée à la vitesse des gouttes apparaît comme un nombre adimensionnel pertinent pour décrire ces effets de la volatilité. Plus ce rapport de vitesse est grand, moins les effets d'interaction sont marqués. Ceci suggère que le soufflage de vapeur isole la surface des gouttes des perturbations induites par l'écoulement extérieur. La vitesse de l'écoulement de Stefan, essentiellement fonction de la nature du combustible, peut être augmentée en injectant le combustible avec une température plus élevée, ce qui offre des possibilités de tester l'effet de la volatilité d'une manière différente que par la variation de la température ambiante. Un effet de la vitesse des gouttes a également été mis en évidence. Plus la vitesse des gouttes est élevée, plus les effets d'interaction sont marqués. Cet effet semble s'expliquer à la fois par une augmentation des effets de sillage derrière les gouttes, ainsi que par une réduction de la zone d'influence de l'écoulement de Stefan autour des gouttes soumises à davantage de cisaillement.

Des mesures préliminaires de l'évolution de la température et du diamètre de gouttes composées de mélanges binaires et ternaires ont finalement été présentées. La mesure de température nécessite la mise en place d'une stratégie de correction assez complexe, pour

tenir compte de la dépendance du signal à la composition du mélange qui varie substantiellement du fait de l'évaporation des gouttes.

Parmi les perspectives ouvertes par ce travail:

*1- Sur le plan de la technique de fluorescence induite par laser à deux couleurs (2cLIF), quelques améliorations restent encore à réaliser :*

- Une légère variation de la sensibilité en température a été observée pour le pyrrométhène 597-8C9 en solution dans l'éthanol lorsque la concentration de celui-ci est modifiée de manière significative. L'impact de ce phénomène sur la mesure reste encore à préciser, notamment lorsque la goutte s'évapore rapidement, situation dans laquelle le temps caractéristique de régression de la surface de la goutte est nettement inférieur au temps associé à la diffusion du colorant dans le liquide. Ainsi l'impact d'une surconcentration du colorant au voisinage de la surface reste encore à déterminer. Quand à l'interprétation de cette dépendance à la concentration du traceur, des phénomènes d'auto-quenching du colorant fluorescent peuvent être invoqués.
- L'effet du volume de mesure de la fluorescence convolué avec un champ de température à l'intérieur de la goutte, voir avec un champ de composition, pourrait être pris en compte de manière plus réaliste. En effet, dans ce travail, le champ de température à l'intérieur de la goutte a été pris en compte en utilisant un modèle de conductivité effective, à symétrie sphérique par nature. L'utilisation d'un modèle plus réaliste, prenant en compte simultanément l'advection et la diffusion de la chaleur et des espèces dans la goutte permettrait une meilleure comparaison entre les données des simulations et les mesures. Cette approche pourrait être basée sur le modèle du vortex de Hill en y intégrant les effets des interactions entre gouttes sur le champ de vitesse du vortex ainsi que ses modifications dues à l'effet Marangoni.

*2- Sur l'effet des interactions entre gouttes voisines*

Cette étude a clairement mis en évidence le rôle du paramètre de distance et de la vitesse de l'écoulement de Stefan sur les effets d'interaction qui affectent les transferts de chaleur et de masse. Néanmoins, il reste à élaborer une corrélation faisant intervenir des paramètres réduits. Une difficulté est de connaître le poids respectif des effets de sillages et de ceux liés à l'écoulement de Stefan dans les phénomènes d'interactions. La réponse à cette question pourrait venir de simulations numériques permettant de découpler ces effets en imposant une vitesse de soufflage artificielle à la surface des gouttes. Si il est établi que l'écoulement de Stefan est capable d'étendre son influence à une échelle spatiale suffisamment grande pour atteindre les gouttes voisines malgré l'écoulement externe, la notion de sphères d'influence utilisée pour des gouttes immobiles pourrait être adaptée à la modélisation des effets d'interaction. L'une des idées pourrait être basée sur les travaux de Imaoka et Sirignano [47], en introduisant le rapport d'un volume gazeux et du volume occupé par le liquide dans ce volume gazeux. Le volume gazeux considéré pourrait être relié à la vitesse de Stefan.



Par ailleurs, les expériences pourraient être renouvelées sur des arrangements tridimensionnels de train de gouttes monodisperse en introduisant en plus un paramètre de distance latéral, puis en considérant un arrangement périodique plus complexe de train de gouttes monodisperse, ce type d'arrangement existant maintenant pour 64 trains de gouttes. Cette configuration se rapprochait ainsi d'un véritable spray.

### *3- Sur l'aspect multicomposant du combustible*

Il apparaît au vue de ce travail que des mesures fiables peuvent être réalisées sur une assez vaste gamme de mélanges binaires ou ternaires d'alcane. Dans un premier temps, les cas traités pourraient permettre une comparaison avec des modèles à composants discrets et à pseudo-composants. Puis les approches expérimentales développées pourront être généralisées à des combustible réels, de type essence, kérosène et diesel, composés de plusieurs centaines d'espèces chimiques. La comparaison avec des modèles à pseudo-composants prendra alors tout son sens. D'une manière plus générale, l'effet des interactions entre gouttes voisines reste encore à élucider pour le cas d'un combustible multicomposant.

# Références bibliographiques

## Références bibliographiques

- [1] V. M. Gun'ko, R. Nasiri, S. S. Sazhin, F. Lemoine, and F. Grisch, "A quantum chemical study of the processes during the evaporation of real-life Diesel fuel droplets," *Fluid Phase Equilibria*, vol. 356, pp. 146–156, Oct. 2013.
- [2] Maxwell, *Diffusion*, 9th ed., vol. 7. Encyclopaedia Britannica, 1877.
- [3] Fuchs, "Evaporation and Droplet Growth in Gaseous Media," 1959.
- [4] S. Tonini and G. E. Cossali, "An analytical model of liquid drop evaporation in gaseous environment," *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 57, pp. 45–53, Jul. 2012.
- [5] L. Zhang and S.-C. Kong, "Vaporization modeling of petroleum–biofuel drops using a hybrid multi-component approach," *Combust. Flame*, vol. 157, no. 11, pp. 2165–2174, Nov. 2010.
- [6] C. Laurent, "Developpement et validation de modèles d'évaporation multi-composant," 2008.
- [7] A. Y. Tong and W. A. Sirignano, "Multicomponent transient droplet vaporization with internal circulation: integral equation formulation," 1986.
- [8] Y. Ra and R. D. Reitz, "A vaporization model for discrete multi-component fuel sprays," *Int. J. Multiph. Flow*, vol. 35, no. 2, pp. 101–117, Feb. 2009.
- [9] S. S. Sazhin, A. E. Elwardany, E. M. Sazhina, and M. R. Heikal, "A quasi-discrete model for heating and evaporation of complex multicomponent hydrocarbon fuel droplets," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 54, no. 19–20, pp. 4325–4332, Sep. 2011.
- [10] A. E. Elwardany and S. S. Sazhin, "A quasi-discrete model for droplet heating and evaporation: Application to Diesel and gasoline fuels," *Fuel*, vol. 97, pp. 685–694, Jul. 2012.
- [11] S. S. Sazhin, M. Al Qubeissi, R. Kolodnytska, A. E. Elwardany, R. Nasiri, and M. R. Heikal, "Modelling of biodiesel fuel droplet heating and evaporation," *Fuel*, vol. 115, pp. 559–572, Jan. 2014.
- [12] G. L. Hubbard, V. E. Denny, and A. F. Mills, "Droplet evaporation: effects of transients and variable properties," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 18, no. 9, pp. 1003–1008, 1975.
- [13] Yuen and Chen, "Heat-Transfert Measurements of Evaporating Liquid Droplets," 1978.
- [14] S. Prakash and W. A. Sirignano, "Liquid fuel droplet heating with internal circulation," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 21, no. 7, pp. 885–895, juillet 1978.
- [15] B. Abramzon and W. A. Sirignano, "Droplet vaporization model for spray combustion calculations," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 32, no. 9, pp. 1605–1618, Sep. 1989.
- [16] A. E. E. S. S. Sazhin, "Multicomponent droplet heating and evaporation: Numerical simulation versus experimental data," *Int. J. Therm. Sci. - INT J THERM SCI*, vol. 50, no. 7, pp. 1164–1180, 2011.
- [17] V. Deprédurand, "Approche expérimentale de l'évaporation de sprays de combustibles multicomposant," 2009.
- [18] C. Bertoli and others, "A finite conductivity model for diesel spray evaporation computations," *Int. J. Heat Fluid Flow*, vol. 20, no. 5, pp. 552–561, 1999.
- [19] W. A. Sirignano, "Fuel droplet vaporization and spray combustion theory," *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 9, no. 4, pp. 291–322, 1983.
- [20] R. Kneer, M. Schneider, B. Noll, and S. Wittig, "Diffusion controlled evaporation of a multicomponent droplet: theoretical studies on the importance of variable liquid properties," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 36, no. 9, pp. 2403–2415, 1993.

- [21] L. A. Dombrovsky and S. S. Sazhin, "A parabolic temperature profile model for heating of droplets," *Journal of heat transfer*, 2003.
- [22] G. J. Brereton, "A discrete multicomponent temperature-dependent model for the evaporation of spherical droplets," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 60, pp. 512–522, May 2013.
- [23] L. A. Dombrovsky and S. S. Sazhin, "A Simplified Non-isothermal Model for Droplet Heating and Evaporation," 2003.
- [24] S. Prakash and W. A. Sirignano, "Theory of convective droplet vaporization with unsteady heat transfer in the circulating liquid phase," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 23, no. 3, pp. 253–268, Mar. 1980.
- [25] R. Clift, J. R. Grace, and Weber, *Bubbles, drops, and particles*. New York: Academic Press, 1978.
- [26] M. Renksizbulut and Yuen, "Numerical study of droplet evaporation in high temperature stream," *Journal of heat transfer*, 1983.
- [27] G. Castanet, B. Frackowiak, C. Tropea, and F. Lemoine, "Heat convection within evaporating droplets in strong aerodynamic interactions," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 54, no. 15–16, pp. 3267–3276, Jul. 2011.
- [28] H. Niazmand, B. D. Shaw, H. A. Dwyer, and I. Aharon, "Effects of Marangoni Convection on Transient Droplet Evaporation," *Combust. Sci. Technol.*, vol. 103, no. 1–6, pp. 219–233, 1994.
- [29] B. Frackowiak, G. Lavergne, C. Tropea, and A. Strzelecki, "Numerical analysis of the interactions between evaporating droplets in a monodisperse stream," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 53, no. 7–8, pp. 1392–1401, Mar. 2010.
- [30] G. Castanet and F. Lemoine, "Heat transfer within combusting droplets," *Proc. Combust. Inst.*, vol. 31, no. 2, pp. 2141–2148, Jan. 2007.
- [31] Poling, Prausnitz, and O'Connell, *The properties of Gases and Liquids*. 2001.
- [32] N. Doué, "Modélisation de l'évaporation de gouttes multi-composant," 2005.
- [33] Wassiljewa, *Physik. Z.*, vol. 5. 1904.
- [34] C. R. Wilke, *J. Chem. Phys.*, vol. 18. 1950.
- [35] L. Grundberg and A. H. Nissan, *Trans. Faraday Soc.*, vol. 44. 1948.
- [36] L. Grundberg and A. H. Nissan, *Ind. Eng. Chem.*, vol. 42. 1950.
- [37] E. G. Scheibel, *Ind. Eng. Chem.*, vol. 46. 1954.
- [38] D. Honnery, D. Nguyen, and J. Soria, "Microdroplet evaporation under increasing temperature conditions: Experiments and modelling," *Fuel*, vol. 105, pp. 247–257, Mar. 2013.
- [39] J. J. Sangiovanni and M. Labowsky, "Burning times of linear fuel droplet arrays: A comparison of experiment and theory," *Combust. Flame*, vol. 47, pp. 15–30, 1982.
- [40] M. Labowsky, "Calculation of the Burning Rates of Interacting Fuel Droplets," *Combust. Sci. Technol.*, 1980.
- [41] M. Marberry, A. K. Ray, and K. Leung, "Effect of multiple particle interactions on burning droplets," *Combust. Flame*, vol. 57, no. 3, pp. 237–245, 1984.
- [42] C. H. Chiang and W. A. Sirignano, "Numerical Analysis of Interacting, Convectin Vaporizing, Fuel Droplets with Variable Properties."
- [43] J. F. Virepinte, Y. Biscos, G. Lavergne, P. Magre, and G. Collin, "A Rectilinear Droplet Stream in Combustion: Droplet and Gas Phase Properties," *Combust. Sci. Technol.*, vol. 150, no. 1–6, pp. 143–159, Jan. 2000.
- [44] G. Castanet, M. Lebouché, and F. Lemoine, "Heat and mass transfer of combusting monodisperse droplets in a linear stream," *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 48, no. 16, pp. 3261–3275, Jul. 2005.

- [45] A. Atthasit, “Etude expérimentale des phénomènes d’interaction dans les jets diphasiques denses au moyen de jets rectilignes monodisperses,” 2003.
- [46] C.-K. Chen and T.-H. Lin, “Streamwise interaction of burning drops,” *Combust. Flame*, vol. 159, no. 5, pp. 1971–1979, May 2012.
- [47] R. T. Imaoka and W. A. Sirignano, “Transient vaporization and burning in dense droplet arrays,” *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 48, no. 21–22, pp. 4354–4366, Oct. 2005.
- [48] W. A. Sirignano, “Liquid-fuel burning with nonunitary Lewis number,” *Combust. Flame*, vol. 148, no. 3, pp. 177–186, Feb. 2007.
- [49] J. F. Virepinte, “Etude du comportement dynamique et thermique de gouttes en régime d’interaction dans le cas de jets rectilignes.” ENSAE, 1999.
- [50] P. Eisenklam, S. A. Arunachalam, and J. A. Weston, “Evaporation rates and drag resistance of burning drops,” in *Symposium (International) on Combustion*, 1967, vol. 11, pp. 715–728.
- [51] M. C. Yuen and W. Chen, “On drag of evaporating liquid droplets,” *Combust. Sci. Technol.*, 1976.
- [52] M. Renksizbulut and R. J. Haywood, “Transient droplet evaporation with variable properties and internal circulation at intermediate Reynolds numbers,” *Int. J. Multiph. Flow*, vol. 14, no. 2, pp. 189–202, 1988.
- [53] C. H. Chiang and W. A. Sirignano, “Axisymmetric Calculations of Three -Droplets Interactions,” *At. Sprays*, 1993.
- [54] G. Castanet, A. Labergue, and F. Lemoine, “Internal temperature distributions of interacting and vaporizing droplets,” *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 50, no. 7, pp. 1181–1190, Jul. 2011.
- [55] G. Castanet, P. Lavieille, F. Lemoine, M. Lebouché, A. Atthasit, Y. Biscos, and G. Lavergne, “Energetic budget on an evaporating monodisperse droplet stream using combined optical methods: Evaluation of the convective heat transfer,” *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 45, no. 25, pp. 5053–5067, 2002.
- [56] C. Maqua, G. Castanet, and F. Lemoine, “Bicomponent droplets evaporation: Temperature measurements and modelling,” *Fuel*, vol. 87, no. 13–14, pp. 2932–2942, Oct. 2008.
- [57] K. Ammigan and H. L. Clack, “Planar laser-induced fluorescence imaging of the spatial vapor distribution around a monodisperse acetone droplet stream exposed to asymmetric radiant heating,” *Proc. Combust. Inst.*, vol. 32, no. 2, pp. 2179–2186, 2009.
- [58] V. Devarakonda and A. K. Ray, “Effect of inter-particle interactions on evaporation of droplets in a linear array,” *J. Aerosol Sci.*, vol. 34, no. 7, pp. 837–857, Jul. 2003.
- [59] S. Roy, J. R. Gord, and A. K. Patnaik, “Recent advances in coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy: Fundamental developments and applications in reacting flows,” *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 36, no. 2, pp. 280–306, Apr. 2010.
- [60] C. P. Koshland and T. Bowman, “Combustion of Monodisperse Droplet Clouds in a Reactive Environment,” 1984.
- [61] C. Maqua, G. Castanet, F. Grisch, F. Lemoine, T. Kristyadi, and S. S. Sazhin, “Monodisperse droplet heating and evaporation: Experimental study and modelling,” *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 51, no. 15–16, pp. 3932–3945, Jul. 2008.
- [62] G. Castanet, “Etude aérothermique d’un jet de gouttes monodispersé en évaporation et en combustion à l’aide de méthodes optiques,” 2004.
- [63] C. Maqua, “Contribution à la compréhension de l’évaporation de gouttes de combustible bi-composant à l’aide de méthodes optiques,” 2007.
- [64] N. Doué, “Modélisation de l’évaporation de gouttes multi-composants,” 2005.

- [65] F. Lemoine, Y. Antoine, M. Wolff, and M. Lebouche, "Simultaneous temperature and 2D velocity measurements in a turbulent heated jet using combined laser-induced fluorescence and LDA," *Exp. Fluids*, vol. 26, no. 4, pp. 315–323, 1999.
- [66] F. Lemoine and B. Leporcq, "An efficient optical pressure measurement in compressible flows: Laser-induced iodine fluorescence," *Exp. Fluids*, vol. 19, no. 3, pp. 150–158, 1995.
- [67] M. C. J. Coolen, R. N. Kieft, C. C. M. Rindt, and A. A. Van Steenhoven, "Application of 2-D LIF temperature measurements in water using a Nd: YAG laser," *Exp. Fluids*, vol. 27, no. 5, pp. 420–426, 1999.
- [68] P. Lavieille, "Etude expérimentale du comportement aérothermique de gouttes en écoulement réactif ou non par utilisation de la fluorescence induite par laser à deux couleurs," U.H.P Nancy 1, 2001.
- [69] J. Coppeta and C. Rogers, "Dual emission laser induced fluorescence for direct planar scalar behavior measurements," *Exp. Fluids*, vol. 25, no. 1, pp. 1–15, 1998.
- [70] J. Sakakibara and R. J. Adrian, "Whole field measurement of temperature in water using two-color laser induced fluorescence," *Exp. Fluids*, vol. 26, no. 1–2, pp. 7–15, 1999.
- [71] J. Sakakibara and R. J. Adrian, "Measurement of temperature field of a Rayleigh-Benard convection using two-color laser-induced fluorescence," *Exp. Fluids*, vol. 37, no. 3, Sep. 2004.
- [72] P. Lavieille, F. Lemoine, G. Lavergne, and M. Lebouché, "Evaporating and combusting droplet temperature measurements using two-color laser-induced fluorescence," *Exp. Fluids*, vol. 31, no. 1, pp. 45–55, 2001.
- [73] G. Castanet, P. Lavieille, M. Lebouché, and F. Lemoine, "Measurement of the temperature distribution within monodisperse combusting droplets in linear streams using two-color laser-induced fluorescence," *Exp. Fluids*, vol. 35, no. 6, pp. 563–571, Dec. 2003.
- [74] F. Lemoine, M. Wolff, and M. Lebouche, "Sur la possibilité de mesurer simultanément la température et la concentration en écoulement turbulent.," *CRAS*, pp. 297–303, 1996.
- [75] F. Lemoine and F. Grisch, "Laser Induced Fluorescence," in *Laser Metrology in Fluid Mechanics: Granulometry, Temperature and Concentration Measurements*, Alain Boutier, 2012.
- [76] A. Ashkin and J. M. Dziedzic, "Observation of Resonances in the Radiation Pressure on Dielectric Spheres," vol. 38, no. 23, 1977.
- [77] P. Chylek, V. Ramaswamy, A. Ashkin, and J. M. Dziedzic, "Simultaneous determination of refractive index and size of spherical dielectric particles from light scattering data," vol. 22, no. 15, 1983.
- [78] S. C. Hill, C. K. Rushforth, R. E. Benner, and P. R. Conwell, "Sizing dielectric spheres and cylinders by aligning measured and computed resonance locations: algorithm for multiple orders," vol. 24, no. 15, 1995.
- [79] A. A. Zardini, U. K. Krieger, and C. Marcolli, "White light Mie resonance spectroscopy used to measure very low vapor pressures of substances in aqueous solution aerosol particles," 2006.
- [80] G. Chen, M. Mohiuddin Mazumder, R. K. Chang, J. Christian Swindal, and W. P. Acker, "Laser diagnostics for droplet characterization: Application of morphology dependent resonances," *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 22, no. 2, pp. 163–188, 1996.
- [81] J. Ducastel, "Etude des résonances morphologiquement dépendantes et application à la caractérisation de microparticules en milieu diphasique," 2007.

- [82] F. Onofrio, G. Gréhan, and G. Gouesbet, “Electromagnetic scattering from a multilayered sphere located in an arbitrary beam,” vol. 34, no. 30, 1995.
- [83] Frohn and Roth, *Dynamics of Droplets*. 2000.

## **Etude expérimentale de l'évaporation à haute température de gouttes de combustibles en régime de fortes interactions à l'aide de méthodes optiques.**

L'étude des transferts de chaleur et de masse lors de l'évaporation de gouttes en mouvement et en interaction est un domaine complexe à cause des nombreux phénomènes en jeu. Les principaux paramètres influençant l'évaporation ont pu être étudiés indépendamment grâce à l'utilisation de diagnostics optiques de mesure non-intrusifs sur un train de gouttes monodisperse. Une technique basée sur la fluorescence induite par laser (LIF) à deux couleurs a été développée afin d'obtenir la température moyenne de gouttes de combustible mono et multicomposant. Afin de supprimer l'effet optique parasite engendré par des résonances morphologiquement dépendantes, un absorbeur non fluorescent a été ensemencé à faible concentration. L'évolution de la vitesse et de la taille des gouttes ont été investiguées grâce à une technique par ombroscopie quantitative qui permis la mesure très précise des taux d'évaporation. Une enceinte à haute température a été conçue afin de générer des conditions ambiantes maîtrisées et propices à la formation d'une forte évaporation. Ainsi, les nombres de Nusselt et Sherwood ont été déterminés expérimentalement pour plusieurs combustibles dans diverses conditions d'injection.

L'étude sur différents combustibles et à différentes températures d'injection a confirmé l'influence de la volatilité du combustible sur les transferts. L'influence du nombre de Reynolds a aussi été mise en évidence. L'étude de gouttes multicomposant a permis de montrer différentes phases d'échauffement et d'évaporation lors du temps de transit de la goutte liées aux différences de volatilité des combustibles du mélange. Les effets de différentes compositions ont aussi été investigués.

Mots-clés: gouttes, interaction, combustible, métrologie, Fluorescence induite par laser, multicomposant.

## **Experimental study at high temperature of the vaporization of fuel droplets in strong interaction thanks to optical techniques.**

The study of heat and mass transfers during the evaporation of moving and interacting droplets remain a complex field because of the various mechanisms in action. The main parameters influencing the evaporation of droplets have been studied separately thanks to non intrusive optical diagnostics that have been used on a monodisperse droplet stream. A technique based on two colors laser induced fluorescence (LIF) was developed to measure the temperature of mono and multicomponent evaporating fuel droplets. The liquid fuel is seeded by a non-fluorescent absorber to eliminate the effect of morphological dependant resonances. The size evolution was obtained thanks to shadow imaging which allowed precise measurements of evaporation rates. A hot chamber was conceived to create controlled ambient conditions around the droplets. Thereby, the Nusselt and Sherwood numbers, characterizing the heat and mass transfers, were deduced from the experimental data for various experimental conditions.



The studies allowed confirming the influence of the volatility of the fuel regarding heat and mass transfers. The results also exhibit an influence of the Reynolds number. Finally, the study of multicomponent droplets had shown different heating and evaporating phases during the droplet transit time. Effects of various compositions have also been investigated.

Key-words: droplets, interaction, fuel, metrology, Laser induced fluorescence, multicomponent.