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

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.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Nancy-Université

Ecole Doctorale EMMA

THÈSE

Présentée pour l'obtention du grade de

Docteur de l'Institut National Polytechnique de Lorraine

Spécialité : Mécanique et Energétique

Par

Christophe MAQUA

Contribution à la compréhension de l'évaporation de gouttes de combustible bi-composant à l'aide de méthodes optiques.

Soutenue publiquement le 23 octobre 2007 devant la commission d'examen composée de :

Rapporteurs :	M. Sergei SAZHIN	Professeur, Université de Brighton, Brighton
	M. Cameron TROPEA	Professeur, TUD, Darmstadt
Examinateurs :	M. Gérard GREHAN*	Directeur de recherche, CNRS, Rouen
	M. Frédéric GRISCH	Maître de recherche, ONERA, Palaiseau
	M. Gérard LAVERGNE	Directeur de recherche, ONERA, Toulouse
	M. Fabrice LEMOINE	Professeur, ENSEM, Nancy
Invité :	M. Michel LEBOUCHE	Professeur, UHP, Nancy

* Président du jury

Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée
CNRS UMR 7563
2, avenue de la Forêt de Haye BP 160
54504 Vandoeuvre-Les-Nancy

Président du jury :

Gérard Gréhan, Directeur de recherche, CNRS
LESP, UMR 6614/CORIA - CNRS Université et INSA de Rouen
Avenue de l'Université, BP 12
76801 Saint Etienne Du Rouvray
France
Tél : +33 (0)2 32 95 36 29
Mél : gerard.grehan@coria.fr

Rapporteurs :

Sergei Sazhin, Professeur, Université de Brighton
School of Engineering
University of Brighton
Cockcroft building, Lewes road
Brighton, BN2 4GJ
United Kingdom
Tél : +44 (0) 1273 642677
Mél : S.Sazhin@brighton.ac.uk

Cameron Tropea, Professeur, TUD
Fachgebiet Strömungslehre und
Aerodynamik
TUD
Petersenstraße 30
64287 Darmstadt
Germany
Tél : +49 (0) 6151 16 2854
Mél : ctropea@sla.tu-darmstadt.de

Examinateurs :

Frédéric Grisch, Maître de recherche, ONERA
ONERA/DMPH
Fort de Palaiseau
91761 Palaiseau cedex
France
Tél : +33 (0)1 69 93 61 76
Mél : frederic.grisch@onera.fr

Gérard Lavergne, Directeur de recherche, ONERA
ONERA/DMAE
Avenue Edouard Belin
31055 Toulouse
France
Tél : +33 (0)1 69 93 61 76
Mél : frederic.grisch@onera.fr

Directeur de thèse :

Fabrice Lemoine, Professeur, ENSEM
LEMTA
2 Avenue de la Forêt de Haye
BP 160
54504 Vandoeuvre les Nancy
France
Tél : +33 (0)3 83 59 57 32
Mél : Fabrice.lemoine@ensem.inpl-nancy-.fr

Invité :

Michel Lebouché , Professeur, UHP
LEMTA
2 Avenue de la Forêt de Haye
BP 160
54504 Vandoeuvre les Nancy
France
Tél : +33 (0)3 83 59 56 08
Mél : Michel.lebouche@ensem.inpl-nancy-.fr

A ma femme…

Remerciements

Je tiens à exprimer ma gratitude à toutes les personnes qui ont contribué au bon déroulement de cette thèse au sein du LEMTA.

Je tiens à remercier Fabrice Lemoine, Professeur à l'ENSEM, de m'avoir intégré dans son équipe pour réaliser cette thèse. Je le remercie pour son soutien et la confiance qu'il m'a portée. Ses conseils et ses intuitions m'ont beaucoup aidés durant ces trois années.

Merci aux personnes qui ont accepté de juger mon travail, Sergei Sazhin, Professeur à l'université de Brighton, Cameron Tropea, professeur à l'Université Technologique de Darmstadt, Gérard Gréhan, directeur de recherche au CNRS à Rouen, Gérard Lavergne, directeur de recherche à l'ONERA à Toulouse et Frédéric Grisch Maître de recherche à l'ONERA à Palaiseau

Je remercie également Guillaume Castanet, chargé de recherche au CNRS pour son aide précieuse et pour les discussions intéressantes que nous avons eus autant sur le plan théorique que sur le plan pratique.

Merci également à toute l'équipe du laboratoire d'électronique Alain Delconte, Michel Marchand et Bruno dont l'aide m'a été précieuse tout au long de ma thèse

Je suis reconnaissant à tous mes collègues Michel Wolff, Valérie Deprédurant, Petre Miron, Alexandre Labergue pour leurs disponibilités et leurs bonnes humeurs. Merci à Ophélie Caballina pour ses conseils en projets et en TP.

Je ne saurai oublier les personnes qui m'ont accordés leur attention aux grés de collaboration. Merci à Claire Laurent, Yves Biscoss, Mickael Orain, Pierre Giquel et tous les membres du projet ASTRA. Je remercie particulièrement Nicolas Doué pour son passage à Nancy et son aide pour la réalisation de mesures.

Merci à tous le personnel technique et aux différents membres du laboratoire, permanents et thésard avec lesquels mes rapports furent enrichissants.

Enfin, je remercie tous mes proches pour leur soutien et leur encouragement et en particulier ma femme Audrey Debaecker pour sa présence quotidienne.

Sommaire

Sommaire

Introduction.....1

Chapitre 1 : Modélisation.....4
Nomenclature 5
1.1 Introduction et bibliographie 6
1.2 Modèle à composants discrets 10
1.2.1 Cadre de travail 10
1.2.2 Phase vapeur 12
1.2.3 Modélisation de la phase liquide 18
1.2.4 Les interactions entre les gouttes 24
1.2.5 Caractéristiques du mélange éthanol/acétone 26
1.2.6 Résolution numérique 28
1.3 Conclusion 30

Chapitre 2 : Installation expérimentale et métrologie 31
Nomenclature 32
2.1 Introduction 33
2.2 Dispositifs expérimentaux 33
2.2.1 Génération d'un train de gouttes monodispersées 33
2.2.2 Création de conditions de forte évaporation 35
2.2.3 Combustion du jet de gouttes 38
2.3 Techniques de mesure 39
2.3.1 La vélocimétrie laser Doppler 39
2.3.2 Mesure de diamètre des gouttes 40
2.3.3 Fluorescence induite par laser 44
2.4 Conclusion 48

Chapitre 3 : Mesure de la température de gouttes bicomposant par fluorescence induite par laser.....49
Nomenclature 50
3.1 Introduction et bibliographie 51
3.2 Modélisation du signal de fluorescence émise par un traceur fluorescent en solution dans un liquide 52
3.2.1 Fluorescence induite par laser à trois couleurs 55
3.3 Etalonnages préliminaires 57
3.3.1 Choix des bandes spectrales 57
3.3.2 Dispositif expérimental 60
3.3.3 Etalonnage préliminaire 61
3.3.4 Résolution du système et justification du choix des rapports 65
3.4 Mesure sur des gouttes 69
3.5 Conclusion 73

Chapitre 4 : Mesure de la composition de gouttes bicomposant par fluorescence induite par laser.....74
Nomenclature 75
4.1 Introduction et bibliographie 76

4.2 Modélisation de la fluorescence de l'acétone 77
4.3 Calcul de l'efficacité d'éclairement par la méthode du lancé de rayons 80
4.4 Etalonnages préliminaires 83
4.4.1 Propriétés spectroscopiques de la molécule d'acétone et moyens expérimentaux 83
4.4.2 Détermination des caractéristiques d'absorption 86
4.4.3 Détermination de la correction de quenching 90
4.5 Calculs préliminaires sur les gouttes 94
4.6 Acquisition du signal de fluorescence 96
4.6.1 Dispositif expérimental 96
4.6.2 Traitement de l'image 96
4.6.3 Influence du diamètre des gouttes 99
4.6.4 Influence de la fraction d'acétone 100
4.6.5 Dépendance en température 101
4.6.6 Principe de la mesure de concentration d'acétone sur le jet de gouttes en évaporation 101
4.6.7 Evaluation de l'incertitude 102
4.6.8 Application de la technique 104
4.7 Conclusion 108

Chapitre 5 : Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux 109
Nomenclature 110
5.1 Introduction 111
5.2 Etudes préliminaires 111
5.2.1 Choix du modèle de transfert dans la phase liquide 112
5.2.2 Influence du caractère non-idéal du mélange éthanol-acétone 113
5.2.3 Influence de la correction des phénomènes d'interactions 114
5.3 Influence du système optique sur les mesures de fluorescence induite par laser 115
5.3.1 Cas de la fluorescence induite par laser à 3 couleurs appliquée à la mesure de température 116
5.3.2 Cas de la fluorescence induite de l'acétone 120
5.4 Comparaison des résultats expérimentaux aux calculs numériques 123
5.4.1 Evolution de la température des gouttes en évaporation dans l'air à température ambiante 123
5.4.2 Evolution de la température des gouttes en forte évaporation dans le panache d'air chaud 126
5.4.3 Evolution de la température et de la composition de gouttes en forte évaporation dans le panache d'air chaud 130
5.5 Discussion des résultats et conclusion 133

Conclusions 138

Références bibliographiques 141

Annexe A : Polynômes de Legendre 147

Annexe B : Propriétés physiques et règles de mélange 149

Introduction

Introduction

La majorité des systèmes propulsifs liés à l'aéronautique, à l'automobile, ainsi que les turbines à gaz utilisent des combustibles sous forme liquide. Cette combustion doit se faire à moindre consommation et répondre à des exigences techniques spécifiques tout en respectant des normes de sécurité et de pollution de plus en plus sévères. A titre d'exemple, l'union européenne et le secteur privé ont déclaré, le 20 juin 2007, investir chacun 800 millions d'euros dans le projet « Clean Sky ». Les objectifs de ce projet consiste à réduire les émissions de dioxyde de carbone (CO_2) d'environ 40 % et les émissions d'oxyde d'azote (NOx) de 60 % d'ici 2015.

Le dioxyde de carbone, partiellement responsable de l'effet de serre, est un produit de combustion dont la diminution n'est envisageable qu'avec une réduction drastique de la consommation spécifique des moteurs. Les oxydes d'azote, ayant des conséquences néfastes sur la santé humaine, se forment pour partie à température élevée. Par exemple lorsque la température dans la chambre de combustion n'est pas homogène du fait de la distribution hétérogène de la richesse, elle peut atteindre localement des valeurs suffisamment élevées pour permettre l'oxydation de l'azote. Le recours à des chambres de combustion utilisant une faible richesse (mélanges pauvres) permet une diminution de la température de combustion De plus, l'utilisation d'un module de prévaporisation et de prémélange précédant la chambre de combustion permet d'assurer une distribution relativement homogène de la richesse. Un effort a été engagé depuis plusieurs années sur les technologies à faibles émissions de NOx, principalement focalisées sur la technologie LPP (Lean Premixed Prevaporized), associant la combustion pauvre, la prévaporisation et le prémélange. Des taux de réduction de 60% des NOx ont déjà pu être obtenus. Cependant, la technologie LPP se heurte au problème de la stabilisation de la flamme, avec des risques de retour de flamme et d'auto-inflammation dans le module de prémélange. A ces enjeux écologiques, s'ajoutent les problèmes liés à la certification des moteurs aéronautiques. Pour être certifiés, les moteurs aéronautiques actuels doivent répondre à un ensemble de normes dont celles liées au réallumage en altitude (typiquement -50°C et 0.3 bar). Ces contraintes doivent être intégrées dans le dimensionnement et la conception des chambres de combustions. En particulier, un calcul optimal du volume du foyer et l'optimisation du rapport surface/volume permettent de réduire de manière notable les émissions polluantes et la consommation spécifique.

Ainsi, l'optimisation de la combustion nécessite une compréhension fine des différents mécanismes mis en jeu, en partant de l'injection du combustible sous forme d'un brouillard de fines gouttelettes polydispersées en taille et en vitesse, pour aller vers l'évaporation de ces gouttelettes et la combustion de la vapeur produite. Dans cette étude, nous nous focaliserons essentiellement sur les phénomènes de transport de masse et de chaleur liés à l'évaporation. Un degré de complexité supplémentaire provient du caractère fortement multicomposant des combustibles usuels, tels que le Diesel, l'essence ou le kérosène utilisé dans les moteurs aéronautiques. Un tel combustible peut être constitué de plusieurs centaines de corps purs, plus ou moins volatils et ne s'évaporant donc pas à la même vitesse. Le caractère

multicomposant des combustibles aura donc un effet déterminant sur la distribution de la richesse locale, la cinétique de combustion et donc sur la cinétique de formation des polluants et les délais d'allumage.
Le développement et la validation de modèles d'évaporation de gouttes multicomposant doivent s'appuyer sur des données expérimentales fines et pertinentes, permettant de caractériser les échanges thermiques et massiques entre la goutte et la phase gazeuse.
L'expérimentation sur des dispositifs et des combustibles réels demeure extrêmement difficile et ne permet pas d'apporter une compréhension physique fine des phénomènes. En effet, il est difficile de séparer les influences des différents paramètres aérothermiques caractérisant le spray et son environnement tels que la distribution granulométrique, la température de la phase gazeuse, la composition et la vitesse d'injection. De plus, les combustibles réels comportent un spectre trop large de composants et leurs compositions sont souvent mal maîtrisées. Pour ces principales raisons, il est difficile de développer des diagnostics optiques aptes à appréhender les transferts de chaleur et de masse entre les phases; d'autre part la comparaison des données expérimentales aux modèles s'avère souvent hasardeuse et peu riche d'enseignements. Ainsi, le développement de diagnostics optiques est entrepris sur une configuration d'injection simple utilisant par exemple un mélange binaire de deux corps purs dont les propriétés physiques et spectroscopiques sont parfaitement maîtrisées. Dans cette configuration, les gouttes sont injectées les unes à la suite des autres et de manière périodique. Les principaux avantages d'une telle configuration sont principalement :

- la maîtrise et l'indépendance des conditions d'injection initiales (vitesse, taille, température et composition) et la maîtrise des conditions aux limites rendent aisée la comparaison avec les simulations numériques.
- La grande reproductibilité du jet conduit à opérer dans un environnement extrêmement favorable pour le développement de diagnostics optiques.

Dans une telle configuration, les évolutions temporelles de la température, du diamètre, de la vitesse et de la composition des gouttes doivent pouvoir être mesurées. L'objectif de cette thèse est essentiellement focalisé sur le développement de techniques de mesure, fondées sur la fluorescence induite par laser (F.I.L.), permettant de déterminer à la fois la température et la composition de gouttes bicomposant. Le diamètre et la vitesse des gouttes seront déterminés par des techniques plus usuelles et ayant déjà fait l'objet de nombreux travaux. Le combustible retenu ici est un mélange d'éthanol et d'acétone. Ces deux produits, miscibles, présentent des propriétés physiques relativement semblables ; cependant l'acétone présente une volatilité très supérieure à celle de l'éthanol. De plus les propriétés de fluorescence de l'acétone en phase liquide seront utilisées.
Le mémoire est divisé en cinq chapitres. Le premier présente les différentes approches théoriques de l'évaporation de gouttes multicomposant. L'approche quasistationnaire 1D à composants discrets est développée en proposant une résolution analytique de la phase vapeur et une résolution numérique du champ de température et de composition en phase liquide.

L'objet du second chapitre est la présentation du dispositif expérimental du jet monodisperse. Ce chapitre décrit également les différentes conditions aérothermiques dans lesquelles évolue le jet de gouttes. Enfin, les techniques de mesure relatives à la vitesse et aux diamètres des gouttes, par utilisation de la vélocimétrie laser et de l'interférométrie en diffusion avant sont détaillées.

Le troisième chapitre présente le développement de la technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs appliquée à la mesure de la température de gouttes bicomposant. En particulier, les effets liés à la composition du liquide et à la température sur le signal de fluorescence peuvent êtres découplés.

Le quatrième chapitre aborde le développement d'une mesure de composition fondée sur la fluorescence induite par laser de l'acétone en phase liquide. Les principales difficultés liées au développement de la technique et l'élaboration du modèle d'inversion du signal de fluorescence sont exposées.

Le cinquième chapitre présente une comparaison des mesures (température, composition et diamètre) avec des simulations numériques fondées sur le modèle à composants discrets. Les forces et les faiblesses de ces comparaisons permettront de dégager des améliorations potentielles de la modélisation.

Enfin, nous conclurons en résumant les principaux acquis de ce travail, puis nous exposerons les perspectives.

Chapitre 1 : Modélisation

Nomenclature

Symboles latins

a	Diffusivité thermique	m^2/s
B_M	Nombre de Spalding massique	
B_T	Nombre de Spalding thermique	
C	Paramètre de distance	
Cp	Capacité calorifique	$J/kg/K$
D	Diamètre de la goutte	μm
D_g	Diffusivité massique gazeuse	m^2/s
D_l	Diffusivité massique liquide	m^2/s
Lv	Chaleur latente	J/kg
$\dot{m}$	Débit massique d'évaporation	kg/s
Nu	Nombre de Nusselt	
P	Polynôme de Legendre	
Pe	Peclet	
Pr	Nombre de Prandtl	
Q_L	Flux de chaleur	W/m^2
R	Rayon	m
r	Coordonnée sphérique radiale	m
Re	Nombre de Reynolds	
r_F	Rayon du film	m
Sc	Nombre de Schmidt	
Sh	Nombre de Sherwood	
T	Température	K
t	Temps	ms
v	Vitesse radiale	m/s
$V_r\, V_\theta\, V\varphi$	Composantes de la vitesse en coordonnées sphériques	m/s
Y	Fraction massique	

Symboles grecs

λ	Conductivité thermique	$W/m/K$
φ	Coordonnée sphérique angulaire	
ρ	Masse volumique	
θ	Coordonnée sphérique angulaire	
μ	Viscosité dynamique	$Pa.s$
χ	Fraction molaire	

Indices

a	Relatif à l'acétone
e	Relatif à l'éthanol
g	Relatif à la phase gazeuse
i	Relatif à l'espèce i
l	Relatif à la phase liquide
ref	Relatif à un état de référence
S	Relatif à une condition aux limites à la surface du domaine
∞	Relatif à une condition aux limites situées à l'infini

Chapitre 1

1.1 Introduction et bibliographie

Les problèmes de transfert de masse et de chaleur entre une phase liquide et une phase gazeuse sont fréquemment rencontrés dans les processus industriels, en particulier dans le cas de la combustion de gouttelettes. Les modèles d'évaporation des gouttes implantés dans les codes de calculs ne prennent pas souvent en compte l'aspect multicomposant des combustibles et sont développés pour des produits monocomposant. En pratique, cette hypothèse n'est pas valable puisque les combustibles usuels tels que le kérosène, l'essence ou le diesel sont multicomposant. Or, cette complexité supplémentaire a un effet direct sur la durée de vie de la goutte et le délai d'allumage (Doué, 2005). Les phénomènes physiques intervenant dans les changements de phase à la surface de gouttes multicomposant doivent être décrit précisément pour chaque constituant. Chaque espèce du combustible a ses caractéristiques propres ; les différences de volatilité et de diffusion des espèces en phase vapeur se traduisent par des taux d'évaporation différents. Ces derniers engendrent une modification des caractéristiques thermique et massique de la surface de la goutte (composition et température de surface). Ces variations sont alors transportées par les phénomènes de convection et de diffusion massique et thermique de la phase liquide, ce qui engendre des gradients de concentration et de température évoluant au cours du temps dans la goutte. Différentes approches permettent d'aborder l'évaporation de gouttelettes de combustibles multicomposant.

♦ Les modèles à composants discrets

L'approche la plus courante pour traiter le problème de gouttes multicomposant est celle à composants discrets. Cette méthode consiste à traiter de manière indépendante chaque constituant de la goutte (Landis et Mills, 1974 ; Sirignano, 1983). Le problème est traité de façon quasi-permanente en supposant l'établissement instantané de l'équilibre thermodynamique entre la phase liquide et la phase gazeuse. D'une manière générale, cet équilibre est décrit par la loi de Raoult, dans l'hypothèse des mélanges idéaux. Les écarts à l'idéalité des mélanges peuvent être pris en compte en phase gazeuse en introduisant le paramètre fugacité du mélange (Burger et al., 2003 ; Hohmann et Renz, 2003).
Les phénomènes de transport en phase liquide peuvent être décrits par différents modèles de complexité croissante, le plus simple est basé sur la diffusion infinie, où la température et la composition sont uniformes dans la goutte mais variables dans le temps. La diffusion limitée (Sirignanno, 1983 ; Kneer et al., 1993) suppose une diffusion purement moléculaire de la chaleur et des espèces se traduisant par une dépendance uniquement radiale du champ de composition et de température. Un modèle plus raffiné développé par Prakkasch et Sirignano (1978) et (1980), prend en compte les recirculations internes à la goutte résultant des forces de frottement à la surface de la goutte. Dans cette approche, la solution du vortex de Hill modélise le champ de vitesse interne. Ce modèle a été étendu pour prédire le comportement

de gouttes multicomposant en évaporation (Tong et Sirignano, 1986). La diffusion effective propose de pondérer les coefficients de diffusion massique et thermique des équations de diffusion limitée en prenant en compte les phénomènes de circulations internes afin d'obtenir le même résultat sur les grandeurs moyennes (Abramzon et Sirignano, 1989).

♦ La thermodynamique continue

Lorsque le nombre de composants dans la goutte devient important, le temps de calcul augmente très fortement. Une alternative est l'approche par la thermodynamique continue développée par Hallett (2000) dans le cadre de la diffusion infinie (Hallett et Grimwood) ou de la diffusion effective (Abdel-Qader et Hallett). La thermodynamique continue consiste à regrouper les composants de même nature en groupes. Chaque groupe est caractérisé par une fraction molaire totale de mélange χ_j dont le comportement est décrit par l'évolution d'une fonction de distribution $f_j(I)$. La variable de distribution I peut représenter la masse molaire, ou encore le nombre d'atomes de carbone (Le Clercq et Bellan, 2004). Les fonctions de distribution sont caractérisées par leur moment θ et leur second moment central ψ.

♦ Les modèles à courbes de distillation

Un modèle plus récent, dit à « courbes de distillation », considère une seule variable (la masse molaire du combustible, par exemple) afin de décrire le comportement de gouttes multicomposant en évaporation (Burger et al., 2003). L'évaporation de gouttes de combustible multicomposant est caractérisée par un processus de distillation. Les composants avec la plus forte volatilité disparaissent rapidement, alors que les composants avec une volatilité plus faible restent dans la goutte. L'évaporation est ensuite limitée par le processus de diffusion massique à l'intérieur de la goutte. L'influence de la résistance induite par la diffusion sur l'évaporation est caractérisée par le nombre de Peclet Pe :

$$Pe_i = \frac{\dot{m}}{2\pi D D_{l,i} \rho_l} \tag{1.1}$$

où $\dot{m}$ est le débit massique d'évaporation totale, D le diamètre de la goutte, $D_{l,i}$ la diffusivité massique de l'espèce *i* en phase liquide, et ρ_l la masse volumique du liquide.
La variation de la composition (représentée par celle de la masse molaire) des gouttes est liée au nombre de Peclet, il peut être interprété comme le rapport entre le temps de vie caractéristique de la goutte et celui caractéristique de la diffusion massique. Le cas où le nombre de Peclet tend vers 0 représente la diffusion infinie ; dans ce cas, l'évaporation est entièrement gouvernée par la distillation fractionnée. En revanche si le nombre de Peclet est très grand, l'évaporation est limitée par la diffusion des espèces et dans ce cas, la composition de la goutte peut être considérée comme quasi-constante. Pour des nombres de Peclet

intermédiaires, l'évolution de la fraction molaire est déterminée à l'aide d'une équation dépendant de la fraction massique évaporée. La température et la composition calculées dans le cadre de la théorie des courbes de distillation sont supposées uniformes dans la goutte et dépendent du temps. L'intérêt de ce modèle de distillation réside dans le fait qu'il est analytique et présente donc des temps d'exécution relativement faibles, puisqu'il n'y a pas d'équations différentielles à résoudre.

♦ Influence des propriétés physiques

Kneer et al. (1993) s'intéressent aux effets des propriétés thermophysiques de la phase liquide et de la phase gazeuse. Les équations du problème sont modifiées en tenant compte des variations des propriétés physiques et thermodynamiques au sein même de la goutte en fonction de la température et de la composition, en ajoutant un terme de dérivée locale pour la diffusivité thermique et massique, la densité … Plus particulièrement cette étude est faite pour un mélange d'Hexane et de Tétra-décane, avec une température ambiante comprise entre 800 K et 2000 K et une pression de 10 bars. Les calculs sont abordés de trois manières différentes. Un premier modèle à propriétés physiques variables tient compte des variations spatiales et temporelles des propriétés physiques dans la goutte. Un deuxième modèle à propriétés physiques quasi-constantes réactualise celles-ci à chaque pas de temps, en les considérant uniformes. Dans le troisième modèle, les propriétés physiques sont constantes et déterminées à une température de référence. Pour des températures de gaz modérées (800 K), le modèle à propriétés variables et celui à propriétés quasi-constantes donnent des résultats comparables, avec une différence notable par rapport au modèle à propriétés physiques constantes. A des températures de gaz plus élevées (2000 K), les écarts entre les différents modèles sont plus importants du fait des gradients de température importants dans la goutte, qui induisent des gradients de propriétés physiques notables.

♦ Modélisation de l'évaporation de produits bicomposant

Klingsporn et Renz (1994) ont étudié le cas de l'évaporation de sprays binaires, en prenant en compte la variation des propriétés physiques de la phase liquide, comme la conductivité thermique ou la diffusion des espèces en fonction de la température et de la composition. Les conditions aux limites sont données par une température ambiante de 500 °C et une pression de 45 bars. Les auteurs s'intéressent à montrer la différence obtenue entre un modèle de diffusion limitée et un modèle de diffusion infinie et à mettre en évidence l'importance des mécanismes de transport et de diffusion à l'intérieur de la goutte. Des données expérimentales sur l'évolution du diamètre de gouttes composées de n-décane et de n-heptane (20%/80%) en évaporation à l'air ambiant sont comparées aux calculs et donnent un très bon accord aux temps courts. Aux premiers instants, l'évaporation du composant le plus volatil est dominante et la régression de diamètre est proche de celle du n-heptane pur (figure 1.1). Aux temps longs, l'évaporation suit le comportement du n-heptane.

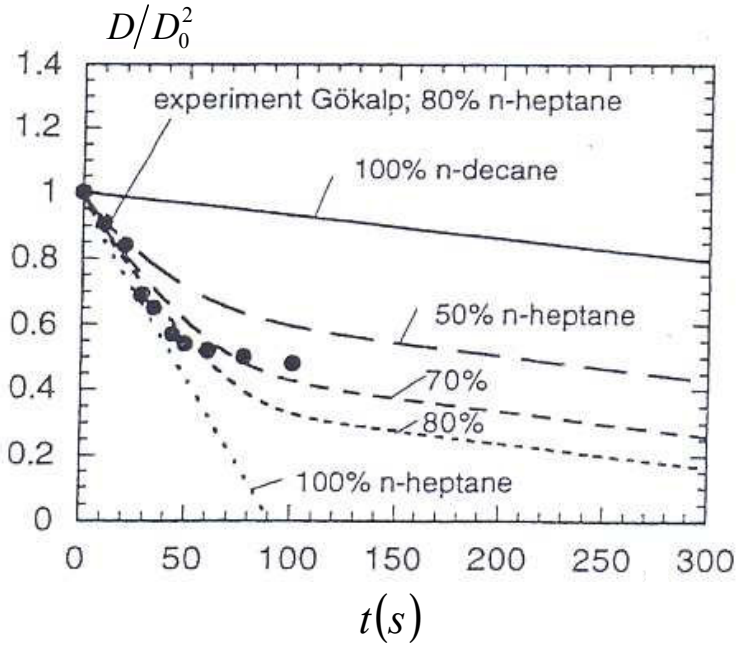


Figure 1.1 : Evolution du diamètre de goutte pour différents mélanges de n-heptane et n-décane en évaporation à l'air ambiant (Diamètre initial : 1 mm, température initiale : 27°C, pression 1bar) (Klingsporn et Renz, 1994)

Dans des conditions semblables à celles rencontrées dans les moteurs, la température de surface des gouttes augmente rapidement dans une première phase, alors que la température au centre, limitée par la diffusion, reste constante. Ensuite, dans une deuxième phase, l'augmentation de la température au centre de la goutte est plus rapide (figure 1.2).
Concernant la composition, la concentration massique de n-heptane à la surface subit une diminution rapide et atteint une valeur seuil à partir de laquelle elle devient quasi-constante. La variation de la composition au centre de la goutte intervient aux temps longs, ce qui est attribué à des phénomènes de diffusion des espèces, qui sont très lents (figure 1.3).

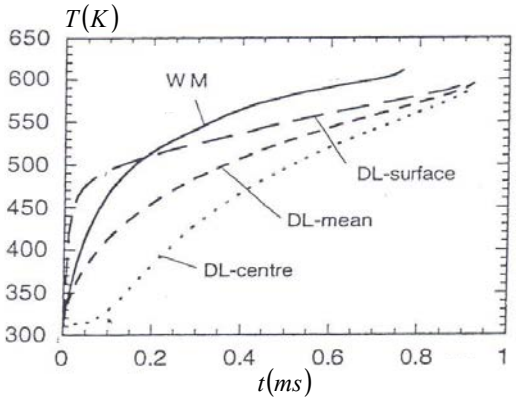


Figure 1.2 : Evolution de la température de gouttes de n-décane/n-heptane (50%/50%) de diamètre 20 µm dans une atmosphère à 500°C et 45 bars *(Klingsporn et Renz, 1994)*

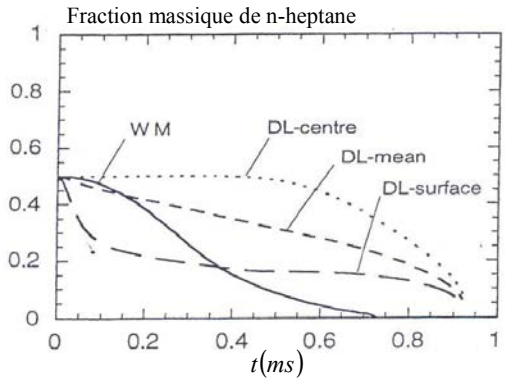


Figure 1.3 : Evolution de la composition de gouttes de n-décane/n-heptane (50%/50%) de diamètres 20 µm dans une atmosphère à 500°C et 45 bars *(Klingsporn et Renz, 1994)*

Hohmann et Renz (2003) proposent un travail similaire à haute pression, en tenant compte de la non-idéalité de la phase gazeuse et de la solubilité des gaz dans le liquide à la surface de la goutte.
La plupart des études présentes dans la littérature s'intéressent à l'évaporation de gouttes à haute température, lorsque le temps caractéristique de modification de la goutte est petit devant les temps de transfert de la phase liquide. Peu d'informations sont disponibles sur l'évaporation de gouttes dans une ambiance où la température est relativement faible. Cette situation est intéressante dans le cas des conduites de pré-mélange des turbines à gaz, où la température des gaz est en dessous du point d'ébullition du combustible. Dans ce cas, les processus de transfert de chaleur et de masse en phase liquide sont importants et la phase d'échauffement de la goutte ne peut plus être négligée.
Chen et al. (1997) se sont intéressés à l'évaporation de gouttes générées à la demande, composées d'hexane et de décane, évoluant en atmosphère contrôlée. Le diamètre et la vitesse des gouttes sont mesurés en utilisant un dispositif d'anémomètre phase Doppler (PDA) et sont comparés aux résultats obtenus par le modèle à composants discrets, en utilisant le cadre de la diffusion infinie et de la diffusion limitée pour la modélisation des phénomènes de transport dans la phase liquide.

L'ensemble de ces modèles nécessite une validation expérimentale, dans une configuration où les paramètres sont facilement contrôlables. En particulier, certaines études se sont intéressées au cas de gouttes en évaporation ou en combustion dans une configuration de type jet monodisperse. Cette configuration géométrique simple est très intéressante pour son caractère stationnaire. A une position donnée du jet, les gouttes ont toutes la même histoire en vitesse, en taille, en température. La possibilité de contrôler ces paramètres en jouant sur la fréquence d'injection, la pression d'injection et la température initiale rend cette méthode d'autant plus attractive qu'elle permet de quantifier l'influence de chaque paramètre. Dans la suite de ce mémoire, nous nous intéresserons à l'évaporation d'un mélange d'éthanol et d'acétone dans une configuration de type jet monodisperse, dans le cadre du modèle à composants discrets.

1.2 Modèle à composants discrets

1.2.1 Cadre de travail

Les processus physiques intervenant dans l'évaporation sont nombreux (Figure 1.4) et intimement liés. Une goutte évoluant en évaporation dans l'air va voir sa température et sa composition varier en fonction des flux liés à l'évaporation, aux échanges convectifs et au rayonnement thermique auxquels elle est soumise. En supposant, à chaque instant l'équilibre thermodynamique entre la phase liquide et la phase gazeuse dans un film fin entourant la goutte, la loi de Raoult permet de quantifier la fraction de vapeur de chacune des espèces en fonction de l'état de la phase liquide, de la pression et de la température. Dans le cas d'une ambiance non saturée en vapeur, à une température différente de celle de la goutte, il s'établit

sous l'effet de la diffusion un gradient thermique et massique. Ce gradient est responsable de la mise en mouvement des molécules en phase gazeuse. Dans cette configuration, l'évaporation des composants liquides nécessite un apport d'énergie prélevé à la phase liquide sous la forme d'un flux thermique qui induit un refroidissement de la goutte. L'influence du flux convectif dépend de la vitesse et également de la différence de température entre la goutte et le milieu ambiant. Dans le cas où la température ambiante est plus élevée, le flux convectif induit un apport de chaleur à la goutte. La connaissance des ces flux à chaque instant conditionne l'état futur de la goutte.

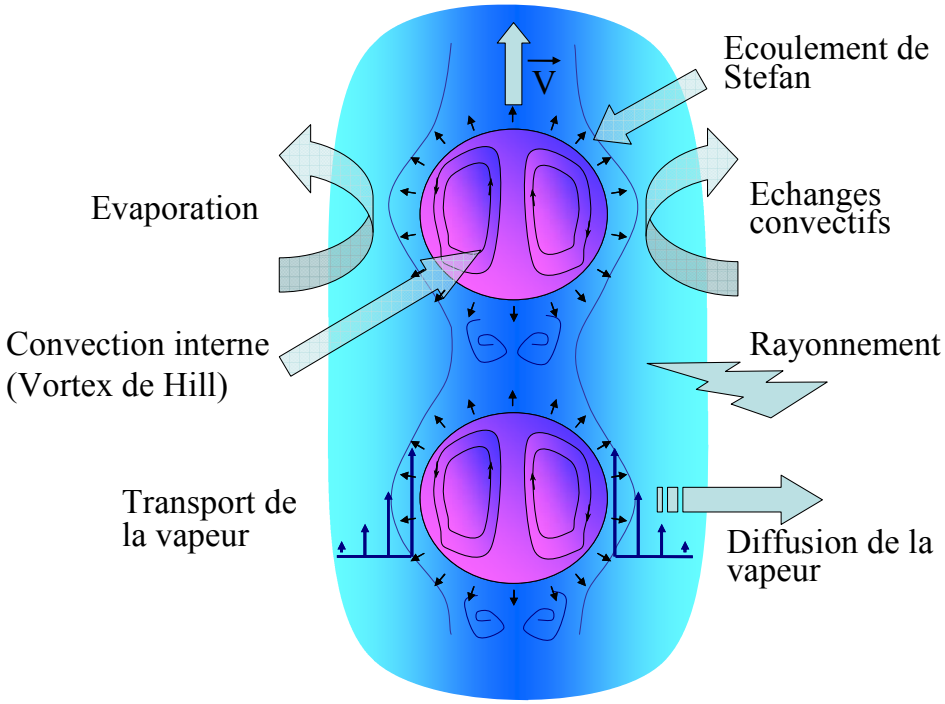


Figure 1.4 : Phénomènes intervenant dans l'évaporation de gouttes

La modélisation de ces différents phénomènes nécessite de faire des hypothèses simplificatrices résumées dans les thèses de Doué (2005) et de Castanet (2004) et dans le livre de Borgui et Champion (2000).

1. L'hypothèse de quasi-stationnarité est faite pour l'établissement des transferts massiques et thermiques. L'équilibre thermodynamique entre la phase liquide et la phase gazeuse s'établit instantanément. Ainsi l'écoulement et les transferts de masse et d'énergie s'adaptent immédiatement aux conditions limites locales et aux dimensions de la goutte. De plus, les effets de tension superficielle sur la pression sont négligés. En effet la tension superficielle d'un mélange d'éthanol et d'acétone est de l'ordre de *30 mN/m*. Pour des gouttes d'une centaine de micromètre, la discontinuité de la pression à l'interface représente 0.5% de la pression atmosphérique. Il y a donc continuité de la pression à l'interface. Il résulte que la pression partielle de vapeur dans le gaz au voisinage de l'interface est prise égale à la pression de vapeur saturante du liquide (loi de Raoult).

2. Le diamètre des gouttes est suffisamment faible (de *90* à *200 µm* dans ces travaux), ainsi les gouttes restent sphériques. Dans le cas le plus défavorable, pour des gouttes d'éthanol ou d'acétone de *100 µm* à une vitesse de 10 *m/s*, le nombre de Weber défini comme le rapport entre les forces d'inertie en phase gazeuse et celles liées à la tension superficielle vaut *0.5*. De plus le liquide est suffisamment loin de son point critique et en l'absence de convection forcée à l'extérieur de la goutte et pour des gouttes suffisamment petites pour négliger les effets de la gravité, les processus de transport de masse et d'énergie sont à symétrie sphérique.

3. La pression est uniforme dans le gaz, comme les propriétés physiques de la phase gazeuse qui sont calculées à un état de référence.

4. Les transferts radiatifs entre la goutte et son entourage sont négligés, étant donné les niveaux de température relativement bas (T<600 K).

5. La phase gazeuse est constituée d'un mélange idéal de gaz parfaits. Il n'y a donc pas de réaction chimique dans le gaz.

6. Il n'y a pas de réaction chimique entre les différentes espèces du liquide.

1.2.2 Phase vapeur

Équation de la masse

Dans le cadre des hypothèses évoquées précédemment les différents flux liés au transport et à la diffusion peuvent être écrit comme sur la figure 1.5, entre deux sphères concentriques de rayons respectifs *r* et *r+dr*.

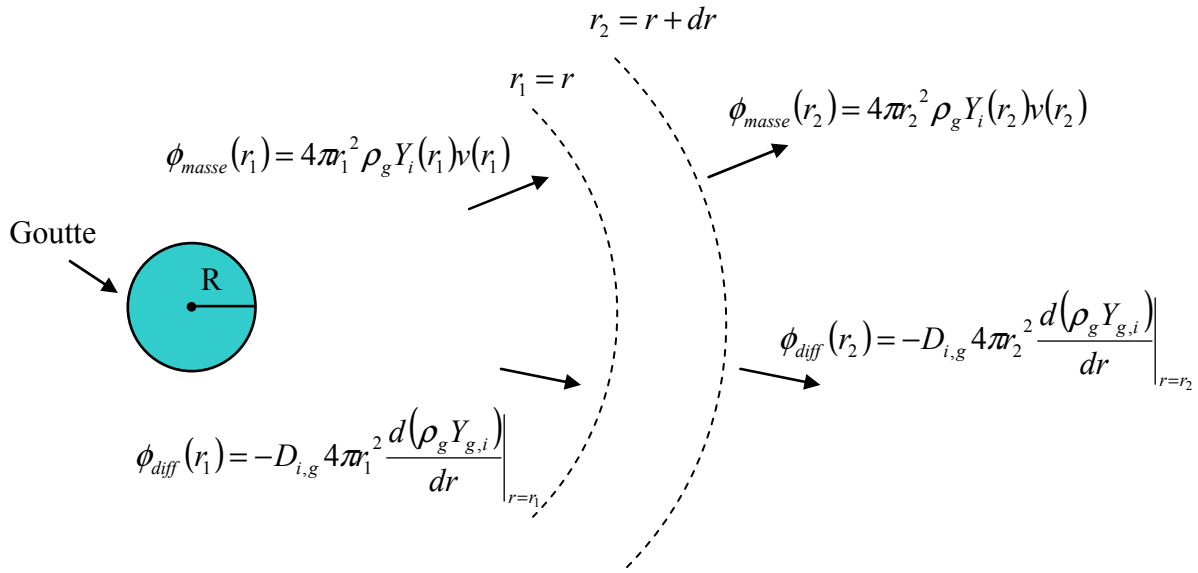


Figure 1.5 : Bilan de masse sur une tranche dr

v est la vitesse radiale du gaz, ϕ_{diff} et ϕ_{masse} représentent respectivement les flux diffusif et de transport massique. Un développement limité au premier ordre de ce bilan de masse donne l'équation d'évolution des espèces, en fonction du rayon r, de la masse volumique du gaz ρ_g, de la diffusivité $D_{i,g}$ de l'espèce i dans le mélange gazeux et de la fraction molaire $Y_{i,g}$:

$$\frac{d}{dr}\left(r^2\left(\rho_{g,ref} v Y_{i,g} - \rho_{g,ref} D_{i,g,ref} \frac{d}{dr}\left(Y_{i,g}\right)\right)\right) = 0 \tag{1.2}$$

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 v_R :

$$\dot{m} = 4\pi\rho_l R^2 v_R = 4\pi\rho_{g,ref} r^2 v \tag{1.3}$$

L'intégration de l'équation 1.2, combinée à l'équation 1.3 s'écrit :

$$\frac{\dot{m}}{4\pi} Y_{i,g} - r^2 \rho_{g,ref} D_{i,g,ref} \frac{d}{dr}\left(Y_{i,g}\right) = Cte \tag{1.4}$$

Or, à l'interface, le débit massique $\frac{\dot{m}_i}{4\pi}$ est égal au flux de masse évaporé $\frac{\dot{m}}{4\pi} Y_{i,g}$, diminué du flux de masse échangé par diffusion $r^2 \rho_g D_{i,g} \left.\frac{d\left(Y_{i,g}\right)}{dr}\right|_{r=R}$:

$$\frac{\dot{m}}{4\pi} Y_{i,g} - r^2 \rho_{g,ref} D_{i,g,ref} \left.\frac{d\left(Y_{i,g}\right)}{dr}\right|_{r=R} = \frac{\dot{m}_i}{4\pi} \tag{1.5}$$

Les transferts de masse peuvent s'étudier dans le cadre de la théorie du film (Bird et al., 1960). Dans cette approche quasi-stationnaire, la résistance aux échanges entre la goutte et le milieu extérieur est matérialisée par un film mince d'épaisseur r_F entourant la goutte, aux frontières duquel sont reportées les conditions à l'infini :

$$Y_{i,g}\left(r = r_F\right) = Y_{i,\infty} \tag{1.6}$$

La condition aux limites permet de déterminer la constante résultante de l'intégration de (1.5) en introduisant le rapport $\dot{\beta}_i = \frac{\dot{m}_i}{\dot{m}}$ ($\dot{m}_i$ étant le débit massique d'évaporation pour l'espèce i) :

$$Y_{i,g} = \dot{\beta}_i + \left(Y_\infty - \dot{\beta}_i\right) e^{\frac{\dot{m}}{4\pi\rho_{g,ref} D_{i,g,ref}}\left(\frac{1}{r_F} - \frac{1}{r}\right)} \tag{1.7}$$

Ainsi le débit massique peut être évalué à la surface de la goutte en introduisant le nombre de Spadling massique $B_{Mi} = \dfrac{Y_S - Y_\infty}{\dot{\beta}_i - Y_S}$:

$$\dot{m} = 4\pi\rho_{g,ref} D_{i,g,ref} R r_F \frac{\ln\left(1 + B_{Mi}\right)}{r_F - R} \tag{1.8}$$

D'autre part, le rapport entre les échanges convectifs caractérisés par la différence entre la fraction molaire à la surface $Y_{i,g,S}$ et la fraction molaire à l'infini $Y_{i,g,\infty}$ et les échanges diffusifs en phase gazeuse $D\dfrac{d\left(Y_{i,g}\right)}{dr}\bigg|_{r=R}$ sont quantifiés par le nombre de Sherwood de l'espèce *i* défini par :

$$Sh_i = -\frac{D\dfrac{d\left(Y_{i,g}\right)}{dr}\bigg|_{r=R}}{Y_{i,g,S} - Y_{i,g,\infty}} \tag{1.9}$$

L'introduction du nombre de Sherwood dans l'équation (1.5) permet d'évaluer le débit massique d'évaporation :

$$\dot{m} = \pi D \rho_{g,ref} D_{i,g,ref} Sh_i B_{Mi} \tag{1.10}$$

La combinaison des équations (1.8) et (1.10) permet d'identifier le nombre de Sherwood de l'espèce *i* :

$$Sh_i = \frac{\ln\left(1 + B_{Mi}\right)}{B_{Mi}} \frac{2r_F}{r_F - R} \tag{1.11}$$

Abramzon et Sirignano (1989) proposent alors de tenir compte des effets convectifs, selon la loi du film, en évaluant le terme $\dfrac{2r_F}{r_F - R}$ par

$$\frac{2r_F}{r_F - R} = 2 + \frac{Sho_i - 2}{F\left(B_{Mi}\right)} \tag{1.12}$$

où Sho_i le nombre de Sherwood de l'espèce *i*, sans évaporation, donné par la corrélation de Ranz et Marshall (1952) :

$$Sho_i = 2 + 0.6\,\mathrm{Re}^{\frac{1}{2}}\,Sc_i^{\frac{1}{3}} \tag{1.13}$$

où Re et Sc représentent respectivement le nombre de Reynolds et le nombre de Schmidt ; ils sont calculés de la façon suivante :

$$\mathrm{Re} = \frac{\rho_g D(V - V_\infty)}{\mu_{g,ref}} \tag{1.14}$$

$$Sc_i = \frac{\mu_{g,ref}}{\rho_{g,ref} D_{i,g,ref}} \tag{1.15}$$

où $\mu_{g,ref}$, $\rho_{g,ref}$ sont la viscosité dynamique et la masse volumique du gaz calculées à l'état de référence, $D_{i,g,ref}$ représente la diffusivité de l'espèce *i* dans le gaz, V la vitesse de la goutte, V_g la vitesse du gaz et ρ_g la masse volumique du gaz calculée à la température T_∞.

Équation de la chaleur

A l'aide des mêmes hypothèses que précédemment les différents flux de chaleur impliqués peuvent être décrits comme sur la figure 1.6

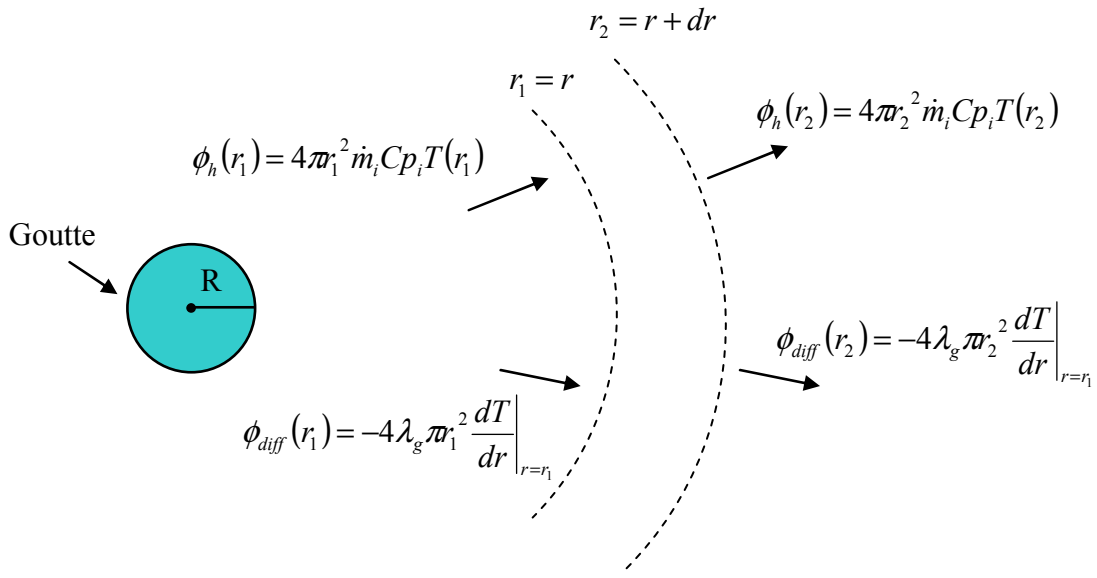


Figure 1.6 : Bilan énergétique sur une tranche dr

v est la vitesse radiale du gaz, ϕ_{diff} et ϕ_h représentent respectivement les flux diffusif et de transport thermique. Un développement limité au premier ordre de ce bilan énergétique donne l'équation d'évolution de la chaleur en fonction du flux d'évaporation massique $\dot{m}$, du

rapport $\dot{\beta}_i = \dot{m}_i / \dot{m}$, de la capacité calorifique $Cp_{i,g,ref}$ de l'espèce *i*, de la de la conductivité thermique du gaz $\lambda_{g,ref}$ et de la température T :

$$\frac{d}{dr}\left(\dot{m}\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref} T - 4\pi r^2 \lambda_{g,ref} \frac{d}{dr} T \right) = 0 \tag{1.16}$$

La chaleur reçue par la goutte $4\pi r^2 \lambda_{g,ref} \left.\frac{dT}{dr}\right|_{s,r=R^+}$ en provenance de la phase gazeuse est divisée en deux contributions, une partie servant à vaporiser la goutte $\sum_{i=1}^{n} L_{Vi} \dot{m}_i$, l'autre partie étant le flux de chaleur algébrique entrant Q_L :

$$4\pi r^2 \lambda_g \left.\frac{dT}{dr}\right|_{s,r=R^+} = \sum_{i=1}^{n} L_{Vi} \dot{m}_i + Q_L \tag{1.17}$$

De façon analogue aux transferts de masse, les transferts de chaleur peuvent s'étudier dans le cadre de la théorie du film (Bird et al., 1960). Dans cette approche quasi-stationnaire, la résistance aux échanges entre la goutte et le milieu extérieur est matérialisée par un film mince d'épaisseur r_F entourant la goutte, aux frontières duquel sont reportées les conditions à l'infini :

$$T_{i,g}\left(r = r_F\right) = T_\infty \tag{1.18}$$

Les conditions aux limites 1.17 et 1.18 permettent d'intégrer l'équation 1.16 selon :

$$T = T_S - \frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref}} \left(\sum_{i=1}^{n} \dot{m}_i L_{Vi} + \frac{Q_L}{\dot{m}} \right) + \left(T_\infty - T_S + \frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref}} \left(\sum_{i=1}^{n} \dot{m}_i L_{Vi} + \frac{Q_L}{\dot{m}} \right) \right) e^{-\frac{\dot{m}\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref}}{4\pi\lambda_{g,ref}} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{r_\infty} \right)} \tag{1.19}$$

Ainsi le débit massique d'évaporation peut être évalué à la surface de la goutte en introduisant le nombre de Spalding thermique, $B_T = \dfrac{\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref} \left(T_\infty - T_S\right)}{\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i L_{Vi} + \dfrac{Q_L}{\dot{m}}}$:

$$\dot{m} = \frac{4\pi\lambda_g R^2}{\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref}} \frac{\ln(1+B_T)}{r_F - R} \frac{r_F}{R} \tag{1.20}$$

Comme pour les espèces, le rapport entre les échanges convectifs et diffusifs d'origine thermique est caractérisé par le nombre adimensionnel de Nusselt

$$Nu = \frac{D \left. \frac{dT}{dr} \right|_{r=R}}{T_\infty - T_S} \tag{1.21}$$

L'introduction du nombre de Nusselt (1.21) et l'équation (1.17) permettent d'évaluer le débit massique d'évaporation :

$$\dot{m} = \pi D \frac{\lambda_{g,ref}}{\sum_{i=1}^{n} \dot{\beta}_i Cp_{i,g,ref}} NuB_T \tag{1.22}$$

La combinaison des équations 1.20 et 1.22 permet d'identifier le nombre de Nusselt sous la forme :

$$Nu = \frac{\ln(1+B_T)}{B_T} \frac{2r_F}{r_F - R} \tag{1.23}$$

Abramzon et Sirignano (1989) proposent alors de tenir compte des effets convectifs en évaluant le terme $\frac{2r_F}{r_F - R}$:

$$\frac{2r_F}{r_F - R} = 2 + \frac{Nu_o - 2}{F(B_T)} \tag{1.24}$$

où *Nuo* est le nombre de Nusselt, sans évaporation donné par la corrélation de Ranz et Marshall (1952) :

$$Nu_o = 2 + 0.6\,\mathrm{Re}^{\frac{1}{2}}\,\mathrm{Pr}^{\frac{1}{3}} \tag{1.25}$$

où *Re* est défini à l'équation (1.14) et *Pr* représente le nombre de Prandtl calculé de la façon suivante :

$$\mathrm{Pr} = \frac{\mu_{v,ref}}{\rho_{v,ref} a_{g_i}} \tag{1.26}$$

où $\mu_{v,ref}$, $\rho_{v,ref}$ sont la viscosité dynamique et la densité volumique du gaz calculées à un état de référence, a_{g_i} représente la diffusivité thermique de l'espèce *i*.

1.2.3 Modélisation de la phase liquide

Nous allons décrire dans cette section les différents modèles décrivant les transferts de chaleur et de masse dans la phase liquide.

♦ **Modèle à Vortex de Hill**

Modélisation du champ de vitesse de la goutte

Les forces de frottement exercées par le gaz sur le liquide au niveau de la surface de la goutte induisent un déplacement du liquide, créant une circulation de celui-ci à l'intérieur de la goutte. L'écoulement induit par ces circulations peut être modélisé par un vortex de Hill, selon Clift et al. (1978), le champ de vitesse peut être décrit en coordonnées sphériques par les composantes V_r, V_θ et V_φ selon :

$$\begin{cases} V_r = U_S\left(1-\left(\dfrac{r}{R}\right)^2\right)\cos(\theta) \\ V_\theta = U_S\left(1-2\left(\dfrac{r}{R}\right)^2\right)\sin(\theta) \\ V_\varphi = 0 \end{cases} \tag{1.27}$$

Les coordonnées sphériques utilisées r, θ et φ sont définies sur la figure 1.7 et U_S représente la vitesse tangentielle maximale du liquide à la surface. Sirignano détermine cette vitesse en intégrant la contrainte tangentielle exercée par le gaz sur le liquide et en introduisant le coefficient de frottement C_F :

$$U_S = \frac{1}{32}\frac{\mu_g}{\mu_l}\mathrm{Re}\,C_F\left|\vec{V}-\vec{V}_\infty\right| \tag{1.28}$$

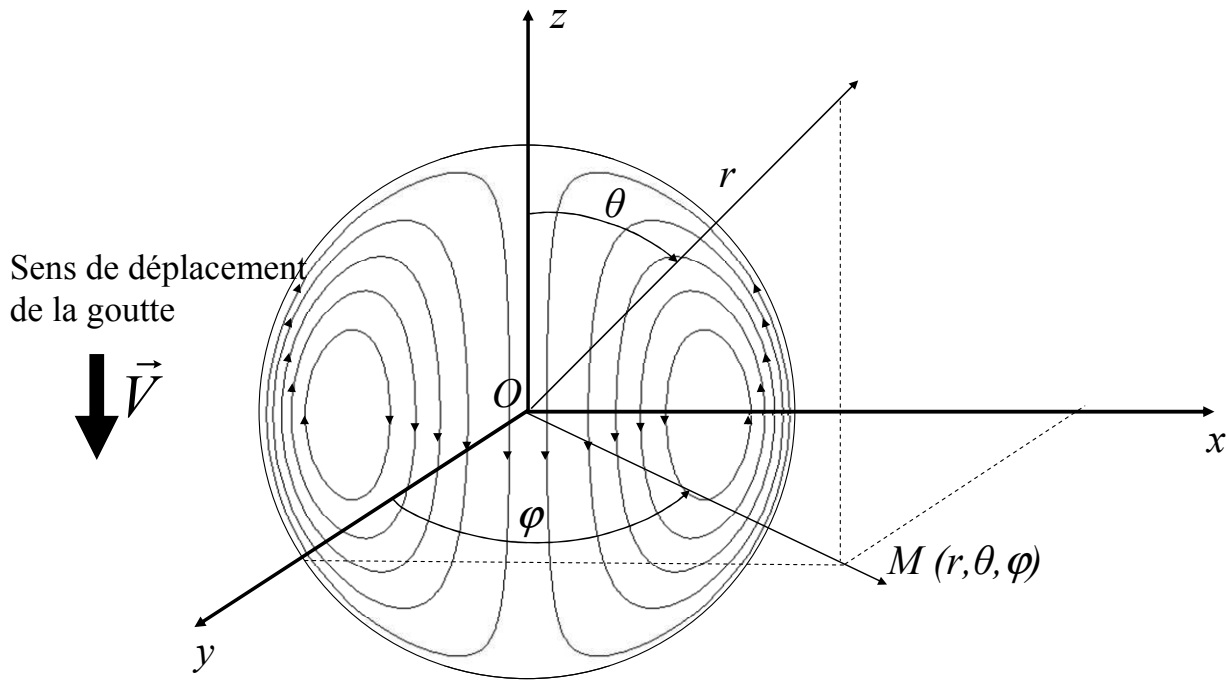


Figure 1.7 : Lignes de courant caractéristique d'un vortex de Hill

Le champ de vitesse ainsi décrit, correspond à celui d'une goutte qui ne s'évapore pas et qui se déplace relativement lentement, avec un nombre de Reynolds voisin de 1 et avec l'hypothèse $\mu_l >> \mu_g$.

Dans le cas d'une goutte en évaporation, l'écoulement de Stefan correspondant à l'expulsion de la vapeur de la goutte à la surface, engendre une diminution de la contrainte de frottement. Renksizbulut et Yuen (1983) proposent de corriger le coefficient de frottement C_F de l'équation 1.28 à l'aide du nombre de Spalding.

$$C_F = \frac{12.69}{R_e^{2/3}(1+B_M)} \tag{1.29}$$

Le nombre de Reynolds Re est défini par

$$\mathrm{Re} = \frac{\rho_{g,ref}|V - V_\infty|D}{\mu_{g,ref}} \tag{1.30}$$

Il apparaît clairement que les composantes de la vitesse du champ interne dépendent des propriétés physiques de la phase liquide : température, composition et diamètre de la goutte. Durant le calcul, ces composantes seront réactualisées en fonction du temps suite à la variation de ces paramètres.

Equations de transport en phase liquide dans le cadre du modèle de Hill

En supposant les propriétés physiques de la phase vapeur uniformes à chaque instant, le champ de température et le champ de concentration des espèces *i* sont gouvernés par les équations de transport :

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{V} \bullet \vec{grad}(T) = a_{i,l} \Delta T \tag{1.31}$$

$$\frac{\partial \rho_l Y_i}{\partial t} + \vec{V} \bullet \vec{grad}(\rho_l Y) = D_{i,l} \Delta \rho_l Y \tag{1.32}$$

Le champ de vitesse dans la phase liquide est donné par le modèle du vortex de Hill décrit précédemment et les conditions aux limites sont de type Neumann.
Pour la température, la condition aux limites est de type flux imposé, donnée par :

$$4\pi R^2 \lambda_l \frac{\partial T}{dr} = Q_L \tag{1.33}$$

Pour la masse, le débit massique d'évaporation de l'espèce *i* à l'interface est égal au flux de masse évaporé diminué du flux de masse échappé par diffusion :

$$\frac{\dot{m}}{\rho_l} Y_i - 4\pi R^2 D_{i,l} \left. \frac{\partial Y_i}{\partial r} \right|_{r=R} = \frac{\dot{m}_i}{\rho_l} \tag{1.34}$$

La régression de l'interface de la goutte du fait de l'évaporation rend complexe la résolution de ces équations. En effet, ces dernières sont résolues numériquement suivant un maillage qui doit rester fixe et ne pas dépendre du temps. Pour s'affranchir du suivi de l'interface liquide/gaz, il est possible de se ramener à une interface fixe en effectuant le changement de variables :

$$\begin{cases} r^* = \dfrac{r}{R(t)} \\ t^* = t \end{cases} \tag{1.35}$$

Les dérivées partielles dans ce nouveau système peuvent être évaluées par :

$$\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{1}{R(t)} \frac{\partial T}{\partial r^*} \tag{1.36}$$

$$\frac{\partial T}{\partial t} = -\frac{r^*}{R(t)} \frac{dR}{dt} \frac{\partial T}{\partial r^*} + \frac{\partial T}{\partial t^*} \tag{1.37}$$

A l'aide de ces changements de variables, les équations du problème (1.31) et (1.32) peuvent se réécrire :

$$\frac{\partial T}{\partial t} - \frac{r^*}{R}\frac{dR}{dt}\frac{\partial T}{\partial r^*} + \frac{1}{R}\vec{V} \bullet gr\vec{a}d(T) = \frac{a_{l,i}}{R^2}\Delta T \tag{1.38}$$

$$\frac{\partial \rho_l Y_i}{\partial t} - \frac{r^*}{R}\frac{dR}{dt}\frac{\partial \rho_l Y_i}{\partial r^*} + \frac{1}{R}\vec{V} \bullet gr\vec{a}d(\rho_l Y_i) = \frac{D_{l,i}}{R^2}\Delta \rho_l Y_i \tag{1.39}$$

Le problème ainsi posé présente une symétrie de révolution autour de l'axe *z*, qui peut être exploitée afin de simplifier les équations, en décomposant la température et la composition sur la base des polynômes de Legendre, sous la forme :

$$X(r^*, \theta, t) = \sum_{n=0}^{+\infty} f_n(r^*, t) P_n(\cos(\theta)) \tag{1.40}$$

où X désigne la température ou la composition, P_n représente le $n^{ième}$ polynôme de Legendre et f_n la fonction harmonique qui lui est associée. Les polynômes de Legendre et leurs propriétés sont rappelés en annexe A. Les fonctions f_n sont déterminées à partir de l'équation de la chaleur ou de la masse en exploitant les propriétés des fonctions de Legendre (Annexe A). L'équation du $m^{ième}$ mode s'écrit :

$$\begin{aligned} &\frac{R}{U_s}\frac{\partial f_m}{\partial t} - \frac{r^*}{U_S}\frac{dr}{dt}\frac{\partial f_m}{\partial r^*} + \frac{1}{C_m}\sum_{n=m-1}^{m+1}\left[A_{nm}\left(1-r^{*2}\right)\frac{\partial f_n}{\partial r^*} + B_{nm}\frac{1-2r^{*2}}{r^*}f_n\right] = \\ &\frac{1}{Pe}\left(\frac{\partial^2 f_m}{\partial r^{*2}} + \frac{2}{r^*}\frac{\partial f_m}{\partial r^*} - \frac{m(m+1)}{r^{*2}}f_m\right) \end{aligned} \tag{1.41}$$

Les coefficients A_{nm}, B_{nm} et C_m sont calculés en utilisant les propriétés des polynômes de Legendre (Annexe A) :

$$C_m = \frac{1}{m+\frac{1}{2}}$$

$$A_{nm} = \left(\frac{m}{2m-1}\frac{2}{2m+1}\text{ si } n = m-1\right) \quad \left(\frac{m+1}{2m+3}\frac{2}{2m+1}\text{ si } n = m+1\right) \quad [0 \text{ sinon}] \tag{1.42}$$

$$B_{nm} = \left(-\frac{2m(m-1)}{(2m-1)(2m+1)}\text{ si } n = m-1\right) \quad \left(\frac{(m+1)(m+2)}{2m+3}\frac{2}{2m+1}\text{ si } n = m+1\right) \quad [0 \text{ sinon}]$$

Pe est le nombre de Peclet massique Pe_M ou thermique Pe_T défini par

$$Pe_M = \frac{RU_S}{D_{l,i}} \tag{1.43}$$

$$Pe_T = \frac{RU_S}{a_l} \tag{1.44}$$

Les conditions aux limites à la surface de la goutte, dans la base de Legendre, s'écrivent respectivement, pour la température et la composition :

Pour le mode *m=0* :

$$4\pi R^2 \lambda_l \frac{\partial f_0}{\partial r}(r = R, t) = Q_L \tag{1.45}$$

$$f_0(r = R, t)\dot{m} - 4\pi R^2 \rho D_{l,i} \frac{\partial f_0}{\partial r}(r = R, t) = \dot{m}_i \tag{1.46}$$

et pour les autre modes *m>0* :

$$\frac{\partial f_m}{\partial r}(r = R, t) = 0 \tag{1.47}$$

$$f_m(r = R, t)\dot{m} - 4\pi R^2 \rho D_{l,i} \frac{\partial f_m}{\partial r}(r = R, t) = 0 \tag{1.48}$$

La condition au centre, en $r^* = 0$, s'obtient à partir de l'équation (1.49) en multipliant les membres de droite et de gauche par r^{*2}. L'équation ainsi obtenue au centre de la goutte s'écrit :

$$m(m+1)f_m = 0 \tag{1.49}$$

Tous les modes supérieurs à *0* sont donc nuls. Dans l'espace de Legendre, le mode *0* représente la valeur moyenne au rayon considéré. Cette valeur sera donc évaluée à partir de la valeur moyenne des points les plus proches par rapport au maillage choisi.

♦ **Modèle de diffusion limitée**

En diffusion simple, les effets convectifs dans la phase liquide sont négligés et les problèmes de transfert de masse et de chaleur sont unidimensionnels et radiaux.

Dans ce cas, les équations bilan du transfert de chaleur et de masse sont considérablement simplifiées et s'écrivent :

$$\frac{\partial}{\partial t}\left(\rho_l C_{Pl} T\right) = \lambda_l \Delta T \tag{1.50}$$

$$\frac{\partial}{dt}\left(\rho_l Y_i\right) = D_{l,i} \Delta\left(\rho_l Y_i\right) \tag{1.51}$$

Les conditions aux limites sont les mêmes que pour le modèle du Vortex de Hill pour la température (1.33) et pour la masse (1.34). Le problème ainsi posé est plus simple que le modèle à Vortex de Hill puisqu'il est unidirectionnel. La résolution de ce problème nécessite toutefois de dimensionner le maillage radial comme pour le modèle à Vortex de Hill (1.35).

♦ **Modèle de diffusion effective**

Les équations de transport écrites en diffusion effective sont similaires à celles de la diffusion limitée. La seule différence consiste à modifier la diffusion des espèces $D_{i,l}$ et la diffusivité thermique a_l en phase liquide respectivement par χ_{Yi} et χ_T. Ces coefficients tiennent compte des recirculations internes à la goutte et ont pour expressions, d'après Abramzon et Sirignano (1989) :

$$\chi_{Yi} = 1.86 + 0.86 \tanh\left(2.225 \log\left(\frac{\mathrm{Re}_l \, Sc_{i,l}}{30}\right)\right) \tag{1.52}$$

$$\chi_T = 1.86 + 0.86 \tanh\left(2.225 \log\left(\frac{\mathrm{Re}_l \, \mathrm{Pr}}{30}\right)\right) \tag{1.53}$$

♦ **Modèle de conduction infinie**

Cette approche est la plus simple et consiste à considérer la température et la fraction massique des espèces dans la goutte comme uniformes mais variables dans le temps. Les équations d'évolution de la température et de la fraction massique des espèces peuvent être écrites :

$$mCp_l \frac{dT}{dt} = Q_L \tag{1.54}$$

$$\frac{d\left(mY_i\right)}{dt} = \dot{m}_i \tag{1.55}$$

où *m* représente la masse totale de la goutte.

1.2.4 Les interactions entre les gouttes

La modélisation effectuée précédemment est valable pour une goutte isolée ou en mouvement. Dans une configuration de type jet monodisperse les gouttes se suivent les unes à la suite des autres et des interactions de nature aérodynamique vont influencer les transferts de masse et de chaleur. Ces dernières interactions être quantifiées en fonction d'un nombre sans dimension, le paramètre de distance *C*, défini comme le rapport entre la distance *L* entre les gouttes et leurs diamètres *D* :

$$C = \frac{L}{D} \tag{1.56}$$

L'équation d'évolution du paramètre de distance en fonction du temps dans une configuration de type jet monodisperse est donnée par la conservation de la fréquence des gouttes. Le paramètre de distance $C(t)$ à l'instant *t* peut être évalué en fonction de la vitesse $V(t)$, du diamètre $D(t)$ et des conditions initiales C_0, V_0 et D_0 selon :

$$C(t) = \frac{D_0}{D(t)} \frac{V(t)}{V_0} C_0 \tag{1.57}$$

Le panache de vapeur dégagé par une goutte interagit avec les gouttes précédentes en saturant leur environnement et ceci d'autant plus qu'elles sont proches. Pour des paramètres de distance élevés, de l'ordre de 10, l'influence du sillage est moindre et les gouttes peuvent être considérées en première approximation comme étant isolées. En revanche pour des paramètres de distance plus faibles, les échanges thermiques et massiques sont affectés par la proximité des gouttes. Afin de tenir compte de ces interactions, les coefficients d'échanges massiques et thermiques doivent être corrigés par une fonction du paramètre de distance. Les nombres sans dimension de Nusselt Nu_{iso} et de Sherwood Sh_{iso} quantifient l'intensité des échanges thermiques et massiques entre la phase liquide et la phase gazeuse dans le cas d'une goutte isolée. La pondération de ces nombres par une fonction du paramétre de distance η permet de tenir compte des effets d'interactions entre gouttes.

$$Sh = \eta_C Sh_{iso} \tag{1.58}$$

$$Sh = \eta_C Sh_{iso} \tag{1.59}$$

De nombreux auteurs se sont intéressés à l'influence du paramètre de distance sur l'évaporation de deux gouttes en tandem (Brzustowski et al., 1979, Labowski, 1980, Marberry et al., 1984). Atthasit (2003) propose un facteur correctif du débit d'évaporation obtenu expérimentalement pour des gouttes en configuration monodisperse en évaporation forte, évoluant le long d'une de la couche limite thermique d'une plaque chauffée :

$$\eta_C = 1 - 0.57\left(1 - \frac{1 - e^{-0.13(C-6)}}{1 + e^{-0.13(C-6)}}\right),\ 2 < C < 16 \text{ et } 12 < \mathrm{Re} < 25 \qquad (1.60)$$

Virepinte (1999) propose une correction du taux d'évaporation obtenue sur des gouttes en combustion de la forme :

$$\eta_C = 1 - 0.42\left(1 - \frac{e^{-0.19(C-5)} - e^{-0.6(C-5)}}{e^{-0.19(C-5)} + e^{-0.6(C-5)}}\right),\ 2 < C \text{ et } 5 > \mathrm{Re} > 55 \qquad (1.61)$$

Dans une configuration identique à celle de Virepinte (1999), Castanet et al. (2005) proposent une correction du type :

$$\eta_C = \tanh\left(0.36C - 0.82\right),\ 2 < C \text{ et } 5 > \mathrm{Re} > 50 \qquad (1.62)$$

Les différents facteurs de correction sont représentés sur la figure 1.8 en fonction du paramètre de distance.

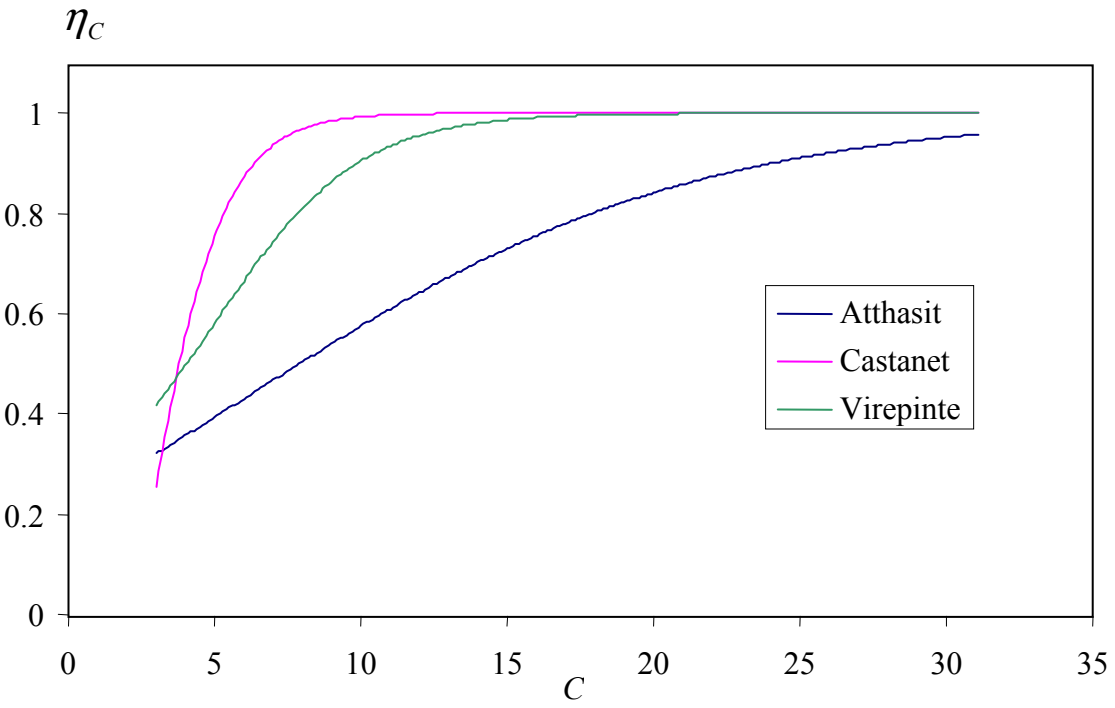


Figure 1.8 : Evolution du coefficient η en fonction du paramètre de distance C

Les corrélations de Virepinte (1999) et Castanet et al. (2005) sont très proches, à partir d'un paramètre de distance de l'ordre de 10 les gouttes peuvent être considéré comme étant isolées. La courbe d'Atthasit (2003) traduit une tendance différente, les variations du paramètre η sont beaucoup moins marquées et les gouttes peuvent être considérées comme étant isolées à partir d'un paramètre de distance de l'ordre de 30. Notons cependant que cette dernière corrélation a été obtenue en évaporation simple, sans combustion.

1.2.5 Caractéristiques du mélange éthanol/acétone

L'étude de l'évolution de la température et de la composition des gouttes constituées d'un mélange d'acétone et d'éthanol nécessite la connaissance des caractéristiques physiques du mélange éthanol/acétone.

♦ **Caractéristiques de la phase gazeuse**

Les propriétés physiques en phase gazeuse sont évaluées à la surface de la goutte et sont intimement liées à la composition de la vapeur, qui dépend de la pression, de la température et de la composition de la phase liquide. Pour ne pas trop compliquer la modélisation de la phase vapeur, ces propriétés seront évaluées dans un film au voisinage de la goutte, là où s'effectuent les transferts de masse et de chaleur. Pour tenir compte des gradients de composition et de température Hubbard et al. (1975) et Yuen et Chen (1976) proposent une manière empirique de calculer les grandeurs physiques à la surface de la goutte. En tenant compte des conditions à l'infini, ils proposent de définir des grandeurs de références par la formulation:

$$T_{ref} = \alpha T_{\infty} + (1-\alpha) T_S \tag{1.63}$$

$$Y_{ref} = \alpha Y_{\infty} + (1-\alpha) Y_S \tag{1.64}$$

avec $\alpha = 1/3$. Ce mode de calcul est appelé la règle du « 1/3 ».
En considérant que le volume molaire du liquide est négligeable et que la phase vapeur est un mélange idéal de gaz parfaits, il est usuel d'évaluer la fraction de vapeur en supposant que l'équilibre thermodynamique est atteint :

$$\chi_{g,ref} = \chi_{l,ref} \gamma_i \frac{P_S(T_S)}{P_A} \tag{1.65}$$

où $P_S(T_S)$ désigne la pression de vapeur saturante à la température T_S, P_A est la pression atmosphérique et γ_i est le coefficient d'activité de l'espèce *i*. Il s'agit d'une propriété d'excès qui tient compte de la non-idéalité du mélange liquide. La définition du coefficient d'activité fait intervenir la fonction de Gibbs.

$$\ln(\gamma_i) = \frac{\partial}{\partial n_i}\left(\frac{nG^E}{RT}\right)_{T,P,n_j} \tag{1.66}$$

où G^E est l'énergie libre de Gibbs, n_i le nombre de moles de l'espèce *i*, n le nombre de moles et R la constante des gaz parfaits.
Scott et al. (1987) proposent une loi empirique dérivée de l'équation de Margules afin d'exprimer l'énergie de Gibbs :

$$\frac{nG^E/RT}{\chi_{e,l,ref}\chi_{a,l,ref}} = \alpha\chi_{a,l,ref} + \beta\chi_{e,l,ref} - \delta\chi_{e,l,ref}\chi_{a,l,ref} \tag{1.67}$$

où α, β et γ sont déterminés expérimentalement, en fonction de la température de surface T_S. Dans le cas d'un mélange d'éthanol et d'acétone Scott et al. (1987) proposent :

$$\alpha = \frac{546.3}{T_S} - 0.9897 \tag{1.68}$$

$$\beta = \frac{543.3}{T_S} - 0.9483 \tag{1.69}$$

$$\gamma = \frac{15.64}{T_S} + 0.0.0759 \tag{1.70}$$

L'intégration de l'équation 1.66 permet de déterminer les coefficients d'activité de l'éthanol γ_e et de l'acétone γ_a :

$$\gamma_e = e^{\chi_{a,l,ref}^2\left(\alpha+2(\beta-\alpha)\chi_{e,l,ref}\right)-\delta\chi_{e,l,ref}\chi_{a,l,ref}^2\left(2-3\chi_{e,l,ref}\right)} \tag{1.71}$$

$$\gamma_a = e^{\chi_{e,l,ref}^2\left(\beta+2(\alpha-\beta)\chi_{a,l,ref}\right)-\delta\chi_{a,l,ref}\chi_{e,l,ref}^2\left(2-3\chi_{a,l,ref}\right)} \tag{1.72}$$

Ces coefficients permettent de tracer le diagramme binaire d'un mélange éthanol/acétone (Figure 1.9). Ce diagramme présente la phase thermodynamiquement stable du mélange à la pression atmosphérique en fonction de la température. L'écart à la non-idéalité, comme le montre le diagramme binaire, se manifeste par une sous-estimation des fractions de vapeur en équilibre avec la phase liquide.

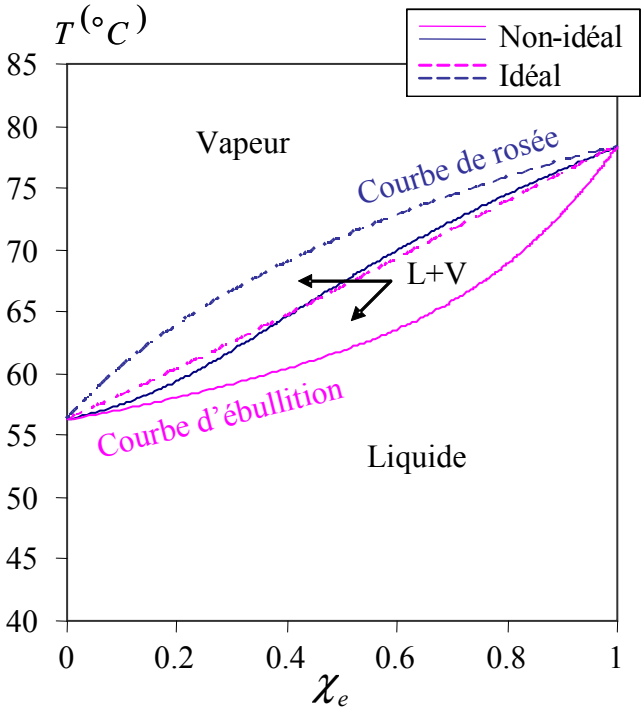


Figure 1.9 : Diagramme binaire du mélange éthanol/acétone à la pression atmosphérique

♦ **Evaluation des propriétés physiques**

L'évolution des grandeurs physiques en phase liquide et en phase gazeuse, en fonction de la température et de la pression sont déterminées dans l'ouvrage « The Properties of Gases and Liquids » (2000). Les propriétés utilisées, ainsi que les règles de mélange utilisées sont recensées en annexe B.

1.2.6 Résolution numérique

Le principe de résolution numérique des équations de transport repose sur l'hypothèse d'un état quasi-stationnaire. Les propriétés de la phase gazeuse sont calculées avec un pas temporel de l'ordre de 0.01 ms. Ceci permet de réactualiser à chaque pas de temps les propriétés physiques en phase liquide et gazeuse et les conditions aux limites de la phase liquide, sous l'hypothèse que l'équilibre thermodynamique est atteint à chaque pas de temps. Etant donné les dimensions de la goutte, le pas de temps utilisé pour la résolution des équations de transport en phase liquide est beaucoup plus petit que celui utilisé pour réactualiser la phase gazeuse. Il est déterminé afin de respecter les temps caractéristiques diffusifs et convectifs en phase liquide. Les schémas numériques adoptés pour la résolution de la phase liquide, sont pour le cas de la diffusion limitée (ou effective), un schéma implicite de Crank-Nicolson :

$$f(x_i,t_{n+1}) = f(x_i,t_n) + \frac{\delta t}{2}\left(\frac{\partial f(x_i,t_n)}{\partial t} + \frac{\partial f(x_i,t_{n+1})}{\partial t}\right) \qquad (1.73)$$

où x_i représente le vecteur positon, f la grandeur physique considérée et δt le pas de temps discrétisé. Pour le modèle à vortex de Hill un schéma d'Adams-Bashfort explicite d'ordre 2 sera adopté

$$f(x_i, t_{n+1}) = f(x_i, t_n) + \delta t\left(\frac{3}{2}\frac{\partial f(x_i, t_n)}{\partial t} - \frac{1}{2}\frac{\partial f(x_i, t_{n-1})}{\partial t}\right) \tag{1.74}$$

Les dérivées spatiales d'ordre 1 et d'ordre 2 sont évaluées par un schéma centré pour les deux approches:

$$\frac{\partial f(x_i, t_n)}{\partial x_i} = \frac{f(x_{i+1}, t_n) - f(x_{i-1}, t_n)}{2\delta x} \tag{1.75}$$

$$\frac{\partial f^2(x_i, t_n)}{\partial^2 x_i} = \frac{f(x_{i+1}, t_n) + f(x_{i-1}, t_n) - 2f(x_i, t_n)}{\delta x^2} \tag{1.76}$$

où δx représente le pas spatial discrétisé. Les propriétés physiques dans les deux phases sont évaluées au temps $\delta t/2$ avec une précision sur le nombre d'itérations réglable par l'utilisateur. Le modèle de vortex de Hill est discrétisé selon 20 modes et 60 mailles dans l'espace. Le modèle de diffusion effective est discrétisé spatialement en 60 mailles. La procédure d'itération et de résolution sont résumées figure 1.10.

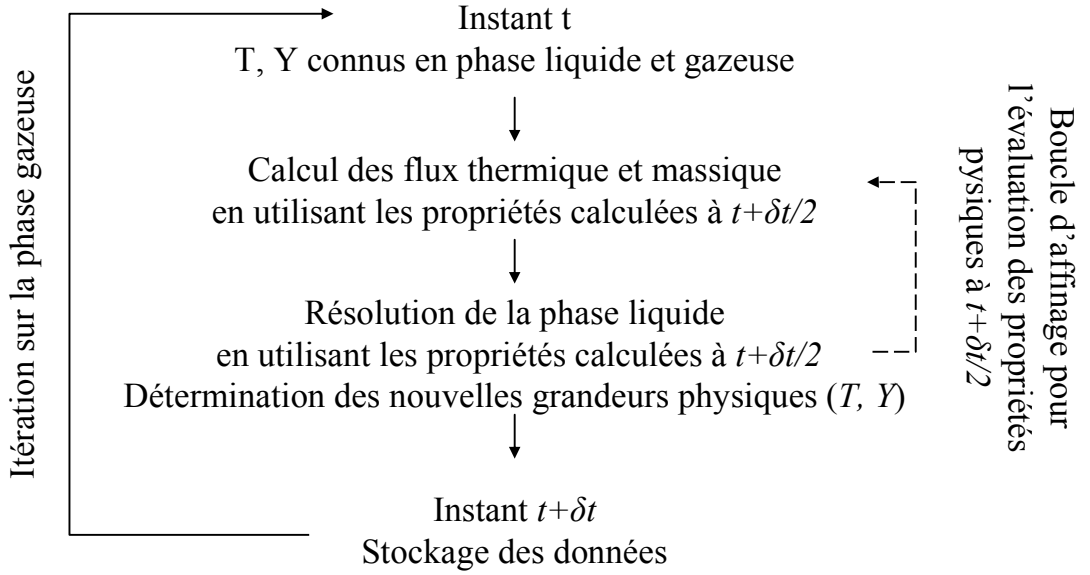


Figure 1.10 : Schéma de principe de la résolution numérique

1.3 Conclusion

Parmi les différents modèles développés dans la littérature, le modèle à composants discret a été retenu afin de simuler un mélange bicomposant, pour lequel le temps de calcul demeure assez faible. La simulation d'un jet sur une durée de 8 ms, nécessite 2 minutes de calcul en diffusion effective et 10 minutes pour le vortex de Hill. Ces modèles seront testés sur différentes expériences d'évaporation de gouttes mono et bicomposant (mélange éthanol/acétone).

Chapitre 2 : Installation expérimentale et métrologie

Nomenclature

Symboles latins

A	Taux d'émission de fluorescence	
C	Paramètre de distance	
C_V	Concentration molaire volumique	*Mol/l*
D_0	Diamètre	*m*
f	Fréquence	*Hz*
h	Constante de Planck	m^2 *kg / s*
I	Intensité de fluorescence	
K_{opt}	Constante optique	
l	Longueur	*m*
n	Indice de réfraction	
Q	Taux d'extinction collisionnelle	
Q_{CI}	Taux d'extinction par conversions internes	
Q_{Tr}	Taux d'extinction par passage à l'état triplet	
Q_V	Débit	*l/s*
T	température	*°C*
t	Temps	*ms*
V	Vitesse	*m/s*
V_m	Volume de mesure	
V_{ol}	Volume	*l*

Symboles grecs

δ	Interfrange	*m*
ε	Section efficace d'absorption molaire	*L/mol/m*
λ	Longueur d'onde	*m*
η	Rendement de fluorescence	
θ	Angle	*radian*
ν	Nombre d'onde	

Chapitre 2

2.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de présenter les principaux dispositifs expérimentaux utilisés ainsi que les techniques de mesure mises en œuvre.
Nous présenterons dans un premier temps l'injecteur de gouttes monodispersées qui permet de générer un train de gouttes périodiques présentant des conditions aux limites aérothermiques parfaitement contrôlées. Puis nous décrirons les moyens mis en œuvre pour étudier ce train de gouttes en forte évaporation. Les principes des techniques de mesure utilisées seront ensuite exposés tels que l'interférométrie en diffusion avant pour la mesure de taille de gouttes et la vélocimétrie laser Doppler pour la vitesse. Enfin nous décrirons les principes de base de la fluorescence induite par laser (FIL) qui est la technique développée majoritairement pour mesurer la température et la composition de gouttelettes bicomposant.

2.2 Dispositifs expérimentaux

2.2.1 Génération d'un train de gouttes monodispersées

Les transferts de masse et de chaleur de gouttes évoluant dans un spray sont très complexes à étudier du fait de la multitude des paramètres et des phénomènes mis en jeu (distribution granulométrique du spray, concentration volumique des gouttes, fraction volumique du liquide, température des gouttes, distribution des vitesses, distribution de la vapeur, turbulence …). Ainsi, de nombreux auteurs se sont intéressés à caractériser ces phénomènes de transferts dans des configurations plus simples tel que les jets de gouttes monodispersées (Virepinte et al., 2000), Silverman et Dunn Rankin, 1994, Mulhollland et al., 1988), les gouttes en lévitation optique (Willms et al., 2004), les gouttes en lévitation acoustique (Kastner et al., 2000) ou encore les gouttes accrochées sur des fils de quartz (Chauveau et al., 2006). Nous nous intéresserons principalement au train de gouttes monodispersées. Ces gouttes sont injectées à la même vitesse, à une fréquence bien déterminée et avec une taille répétitive. De ce fait à une position du jet, les caractéristiques (diamètre, température, vitesse et composition) sont toujours les mêmes quelque soit la goutte considérée. Chaque goutte, à une position donnée, présente la même histoire, ce qui permet de cumuler des mesures en un point donné afin d'améliorer la précision statistique. La génération des gouttes étant stationnaire, il est possible, en déplaçant l'instrumentation à différentes positions du jet, d'effectuer un suivi lagrangien des gouttes. La vitesse des gouttes étant de plus mesurée en chaque point par vélocimétrie laser Doppler, il est possible de convertir la distance parcourue depuis le point d'injection en temps, ce qui permet d'obtenir une description eulérienne des phénomènes.
L'injecteur utilisé pour réaliser des jets de gouttes monodispersées a été conçu à l'ITLR (Institut fur Thermodynamik Luft und Raumfahrt) de l'université de Stuttgart. Le combustible

étudié est injecté à travers un diaphragme calibré de faible diamètre (*50 µm* ou *100 µm*). Un jet de forme cylindrique, naturellement instable (instabilité de Rayleigh), est formé avant de se désintégrer en une série de gouttelettes polydispersées en taille. Une céramique piézoélectrique est placée à la base de l'injecteur afin de mettre en vibration l'ensemble du dispositif. Le calage de la fréquence de la piézocéramique sur une fréquence naturelle de l'instabilité de Rayleigh permet d'obtenir une désintégration régulière du jet en gouttes parfaitement calibrées (figure 2.1). La fréquence de la piezocéramique comprise entre 8 et 30 kHz est pilotée à l'aide d'un générateur de fonctions créneaux délivrant une tension de l'ordre de 100 V.

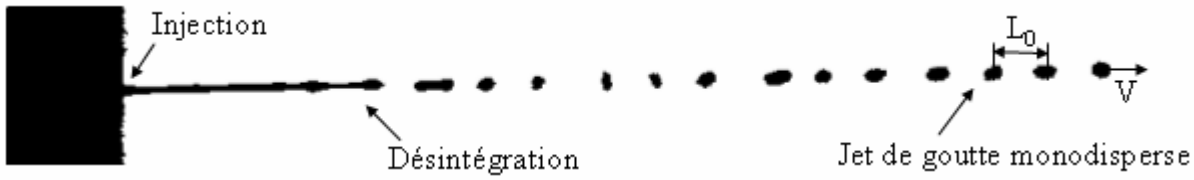


Figure 2.1 : Jet monodisperse

Le débit est assuré en imposant une contre-pression au combustible contenu dans un réservoir. Celui-ci est relié à un réservoir tampon d'air comprimé de grande capacité en relation avec le réseau d'air comprimé, garantissant une différence de pression constante. Un filtre radial est positionné en amont de l'injecteur afin d'éviter d'éventuelles poussières venant obstruer le diaphragme. Enfin la température d'injection est régulée par une circulation d'eau dans un fin tube en cuivre enroulé autour du corps de l'injecteur. La température du combustible injecté est mesurée par un thermocouple dont l'extrémité est positionnée dans le liquide près de l'orifice d'injection (figure 2.2).

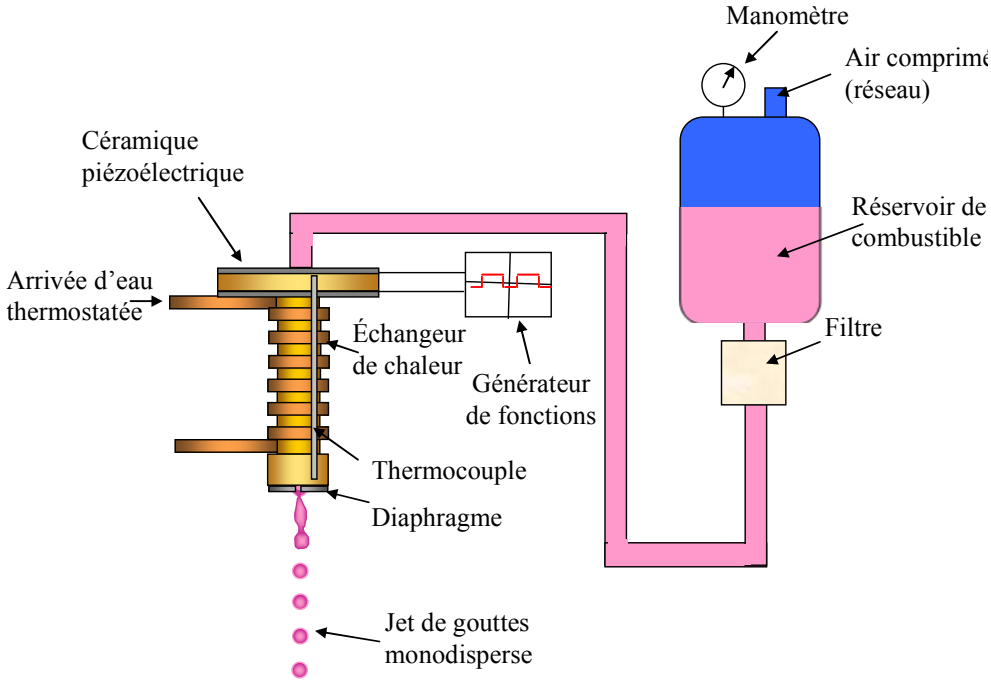


Figure 2.2 : Dispositif expérimental

La connaissance de la valeur du débit volumique injecté Q_V, ainsi que la connaissance de la fréquence de désintégration des gouttes f, permet de déterminer la valeur du diamètre D_0 des gouttes à l'injection avec :

$$D_0 = \left(f \frac{\pi}{6Q_V} \right)^{\frac{1}{3}} \tag{2.1}$$

Enfin, nous pouvons définir le paramètre de distance *C*, qui caractérise l'espacement relatif entre les gouttes :

$$C = \frac{L}{D_0} = \frac{V}{fD_0} \tag{2.2}$$

où *V* est la vitesse des gouttes et *L* la distance entre gouttes.

Le diamètre du diaphragme, la pression d'injection et la fréquence du générateur conditionnent le diamètre, la vitesse et le paramètre de distance des gouttes à l'injection et leur réglage optimal permet d'obtenir un jet stable.

2.2.2 Création de conditions de forte évaporation

Afin d'étudier l'évaporation des gouttes dans des conditions de haute température, un dispositif permettant de souffler de l'air chaud à faible vitesse a été mis en place. Les appareils utilisés pour produire l'air chaud sont des « leister heater 700 ». De l'air comprimé est injecté dans le corps de l'appareil et circule le long d'une résistance chauffée par effet joule. En injectant de l'air comprimé sous une pression de 1.15 bars avec un débit de 20 l/min un panache d'air est produit avec une vitesse de l'ordre de 1 m/s à l'injection et une température voisine de 550°C.
Une telle installation, sans confinement, permet d'éviter les problèmes liés d'une part aux traversées optiques de hublots et d'autre part à la saturation de l'enceinte en vapeur de combustible. Afin d'assurer une bonne stabilité du jet, une injection des gouttes de manière concourante au panache a été retenue.
Deux réchauffeurs « leisters » sont reliés à l'aide d'une pièce en « Y », afin d'obtenir un profil de température symétrique ainsi qu'une température élevée sur une plus grande distance (figure 2.3). Une première configuration consiste à placer l'injecteur sous la pièce en Y, au centre de laquelle un tube céramique a été mis en place afin d'isoler le train de gouttes qui traverse le corps du Y (figure 2.3a). Une deuxième configuration a été mise en œuvre en remplaçant le tube céramique par un tube métallique et en rajoutant une plaque perforée de

petits trous de diamètre 1 mm et d'épaisseur 8 mm (figure 2.3b). Dans ce deuxième dispositif, les filets fluides d'air guidés par la plaque perforée sont rendus parallèles au jet de gouttes. Il en résulte une meilleure stabilité des gouttes dans de panache et des températures élevées maintenues sur une plus grande distance. Les deux configurations seront exploitées dans la suite de ce travail.

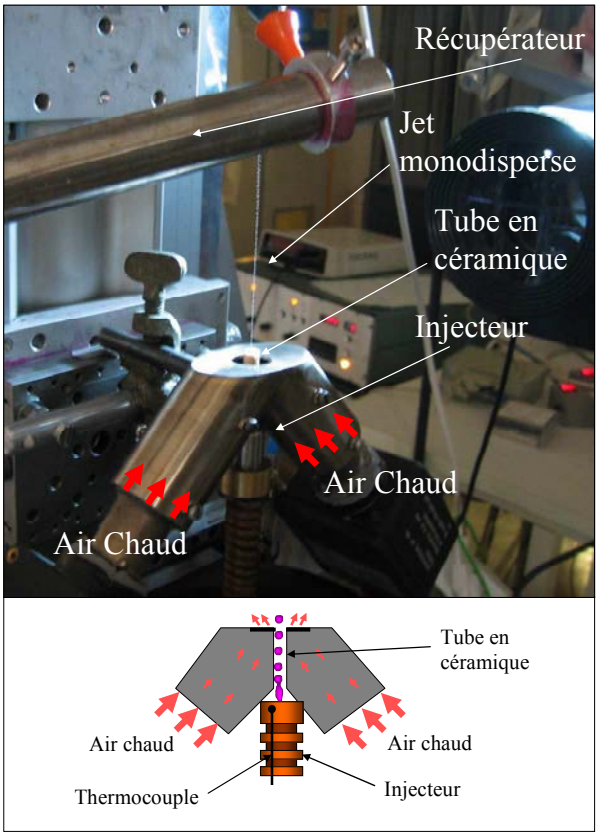


Figure 2.3a : Injection des gouttes dans le panache d'air chaud (configuration 1).

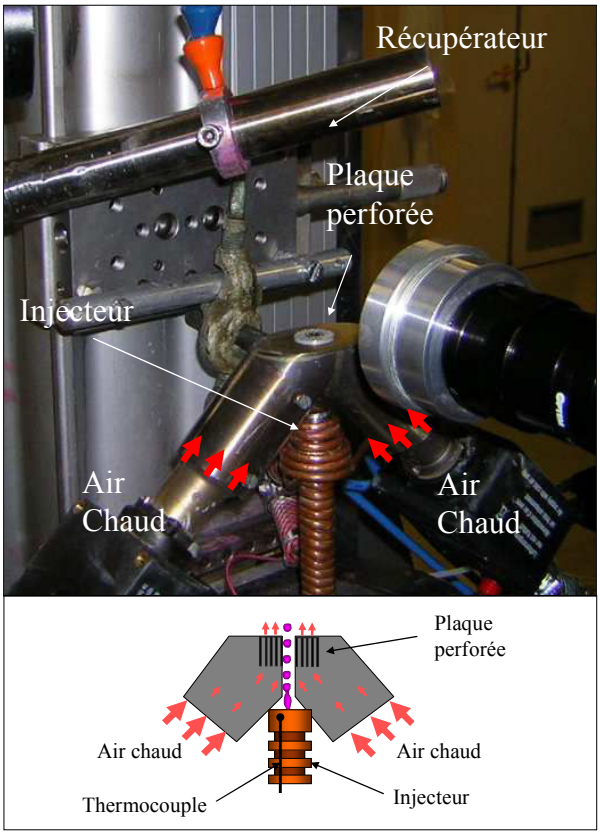


Figure 2.3b : Injection des gouttes dans le panache d'air chaud (configuration 2).

Le champ de température dans le panache d'air chaud a été caractérisé à l'aide d'un thermocouple de type K monté sur un banc de déplacement 3D. Afin de minimiser l'effet d'ailette, le thermocouple est positionné verticalement dans l'écoulement d'air chaud. L'exploration du panache d'air chaud a été conduite par pas de 5 mm sur une distance verticale de 70 mm et une distance horizontale de plus ou moins 1 mm.

Dans le cas de la configuration 1, les gouttes évoluent dans de l'air à une température de l'ordre de 550 °C au niveau de l'injection, pour atteindre 120°C à une distance de 70 mm (figure 2.4). La vitesse de l'air chaud est de l'ordre de 1 m/s. Dans le cas de la configuration 2, la température est plutôt de l'ordre de 450°C à l'injection mais est maintenue sur une distance plus longue (figure 2.5). Les vitesses sont plus faibles avec la configuration 2, de l'ordre de 0.3m/s (figure 2.5).

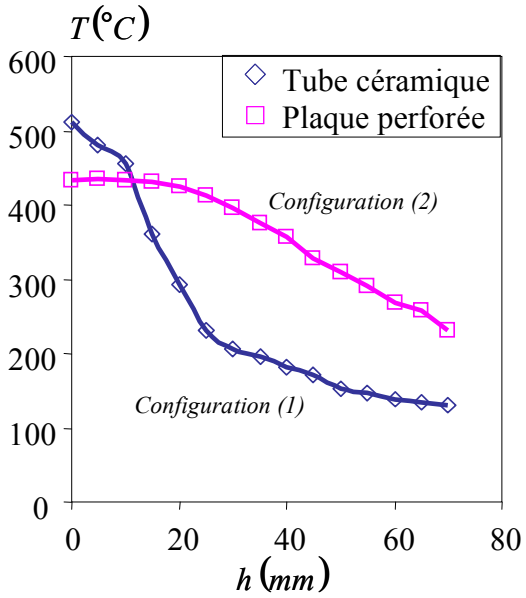


Figure 2.4 : Evolution de la température de l'air en fonction de la distance, sur l'axe central du panache d'air chaud.

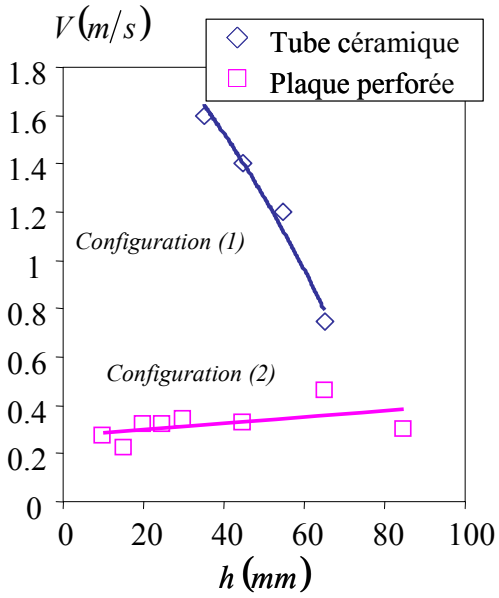


Figure 2.5 : Evolution de la vitesse de l'air en fonction de la distance, sur l'axe central du panache d'air chaud.

Nous avons également vérifié que les gradients de température transversaux étaient faibles par rapport à l'échelle de la goutte. La figure 2.6 présente le champ de température dans les configurations 1 et 2 dans un plan passant par l'axe de révolution du panache d'air chaud. Les gradients les plus marqués correspondent à la configuration 1 et sont de l'ordre de 20°C/mm à la base du panache alors qu'ils ne sont que de l'ordre de 10°C/mm pour la configuration (2). Ces gradients demeurent négligeables en termes de conditions aux limites de gouttes dont le diamètre est compris entre *100 µm* et *200 µm*.

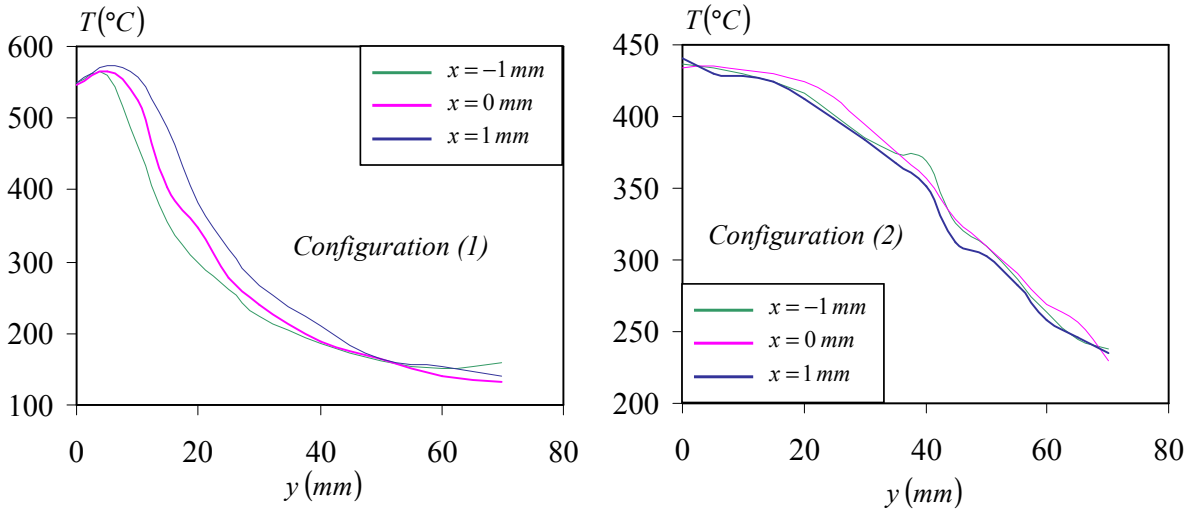


Figure 2.6 : Champ de température du panache d'air chaud pour les configurations 1 et 2.

2.2.3 Combustion du jet de gouttes

Il est également possible de faire évoluer les gouttes dans une flamme laminaire générée par la combustion des gouttes précédentes. Le jet de gouttes monodispersées traverse une spire chauffée. La spire d'un diamètre de 3 mm et d'une hauteur de 5 mm est soumise à une tension de l'ordre de 100 V (figure 2.7). Le flux important de chaleur, obtenu par effet Joule, provoque l'apparition d'une flamme laminaire de diffusion.

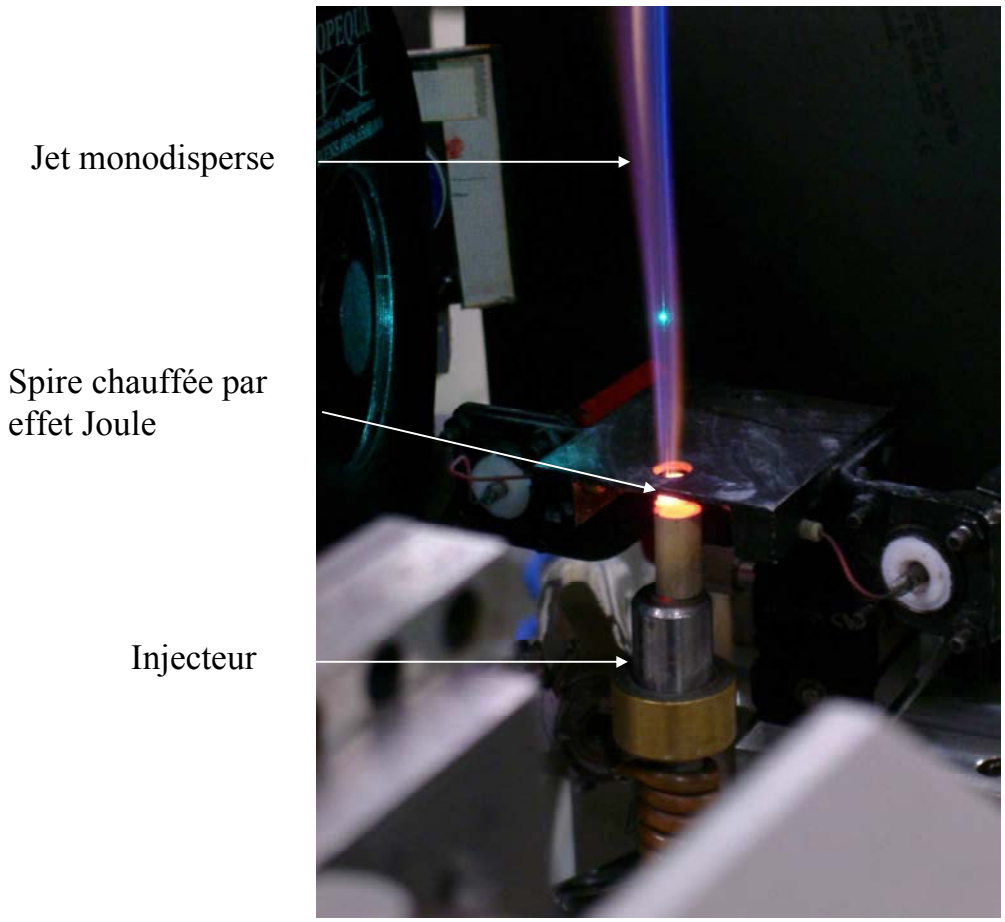


Figure 2.7 : Dispositif de combustion.

2.3 Techniques de mesure

2.3.1 La vélocimétrie laser Doppler

La vitesse des gouttes a été déterminée par vélocimétrie laser Doppler. Deux faisceaux laser parallèles issus de la même source sont focalisés au foyer d'une lentille convergente. Selon l'interprétation heuristique, il en résulte une succession de franges supposées planes, orientées dans le même sens que celui de la bissectrice formée par les deux faisceaux lasers. La distance δ entre les deux franges successives est connue et vaut :

$$\delta = \frac{\lambda}{2\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \tag{2.3}$$

où λ est la longueur d'onde laser et θ l'angle de croisement des deux faisceaux laser. Une gouttelette traversant un tel volume de mesure diffuse la lumière avec une fréquence modulée par l'interfrange et la vitesse de la goutte. Le signal lumineux ainsi émis, appelé bouffée Doppler (figure 2.8), est détecté à l'aide d'un photomultiplicateur afin de le convertir en signal électrique puis est traité à l'aide d'un dispositif suiveur de fréquence.

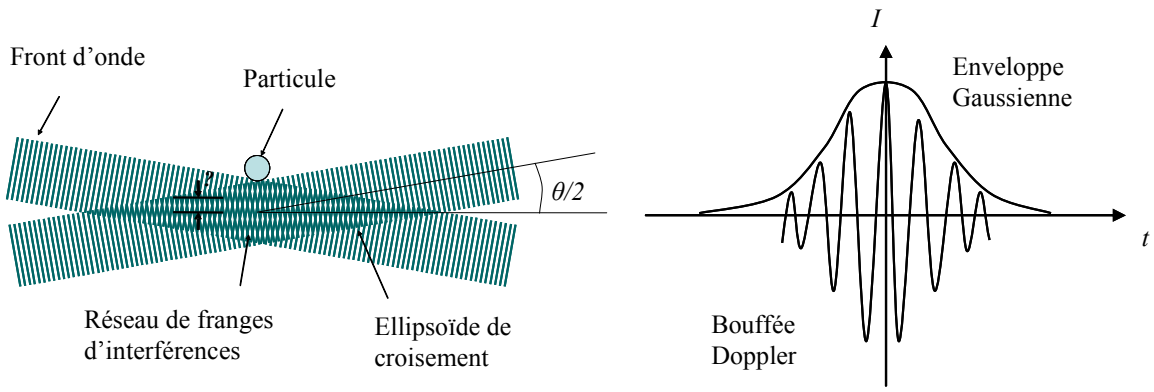


Figure 2.8 : Principe de la vélocimétrie laser Doppler

La détermination de la fréquence de ce signal lumineux permet de déduire la composante de la vitesse V de la goutte perpendiculairement au réseau de franges avec une précision de l'ordre de ± 0.1 ms :

$$f_D = \frac{V}{\delta} \Rightarrow V = \frac{2}{\lambda f_D}\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \tag{2.4}$$

Une cellule de Bragg permet d'imposer une vitesse de défilement des franges d'interférences afin de lever l'ambiguïté sur le signe de la vitesse et de déterminer les vitesses voisines de zéro.

2.3.2 Mesure de diamètre des gouttes

Lorsqu'un faisceau est focalisé vers une goutte, il en résulte une figure d'interférences, observable en diffusion avant. En effet, les rayons subissant une réflexion simple (ordre 0) et les rayons subissant deux réfractions successives (ordre 1) à l'intérieur de la goutte, interfèrent et forment un réseau d'interférences caractéristiques (figure 2.9).

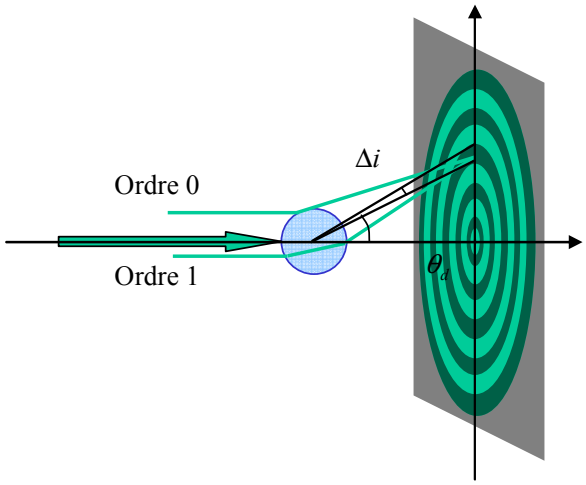


Figure 2.9 : Principe de la mesure de diamètre par interférométrie.

L'interfrange angulaire Δi peut être relié au diamètre par la relation (König et al., 1986) :

$$D = \frac{2\lambda}{\Delta i\left(\cos\left(\frac{\theta_d}{2}\right) + \frac{n\sin\left(\frac{\theta_d}{2}\right)}{\sqrt{1-2n\cos\left(\frac{\theta_d}{2}\right)+n^2}}\right)} \tag{2.5}$$

où θ_d est l'angle d'observation des franges, λ la longueur d'onde laser utilisée et n l'indice de réfraction du liquide. Les indices de réfraction de l'éthanol n_e et de l'acétone n_a sont très proches et dépendent de la température selon les lois :

$$n_e = -3.72*10^{-4}\ T + 1.37 \tag{2.6}$$

$$n_a = -4.42*10^{-4}\ T + 1.37 \tag{2.7}$$

Dans le mélange acétone/éthanol l'indice de réfraction est peu sensible aux variations de composition et de température. Typiquement la température varie entre 20°C et 40°C ce qui

conduit à des variations d'indices respectivement pour l'acétone de 1.363 à 1.354 et pour l'éthanol de 1.364 à 1.357. De plus, lorsque l'angle d'observation θ_d est voisin de 30°, la détermination du diamètre est peu sensible aux gradients d'indice de réfraction (Massoli, 1997). Ainsi on retient une valeur de l'indice de réfraction de 1.36 ; les variations maximales de température constatées expérimentalement induisent une erreur sur la valeur de l'indice de réfraction de 0.003 et se traduisent par une erreur sur la mesure du diamètre de l'ordre de 0.2%. Dans le cas d'un jet de gouttes monodispersées, la périodicité du passage des gouttes dans le faisceau laser permet d'obtenir un réseau d'interfranges stable et fixe, à condition d'ajuster un temps de pose de la caméra supérieur à la période des gouttes.

Le réseau d'interfranges est focalisée dans une direction à l'aide d'une lentille cylindrique de focale de 15 cm afin d'accroître la densité de flux du signal (figure 2.10). L'image produite par cette lentille est reprise par un objectif d'une focale de 300 mm, réglé sur l'infini afin de former l'image du réseau de franges sur la barrette d'une caméra CCD linéaire (figure 2.10). Un enregistrement typique d'un tel réseau de franges est donné figure 2.11. Le signal présente une structure spatiale périodique avec un vignetage aux extrémités produit par l'objectif de la caméra. Un premier filtrage sans déphasage du signal est effectué sous Matlab. Ensuite, l'extraction des sommets du signal à l'aide d'un seuil permet de déterminer la période moyenne des oscillations sous la forme d'un nombre de pixels a_{pix}.

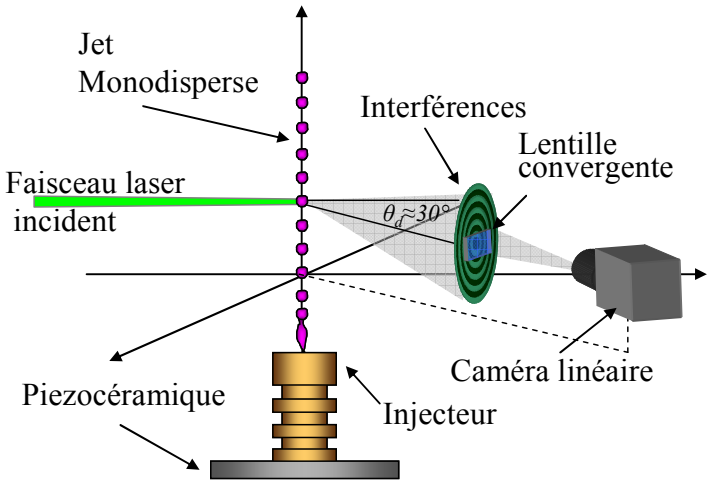


Figure 2.10 : Schéma général du dispositif de mesure de diamètre par interférométrie en diffusion avant

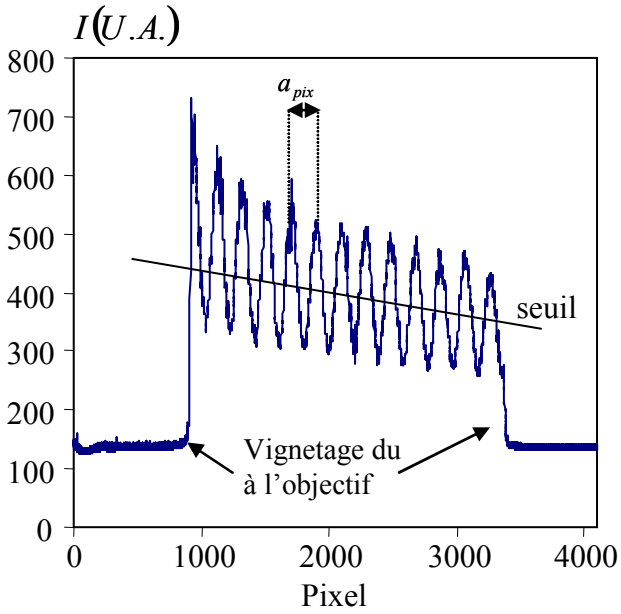


Figure 2.11 : Enregistrement typique du signal lumineux produit par la figure d'interférence en diffusion avant

Connaissant la résolution du capteur utilisée qui est de 4096 pixels mesurant chacun $l_{pixel} = 10\mu m$ et les caractéristiques de l'objectif de la caméra, il devient possible de déterminer l'interfrange angulaire par la relation :

$$\Delta i = \frac{a_{pix}}{4095} 2\text{arctg}\left(\frac{l_b}{2f}\right) \tag{2.8}$$

où f représente la distance focale de l'objectif de la caméra, l_b la longueur de la barrette CCD et a_{pix} le nombre de pixels représentant la période moyenne du signal enregistré. Dans le cadre de cette relation (2.9), nous considérerons un angle d'observation moyen θ_d, bien que chaque pixel de la barrette présente un angle différent.

L'angle moyen d'observation θ_d de la caméra est déterminé à l'aide de tests préliminaires, où le diamètre des gouttes est mesuré par débitmètrie :

$$D_0 = \left(f \frac{\pi t}{6V}\right)^{\frac{1}{3}} \tag{2.9}$$

f représente la fréquence de désintégration des gouttes, t est le temps sur lequel le liquide est collecté (de l'ordre de 120 s) et V est le volume de liquide collecté (de l'ordre du mL). Avec une précision sur la mesure du temps de 1 seconde et une précision de 0.05 mL pour le volume, l'incertitude sur le diamètre mesuré par débitmètrie est de 0.4 µm. Les acquisitions sont réalisées au voisinage du point d'injection où les gouttes sphériques sont formées et où la régression de diamètre due à l'évaporation est négligeable. Une série de figures

d'interférences obtenues pour des diamètres connus par débitmètrie est traitée afin d'en déduire l'angle d'observation θ_d. L'angle donnant le meilleur ajustement (figure 2.12) de la relation 2.6 avec le diamètre mesuré par débitmètrie est $\theta_d = 30°$. En tenant compte des incertitudes sur la mesure par débitmètrie, l'angle d'observation θ_d a été ajusté avec une précision de $\pm 0.5°$.

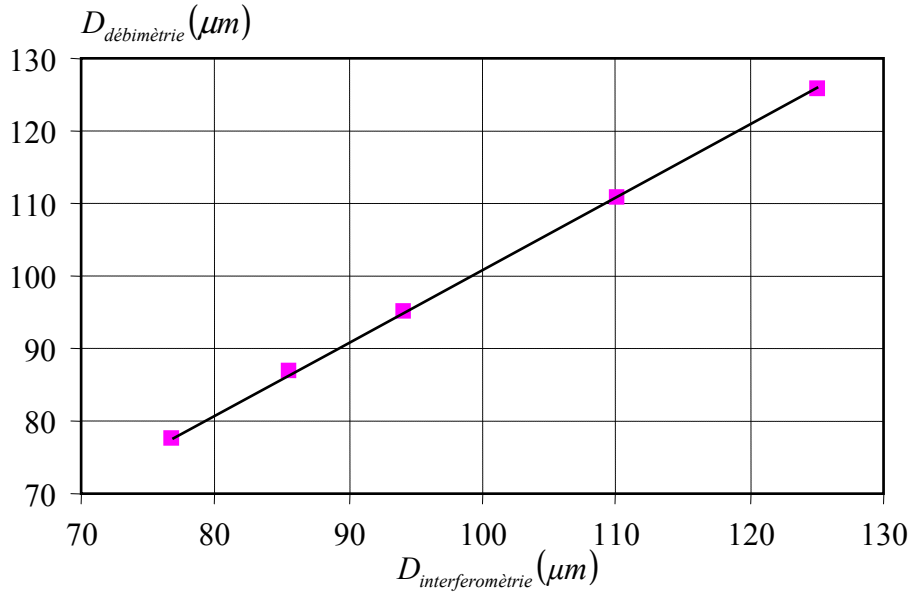


Figure 2.12 : Comparaison des mesures de diamètre obtenues pas interférométrie et débitmètrie après ajustement de l'angle d'observation à $\theta_d = 30°$.

Evaluation de l'incertitude

L'expression différentielle de l'équation 2.5 permet d'évaluer l'incertitude sur le diamètre mesuré :

$$\Delta D = \left|\frac{\partial D}{\partial \Delta i}\right| \Delta(\Delta i) + \left|\frac{\partial D}{\partial \theta_d}\right| \Delta\theta_d + \left|\frac{\partial D}{\partial n}\right| \Delta n \qquad (2.10)$$

Les différentes sources d'incertitude sont donc liées à la mesure de l'interfrange Δi, à la connaissance de l'angle θ_d et de l'indice de réfraction n :

- L'interfrange est supposée connue avec une précision de $\Delta(\Delta i) = \pm 0.5\% \Delta i$, cette valeur représentant la dispersion RMS des acquisitions sur un point.
- L'angle d'observation θ_d est connu avec une précision $\Delta\theta_d = \pm 0.5°$.
- L'indice de réfraction est connu avec une précision $\Delta n = \pm 0.003$.

Pour un diamètre de l'ordre de 100 µm, ces incertitudes induisent une erreur sur le diamètre de l'ordre de $\pm$ 1 µm.

2.3.3 Fluorescence induite par laser

La fluorescence induite par laser est une technique de mesure quantitative utilisée en particulier dans le domaine de la mécanique des fluides et des phénomènes de transport. Ce domaine d'application n'est pas exclusif, puisque l'utilisation de cette technique est aussi répandue dans le secteur de la physico-chimie, des sciences du vivant et de la microscopie en particulier (Valeur, 2004).
La fluorescence correspond à la désexcitation spontanée d'un état excité singulet d'une espèce atomique ou moléculaire. L'état excité peut être peuplé de différentes façons dont l'utilisation de décharges électriques (technique utilisée dans les lasers à gaz ionisés par exemple), de réactions chimiques ou bien par absorption d'un rayonnement électromagnétique. C'est ce dernier mode qui nous intéressera ici. Dans ce cas, l'utilisation d'un rayonnement laser permet de délivrer une énergie considérable sur une bande spectrale extrêmement réduite. Le résultat, dans le cas d'une molécule fluorescente est une émission lumineuse poly-chromatique, en général décalée spectralement vers des longueurs d'onde supérieures à la radiation excitatrice. On parlera alors de fluorescence induite par laser.
L'émission fluorescente (que l'on nommera par la suite « signal de fluorescence ») dépend d'une part des caractéristiques intrinsèques de l'émetteur, à savoir de la molécule fluorescente, mais aussi des grandeurs thermodynamiques du milieu. En effet l'intensité de cette émission fluorescente dépend en particulier du nombre d'émetteurs par unité de volume (concentration volumique), de la température, de la viscosité du milieu et de la présence éventuelle de molécules tiers. On peut noter ainsi une dépendance en pression rencontrée essentiellement en phase gazeuse (Lemoine 1995, Mc Daniel 1993), bien qu'une telle dépendance ait été notée en phase liquide, mais pour des variations de pression assez peu rencontrées dans des situations usuelles.

L'intérêt pratique d'utiliser la fluorescence induite par laser afin de mesurer une grandeur physique caractérisant le milieu dans lequel se trouve l'espèce fluorescente résulte de plusieurs facteurs directement issus de la physique du phénomène :

- le faible seuil de détectivité, puisque quelques ppm (partie par million) de l'espèce fluorescente suffisent à produire un signal mesurable et exploitable, ceci étant lié à la forte section efficace d'absorption des espèces fluorescentes,
- le temps de réponse extrêmement court, tenant à la brièveté de la durée de vie de l'état excité de la molécule, de l'ordre 10^{-6} s à 10^{-9} s, ce qui permet d'envisager l'investigation de phénomènes rapidement variables,
- le décalage spectral entre le spectre d'absorption et le spectre de fluorescence qui permet une séparation aisée du rayonnement excitateur et de la fluorescence.

Les molécules situées sur le passage du faisceau laser sont susceptibles d'être excitées avec une probabilité fonction de leurs sections efficaces d'absorption. Le retour à l'état fondamental peut s'effectuer en suivant deux types de transition.

♦ Transitions radiatives

Pour décrire les transitions radiatives, nous considérerons une molécule présentant deux états énergétiques 1 et 2, 1 désignant l'état fondamental, de plus basse énergie et 2 l'état excité. Cette molécule est excitée par une onde électromagnétique de fréquence ν_{12} tel que $E_2 - E_1 = h\nu_{12}$. La molécule M dans l'état fondamental 1 absorbe un photon et passe dans l'état excité 2 suivant :

$$M + h\nu_{12} \rightarrow M^* \tag{2.11}$$

Le retour à l'état fondamental peut s'effectuer par émission spontanée d'un photon suivant :

$$M^* \rightarrow M + h\nu_{12}^{'} \tag{2.12}$$

Il s'agit du phénomène d'émission spontanée ou de fluorescence.

♦ Principe de Franck-Condon

Le temps de transition de l'état fondamental vers l'état excité est très court, de l'ordre de 10^{-15} s ; il n'y a aucune modification de la position géométrique des noyaux atomiques durant la transition, du fait des mouvements de rotation et de vibration (échelle de temps caractéristique, 10^{-12}s). La structure de la molécule stable à l'état fondamental ne correspond pas à la structure stable à l'état excité : l'absorption est donc suivie généralement d'une « relaxation vibrationnelle » à l'état excité (figure 2.13), ramenant la molécule à l'état vibrationnel le plus bas de l'état électronique excité. L'émission fluorescente d'une molécule se fera donc à des longueurs d'onde supérieures à celles de la radiation excitatrice et le spectre de fluorescence sera donc décalé vers le rouge par rapport à la radiation excitatrice.

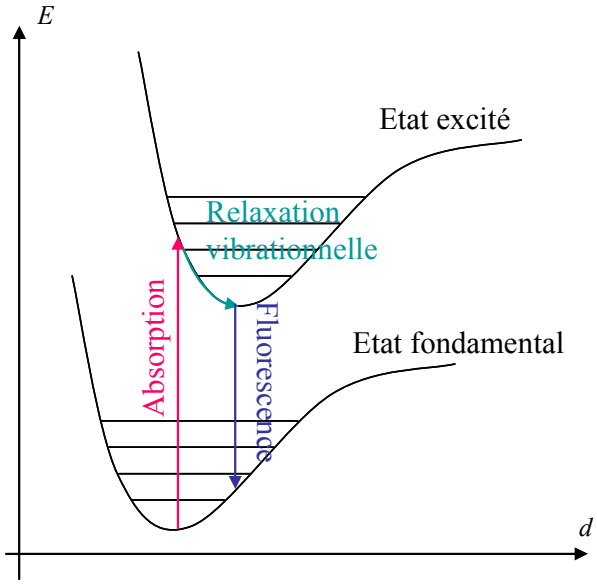


Figure 2.13 : Illustration du principe de Franck Condon dans le cas de molécules diatomiques.

On pourra observer les exemples de l'acétone excité par un rayonnement laser U.V. (266 nm) et la rhodamine B excitée par rayonnement à 514.5 nm (figure 2.14). Dans la pratique, il sera donc relativement aisé de séparer le rayonnement excitateur du rayonnement ré-émis par fluorescence.

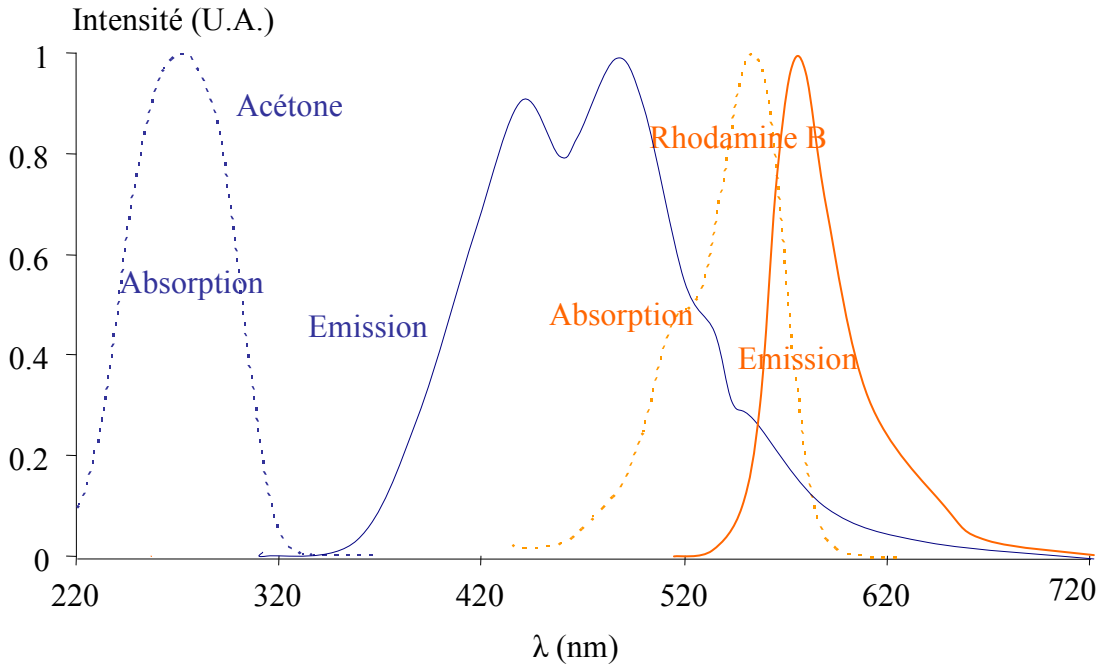


Figure 2.14 : Spectres d'émission et d'absorption de l'acétone et de la Rhodamine B : illustration du décalage spectral vers le rouge.

♦ Transitions non radiatives

D'autres mécanismes, non radiatifs, concourent à la désactivation de l'état excité, chacun d'eux étant caractérisé par un taux de transition propre :

- désactivation collisionnelle ou « quenching ». La désactivation collisionnelle, correspond à une relaxation inélastique par choc. En phase liquide, ce mode de désactivation est essentiellement due à la température, mais aussi à la composition du liquide,
- conversions internes, correspondant à un passage à des états énergétique voisins,
- passage de l'état singulet à l'état triplet, pouvant donner lieu à des phénomènes de phosphorescence (conversions inter-systèmes) qui présente des durées de vie beaucoup plus longues que la fluorescence.

Le graphe de la figure 2.15 résume de façon schématique les différents mécanismes de transition entre l'état fondamental et l'état excité.

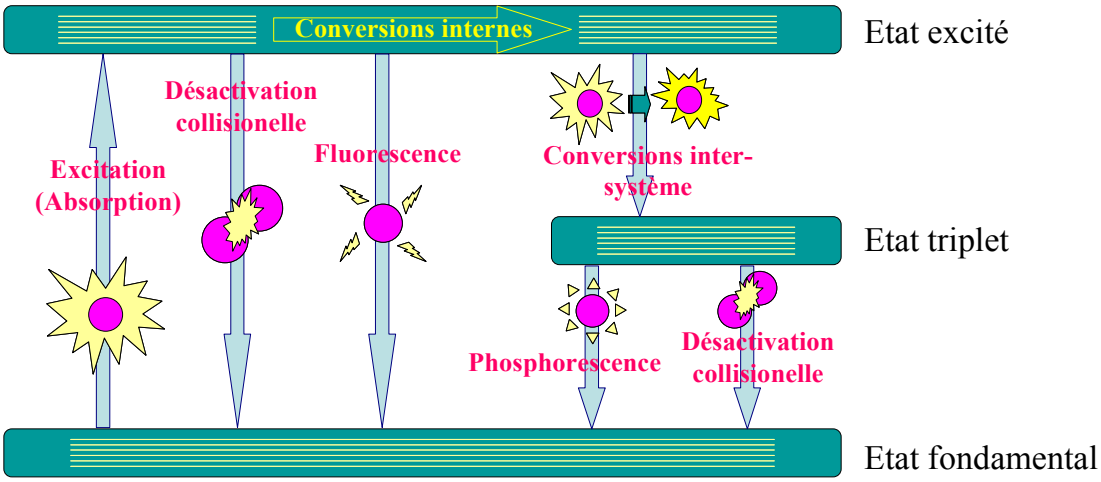


Figure 2.15 : Principe de la fluorescence

♦ Rendement quantique de fluorescence

Le rendement de fluorescence η quantifie le rapport entre le nombre de transitions radiatives et tous les modes de transission, il est défini par :

$$\eta = \frac{A_{21}}{A_{21} + Q + Q_{Tr} + Q_{CI}} \tag{2.13}$$

où A_{21} représente le taux de transitions par émission spontanée, Q par désactivation collisionnelle, Q_{Tr} par passage à l'état triplet et Q_{CI} par conversion interne.

♦ Equation générale de la fluorescence

En régime linéaire, c'est-à-dire sans absorption du faisceau incident et sans réabsorption du signal de fluorescence, hors saturation, le signal de fluorescence peut s'écrire sous la forme (Lavielle, 2001, Castanet, 2004) :

$$I_f = K_{opt}\varepsilon(\lambda_l)C_V V_m I_O \tag{2.14}$$

où $\varepsilon(\lambda_l)$ est le coefficient d'absorption molaire à la longueur d'onde λ_l du laser, C est la concentration en traceur, V_m est le volume de mesure et I_O l'intensité laser incidente. Le produit $C_V V_m$ désigne le nombre de molécules dans la zone de mesure. V_m est défini par l'intersection entre la zone excitée par le laser et celle collectée par le dispositif de détection de la fluorescence.

♦ Absorption sur le chemin optique

L'équation (2.14) ne prend pas en compte l'atténuation du rayonnement (figure 2.16) laser incident traversant le milieu ensemencé en traceur fluorescent. La loi de Beer-Lambert permet de décrire cette absorption sous la forme :

$$I_l = I_0 e^{-\varepsilon(\lambda_l)\int_0^l C_V(x)dx} \tag{2.15}$$

où I_0 est l'intensité incidente et I_l est l'intensité du faisceau après avoir traversé un chemin optique *l*.

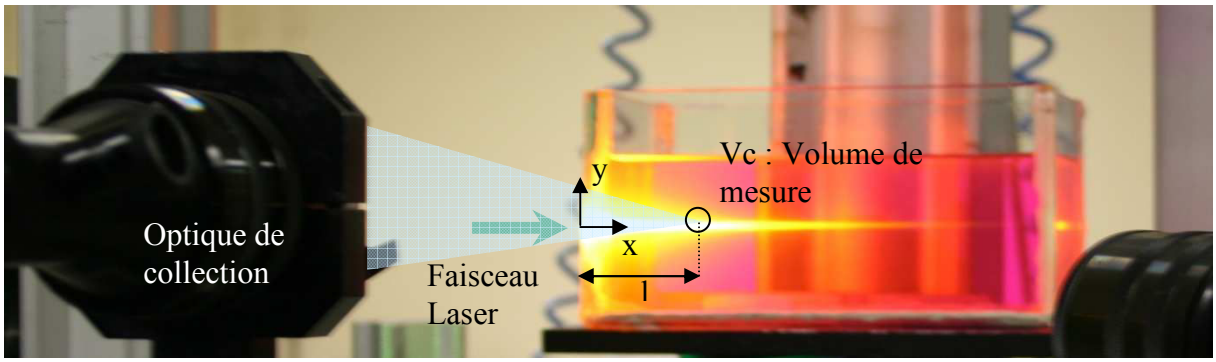


Figure 2.16 : Illustration de la zone de mesure d'un faisceau laser à 514.5 nm et de l'absorption d'une solution ensemencée en Rhodamine B.

♦ Réabsorption sur le chemin optique

Pour de nombreuses espèces fluorescentes il existe une zone non négligeable de recouvrement entre le spectre de fluorescence et d'absorption. On pourra observer le cas de la rhodamine B (figure 2.14). Cela conduit à une réabsorption du signal de fluorescence sur le chemin optique correspondant au trajet du signal entre le volume de mesure et le dispositif de collection des photons.

2.4 Conclusion

Le dispositif expérimental présenté permettra de générer une grande variété de conditions aérothermiques, en partant de celle de l'évaporation à l'air ambiant pour aller vers celle de la forte évaporation ou encore la combustion. La métrologie mise en place permettra d'apporter des informations quantitatives précises sur le diamètre et la vitesse des gouttes. Les techniques fondées sur la fluorescence induite par laser développées dans les chapitres suivants vont permettre de déterminer la température et la composition de gouttes composées d'un mélange d'acétone et d'éthanol évoluant dans une configuration de jet monodisperse.

Chapitre 3 : Mesure de la température de gouttes bicomposant par fluorescence induite par laser

Nomenclature

Symboles latins

A_{12}	Coefficient d'Einstein	s^{-1}
C	Concentration volumique	*mol/l*
f	Fonction de calibration	
I	Intensité lumineuse	W/m^2
K_{opt}	Constante optique	
K_{spec}	Constante spectroscopique	
Q	Taux de désactivations collisionnelles	
R	Rapport de fluorescence	
T	Température	*°C*
t	Temps	*s*
Z	Fraction volumique	

Symboles grecs

β	Fonction de calibration	
γ	Fonction de calibration	
ε	Coefficient d'absorption molaire	*mol/l/m*
λ	Longueur d'onde	*nm*
η	Rendement quantique de fluorescence	

Indices

a	Relatif à l'acétone
e	Relatif à l'éthanol
i,1,2 ou 3	Relatif à la bande spectrale i, 1, 2 ou 3
ref	Relatif à un état de référence

Chapitre 3

3.1 Introduction et bibliographie

Dans les chambres de combustion des systèmes propulsifs automobiles et aéronautiques, le combustible est injecté sous la forme d'un nuage de fines gouttelettes, qui s'échauffent et s'évaporent. Enfin intervient le mélange entre la vapeur et le comburant puis la combustion. La diversité des espèces composant le combustible doit être prise en compte pour décrire l'évaporation des gouttes et la combustion, en particulier lorsque les composants ont des volatilités différentes. Le taux d'évaporation du combustible dépend en particulier des propriétés physiques du combustible en phase liquide, telles que la diffusivité massique, la pression de vapeur saturante, la viscosité ou encore la conductivité thermique (Sirignano, 1999). Ces propriétés sont particulièrement sensibles à la température du liquide ; la compréhension de ces phénomènes d'évaporation nécessite donc une caractérisation de la température de gouttes multicomposant.

De telles investigations expérimentales requièrent le développement de diagnostics optiques adaptés. La littérature propose quelques techniques de mesure dans le cas de gouttes monocomposant. La réfractométrie arc-en-ciel, permet de déterminer l'indice de réfraction de gouttes en mouvement. Sous certaines hypothèses de sphéricité et d'homogénéité, l'indice mesuré peut être directement relié à la température. Un faisceau laser incident traversant une goutte parfaitement sphérique est diffusé dans des directions privilégiées qui vont dépendre de la taille de la particule et de son indice. Ainsi la position angulaire de l'arc-en-ciel monochromatique dépend de l'indice de réfraction qui lui-même dépend de la température (Walker, 1976, Van Beeck et Riethmuller, 1995, Van Beeck et Riethmuller, 1997). Une autre méthode est basée sur la fluorescence émise par un exciplex résultant de la réaction chimique entre un monomère excité et une autre molécule (Lu et Metlon, 2000). Malheureusement cette méthode doit être mise en œuvre sous une atmosphère neutre, l'exciplex formé étant très sensible au quenching par l'oxygène et n'est donc pas transposable aux milieux réactifs. Enfin, le développement de la fluorescence induite par laser à deux couleurs, initié par Lavieille et al. (2001), permet de mesurer la température moyenne de gouttes en mouvement en évaporation ou en combustion. Cette technique repose sur l'utilisation d'un traceur fluorescent, tel que la rhodamine B, sensible à la température. Le rapport de deux intensités de fluorescence collectées sur deux bandes spectrales différentes permet de s'affranchir de paramètres inconnus tels que l'intensité laser, la concentration en traceur et le volume de mesure.

Les extensions de ces différentes techniques à des gouttes multicomposant sont très peu nombreuses. Ainsi, seules les techniques basées sur la thermographie infrarouge et la diffusion de la lumière sont présentes dans la littérature. Daïf et al. (1999), par exemple, se basent sur la thermographie infrarouge pour étudier l'évaporation de gouttes composées d'un mélange d'heptane et de décane. Ils s'intéressent à des gouttes d'un diamètre de l'ordre de 600 µm, suspendu à un capillaire, en évaporation naturelle ou forcée. Zhao et Qiu (2004) utilisent des mesures d'indice de réfraction basées sur la technique arc-en-ciel afin de

déterminer la température de gouttes composées d'éthanol et d'eau. Un ensemble de calibrations initiales est nécessaire afin de quantifier la dépendance de l'indice de réfraction à la température pour chaque mélange. Cependant, il est impossible de séparer les effets liés aux variations de température, de ceux liés aux variations de composition, puisque l'indice de réfraction dépend de ces deux paramètres. Les principales limitations de la réfractométrie arc-en-ciel, pouvant entraîner un biais sur la mesure, sont liées à la non-sphéricité des gouttes et aux gradients d'indice dans la goutte, associées soit à des gradients thermiques, soit à des gradients de composition. D'autres techniques basées sur la diffusion de la lumière existent comme la spectroscopie Raman. La diffusion Raman résulte d'un choc inélastique de la lumière sur les noyaux et le nuage d'électrons de molécules diffusantes. Cette dissipation d'énergie induit sur le photon incident un décalage en longueur d'onde qui dépend des caractéristiques physiques de la molécule diffusante. En utilisant ce phénomène de diffusion Raman, Devarakonda et Ray (1999), par exemple, proposent de mesurer la température et le diamètre de gouttes bicomposant composées d'un mélange d'éthanol et d'eau évoluant dans une configuration de type jet monodispersé.
L'objectif de ce chapitre est d'étendre la technique de mesure par FIL développée par Lavieille et al. (2001) au cas de gouttes bicomposant en séparant les effets liés à la température et à la composition sur le signal de fluorescence à l'aide d'une troisième bande spectrale de détection.

3.2 Modélisation du signal de fluorescence émise par un traceur fluorescent en solution dans un liquide

La mesure de température nécessite l'introduction d'un traceur fluorescent dans le combustible avant sa désintégration en gouttelettes. Le traceur choisi dans le cadre de cette étude est la rhodamine B présentant une sensibilité importante à la température. La rhodamine B se présente sous la forme d'une poudre noire qui une fois diluée à des concentrations de l'ordre de $10^{-6}\, mol/l$, donne une solution de couleur rosée.

L'expression du signal de fluorescence en fonction de la longueur d'onde est donnée par (Castanet et al., 2003) :

$$I_{fluo}(\lambda) = K_{spec} K_{opt}(\lambda) \varepsilon(\lambda_l) \eta C_0 e^{-\varepsilon(\lambda) C_0 e} \int_V I(\vec{x}) dV \tag{3.1}$$

Celle-ci peut être simplifiée en prenant en compte les propriétés de la rhodamine B et les conditions dans laquelle celle-ci est utilisée. Tout d'abord la concentration en traceur est telle que le terme d'absorption du faisceau laser incident $e^{-\varepsilon(\lambda_l) C_0 l}$ peut être négligé. La valeur du coefficient d'absorption $\varepsilon(\lambda_l)$ relatif à la longueur d'onde du faisceau laser utilisé (514.5 nm) peut être déterminée expérimentalement. Des mesures effectuées à l'aide d'un spectromètre

d'absorption (figure 3.1) confirme la valeur trouvée par Lavieille et al. (2001) de $7.9\times10^{6}\,mol/l$.

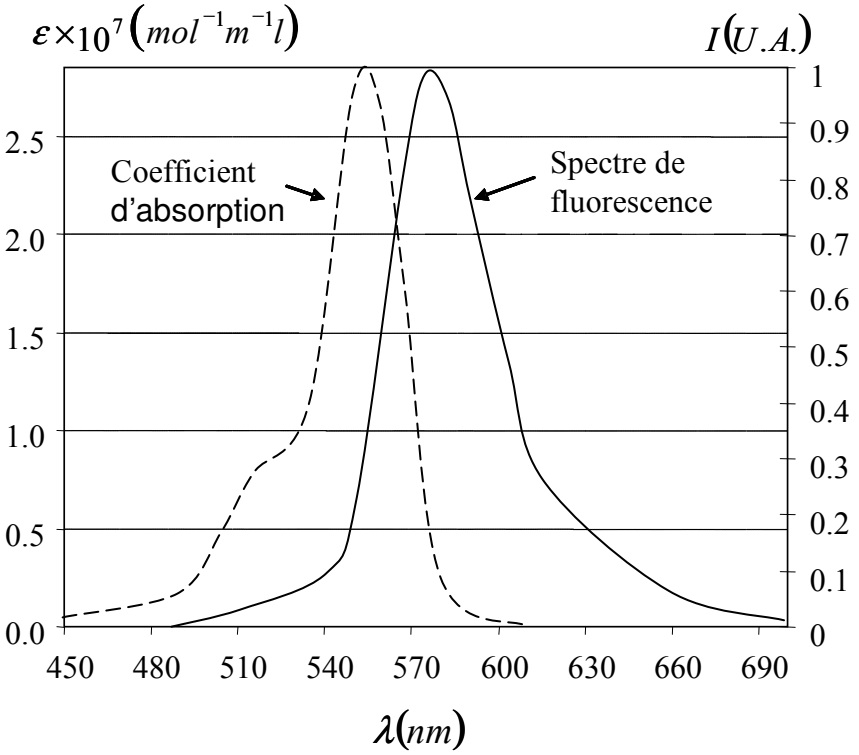


Figure 3.1: Spectre d'émission de la fluorescence et d'absorption de la rhodamine B.

La concentration en traceur utilisée pour réaliser nos mesures est de l'ordre de $10^{-6}\,mol/l$ et les chemins optiques considérés sont faibles (de l'ordre de la centaine de micromètres). Ces considérations réunies permettent de négliger le terme d'absorption. Pour une trajectoire optique d'une longueur de $100\mu m$, l'atténuation de l'intensité du faisceau laser est de 0.1%.

Le terme intégral $\int_V I(\vec{x})dV$ intervenant dans (3.1) représente l'éclairement de la goutte ; en l'absence d'absorption ce terme peut s'écrire simplement $\int_V I(\vec{x})dV = V_m I_0$; où V_m est le volume de mesure et I_0 l'intensité incidente. Le volume de mesure est défini comme la fraction de la goutte éclairée par le volume d'excitation et vue par le dispositif de collection.

Le spectre de fluorescence et celui d'absorption ont une plage de longueurs d'onde commune (figure 3.1). Une partie des photons de fluorescence est donc susceptible d'être réabsorbée par le milieu ensemencé en rhodamine B. Pour les mêmes raisons, relatives aux faibles chemins optiques et à la faible concentration en traceur, le terme de réabsorption des photons de fluorescence $e^{-\varepsilon(\lambda)C_0 e}$ peut être négligé.

La dépendance en température intervient dans l'expression du rendement quantique de fluorescence η. En effet, ce terme représente le rapport entre le taux de transitions par émission de fluorescence spontanée A_{21} et le taux de transitions radiatives ou non. Les

transitions non radiatives sont principalement représentées par le taux de désactivation collisionnelle Q :

$$\eta = \frac{A_{21}}{Q + A_{21}} \tag{3.2}$$

Le taux de désactivation Q peut être modélisé par une loi de type Arrhenius (Glovacki, 1964) en fonction des différentes espèces présentes dans la solution :

$$Q = \sum_{i=1}^{n} K_{qi}[A_i] \tag{3.3}$$

où $[A_i]$ représente la concentration moléculaire de l'espèce considérée et où $K_{qi} = K_{qi0} e^{-\frac{E_{a_i}}{k_b T}}$ est une constante de quenching relative à chaque espèce et dépend de la température. E_{a_i} représente l'énergie d'activation pour réaliser la collision entre le traceur fluorescent et le partenaire. Etant donné la faible concentration en traceur fluorescent utilisée, le self quenching sera négligé. Dans le cas du mélange étudié, seules les deux espèces ultra-majoritaires (acétone et éthanol) seront considérées. De plus, dans les milieux condensés comme en phase liquide, le nombre de transitions non-radiatives est très grand devant le nombre de transitions radiatives

$$Q >> A_{21} \tag{3.4}$$

Dans le cadre de cette étude et en tenant compte des remarques précédentes, le rendement quantique de fluorescence pourra être écrit à l'aide d'une fonction de la fraction volumique d'éthanol Z_e représentant la composition du mélange, de la longueur d'onde λ et de la température T sous la forme :

$$\eta \propto \gamma_i(Z_e, \lambda) e^{\frac{\beta_i(Z_e,\lambda)}{T}} \tag{3.5}$$

Les fonctions spectrales β et γ introduites sont propres au mélange étudié et dépendent de Z_e. Ces deux fonctions feront l'objet d'une étude expérimentale préliminaire.

En première approche l'équation, 3.1 relative à l'intensité de fluorescence par longueur d'onde devient :

$$I_{fluo}(\lambda, T, Z_e) = K(\lambda, \lambda_l) V_m C_0 I_0 \gamma_i(Z_e, \lambda) e^{\frac{\beta_i(Z_e,\lambda)}{T}} \tag{3.6}$$

où $K(\lambda,\lambda_l)$ regroupe différents paramètres comme les constantes optiques $K_{opt}(\lambda)$ et spectroscopiques $K_{spec}(\lambda)$, le coefficient d'absorption $\varepsilon(\lambda_l)$ et le taux de transitions par émission de fluorescence A_{21}. En pratique, l'intensité de fluorescence est collectée sur une bande spectrale : $[\lambda_1,\lambda_2]$. En première approximation, l'intégration de l'équation (3.6) peut être écrite sous la forme :

$$I_i(T,Z_e)=\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} I_{fluo}(\lambda)d\lambda = KV_m C_0 I_0 \gamma_i(Z_e) e^{\frac{\beta_i(Z_e)}{T}} \tag{3.7}$$

Cette approche fera l'objet d'une validation expérimentale à posteriori. Les fonctions γ_i et β_i intervenant dans l'expression du signal de fluorescence sont propres à la bande spectrale *i*, aux fluides utilisés et au traceur fluorescent et doivent d'être calibrées une fois pour toute.

3.2.1 Fluorescence induite par laser à trois couleurs

Le combustible préalablement ensemencé en rhodamine B est injecté sous forme de gouttelettes. Ces gouttelettes, en traversant un faisceau laser, vont émettre un signal de fluorescence (Figure 3.2). Le signal observé prend une forme de cloche: la goutte commence à émettre un signal de la fluorescence à son entrée dans le volume de mesure, puis cette intensité de fluorescence devient maximale lorsque la goutte est centrée dans ce volume et enfin le signal de fluorescence disparaît lorsque la goutte sort du volume de mesure.

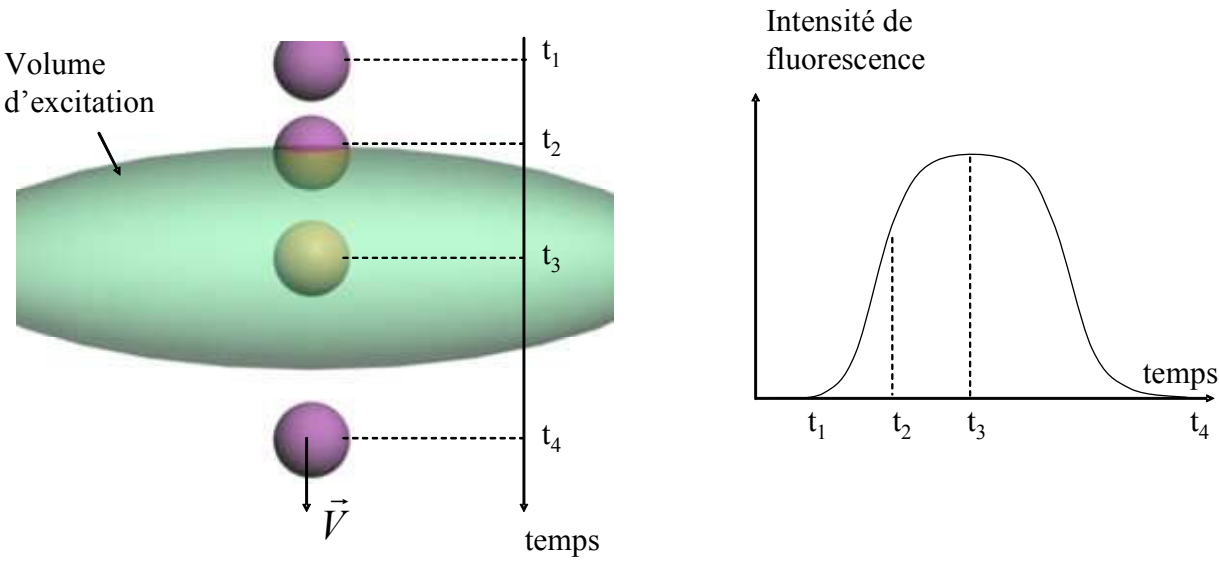


Figure 3.2: Evolution du signal de fluorescence lors du passage d'une goutte dans le volume de mesure

Le volume de collection des photons de fluorescence correspond à la projection du filtre spatial utilisé (cœur de la fibre optique) sur le volume d'excitation. Le volume de mesure sera défini par l'intersection du volume de collection avec la goutte. La variation du volume de

mesure V_m induite par le passage de la goutte dans le volume d'excitation n'est pas quantifiable. De plus, la goutte voit son diamètre évoluer du fait de l'évaporation. Ceci engendre une variation de la concentration du traceur fluorescent qui ne permet pas une connaissance précise du terme C_0 dans l'équation 3.7. Enfin, l'intensité laser incidente I_0 est tributaire de la stabilité du laser. L'expression 3.7 laisse donc apparaître un grand nombre d'inconnues, auxquelles il faut ajouter la température T et la composition du mélange Z_e.

Cette difficulté n'est pas propre à la mesure sur des gouttes bicomposant. Elle peut être levée comme proposé par Lavieille et al. (2001) en utilisant deux bandes spectrales de détection dont la sensibilité en température est très différente. Le rapport entre les intensités mesurées sur ces deux bandes spectrales est indépendant de C_0, V_m et I_0 et ne dépend que de la température. Dans le cas d'un mélange binaire, il y a une inconnue supplémentaire qui est la composition du mélange représentée par la fraction volumique d'éthanol Z_e. Ainsi, deux rapports de fluorescence sont construits, présentant des sensibilités à la composition et à la température très différenciées. Il sera donc nécessaire d'utiliser trois bandes spectrales de détection, sur lesquels les signaux de fluorescence s'écrivent, d'après 3.7 :

$$\begin{cases} I_1 = K_1 V_m C_0 I_0 \gamma_1(Z_e) e^{\frac{\beta_1(Z_e)}{T}} \\ I_2 = K_2 V_m C_0 I_0 \gamma_2(Z_e) e^{\frac{\beta_2(Z_e)}{T}} \\ I_3 = K_3 V_m C_0 I_0 \gamma_3(Z_e) e^{\frac{\beta_3(Z_e)}{T}} \end{cases} \tag{3.8}$$

Ces trois intensités sont collectées simultanément par le même dispositif optique, les paramètres V_C, C_0 et I_0 étant les mêmes pour les trois bandes de détection. Ainsi, les rapports d'intensité $R_{12} = I_1/I_2$ et $R_{23} = I_2/I_3$ permettent d'éliminer la dépendance à la concentration du traceur fluorescent, à l'intensité laser incident et au volume de mesure V_m . Ces rapports s'écrivent :

$$\begin{cases} R_{12}(T, Z_e) = \dfrac{K_1}{K_2} \dfrac{\gamma_1(Z_e)}{\gamma_2(Z_e)} e^{\frac{\beta_1(Z_e) - \beta_2(Z_e)}{T}} \\ R_{23}(T, Z_e) = \dfrac{K_2}{K_3} \dfrac{\gamma_2(Z_e)}{\gamma_3(Z_e)} e^{\frac{\beta_2(Z_e) - \beta_3(Z_e)}{T}} \end{cases} \tag{3.9}$$

Les constantes K_1, K_2 et K_3 sont relatives aux bandes spectrales. Ces paramètres dépendent entre autres des filtres optiques et des photo-détecteurs utilisés. Ces constantes ne sont pas quantifiables directement et peuvent être déterminées par une mesure de référence où la température et la concentration sont connues. La mesure de référence est effectuée dans les

mêmes conditions que la mesure, ce qui permet d'éliminer les constantes K_1, K_2 et K_3 en divisant les équations par les rapports de référence :

$$\begin{cases} \dfrac{R_{12}(T,Z_e)}{R_{12}(T_{ref},Z_{eref})} = \dfrac{\gamma_1(Z_e)}{\gamma_2(Z_e)}\dfrac{\gamma_2(Z_{eref})}{\gamma_1(Z_{eref})} e^{\frac{\beta_{12}(Z_e)}{T}-\frac{\beta_{12}(Z_{eref})}{T_{ref}}} \\ \dfrac{R_{23}(T,Z_e)}{R_{23}(T_{ref},Z_{eref})} = \dfrac{\gamma_2(Z_e)}{\gamma_3(Z_e)}\dfrac{\gamma_3(Z_{eref})}{\gamma_2(Z_{eref})} e^{\frac{\beta_{23}(Z_e)}{T}-\frac{\beta_{23}(Z_{eref})}{T_{ref}}} \end{cases} \tag{3.10}$$

avec $\beta_{12}(Z_e)=\beta_1(Z_e)-\beta_2(Z_e)$ et $\beta_{23}(Z_e)=\beta_2(Z_e)-\beta_3(Z_e)$.

Un étalonnage préalable permet de caractériser les fonctions $\beta_{12}(Z_e), \beta_{23}(Z_e)$, $\dfrac{\gamma_1(Z_e)}{\gamma_2(Z_e)}\dfrac{\gamma_2(Z_{eref})}{\gamma_1(Z_{eref})}$, et $\dfrac{\gamma_2(Z_e)}{\gamma_3(Z_e)}\dfrac{\gamma_3(Z_{eref})}{\gamma_2(Z_{eref})}$. Il apparaît alors un système de deux équations à deux inconnues dont la précision de la solution dépend du choix des bandes spectrales.

3.3 Etalonnages préliminaires

3.3.1 Choix des bandes spectrales

Les bandes spectrales optimales sont déterminées par une étude spectroscopique préliminaire. La figure 3.3 représente le spectre d'émission de la rhodamine B dans un mélange d'éthanol et d'acétone tel que $Z_e = 0.5$ pour trois températures : 25°C, 35°C et 45°C. La dépendance en température est clairement mise en évidence, plus celle-ci est élevée, plus le signal de fluorescence est faible.

Les fonctions $\beta(\lambda, Z_e)$ sont obtenues comme le rapport entre les spectres obtenus à deux températures différentes T_1 et T_2 et à composition fixée. En reprenant l'expression (3.6), il vient :

$$\beta(\lambda,Z_e) = \ln\left(\frac{I(\lambda,T_1,Z_e)}{I(\lambda,T_2,Z_e)}\right) \Big/ \left(\frac{1}{T_1}-\frac{1}{T_2}\right) \tag{3.11}$$

L'obtention des fonctions $\beta(\lambda, Z_e)$ permet de déterminer les fonctions $\gamma(\lambda, Z_e)$, définies comme le rapport entre deux spectres obtenus à deux compositions différentes et à température fixée en se donnant une composition de référence Z_{eref} :

$$\frac{\gamma(\lambda, Z_e)}{\gamma(\lambda, Z_{eref})} = \frac{I(\lambda, T, Z_e)}{I(\lambda, T, Z_{eref})} e^{\frac{\beta(\lambda, Z_{eref}) - \beta(\lambda, Z_e)}{T}} \tag{3.12}$$

Les fonctions $\beta(\lambda, Z_e)$ représentées pour trois compositions (figure 3.4), sont des indicateurs de sensibilité à la température, alors que les fonctions $\gamma(\lambda, Z_e) / \gamma(\lambda, Z_{eref})$ sont plutôt des indicateurs de sensibilité à la composition.

La zone spectrale comprise entre 530 et 570 nm est faiblement sensible à la température, et fortement sensible à la composition du combustible. Au delà de 570 nm, la sensibilité en température est relativement élevée avec une valeur maximale aux alentours de 580 nm. De plus, la sensibilité en température est bien fonction de la composition du mélange. Les trois bandes spectrales sont choisies en considérant qu'il y a deux équations à deux inconnues, devant être rendues le plus indépendantes possible l'une de l'autre afin d'obtenir une précision maximale.

Le rapport R_{23} doit être très sensible à la température mais également à la fraction volumique d'éthanol Z_e. La sensibilité en température du rapport R_{12} doit être plus faible, mais il doit être sensible à la composition du mélange. Les bandes sont donc sélectionnées à l'aide un compromis entre les règles précédentes et la disponibilité des filtres optiques sur le marché :

- Bande 1 : [525 nm 535 nm]
- Bande 2 : [535 nm 545 nm]
- Bande 3 : [575 nm 585 nm]

Les deux premières bandes du spectre, représentées sur les figures 3.3 et 3.4, sont situées dans la partie verte du domaine visible à un endroit du spectre de fluorescence ou le signal est relativement faible. Il n'en est pas de même pour la troisième bande spectrale, située dans la partie rouge du spectre visible, où le signal de fluorescence est relativement important.

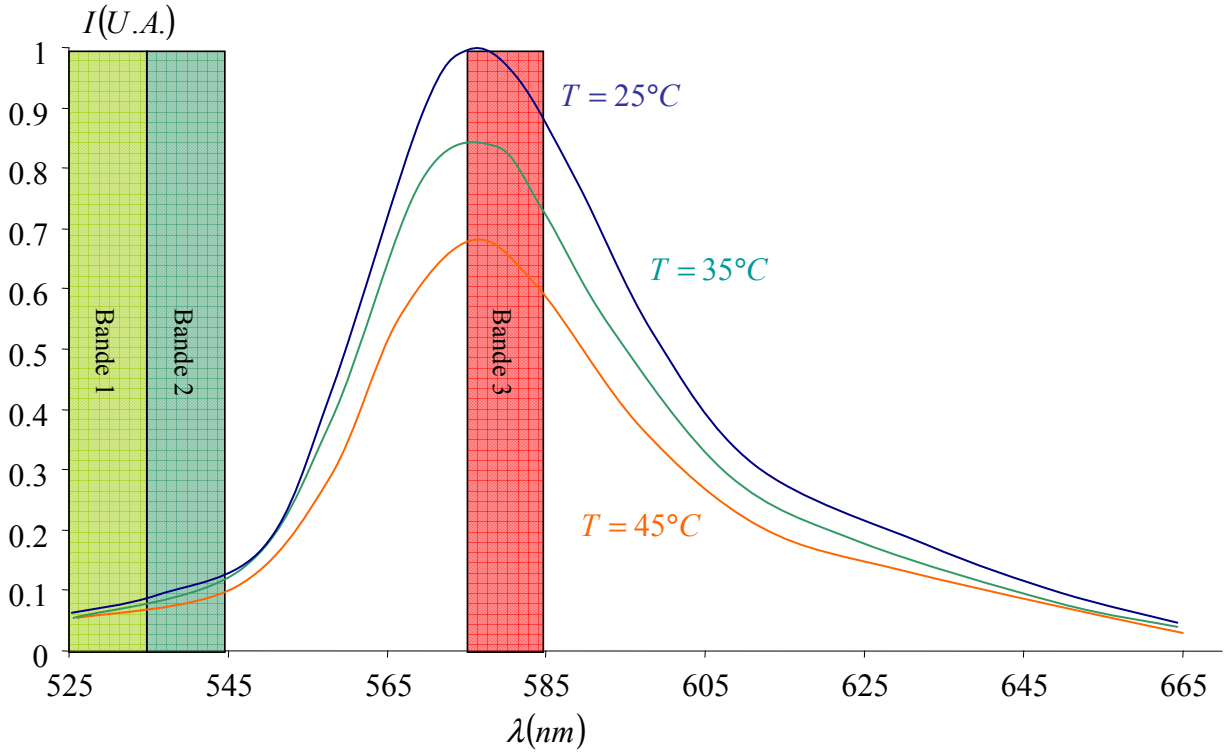


Figure 3.3: Evolution du spectre de fluorescence de la rhodamine B dans un mélange éthanol/acétone (χ=0.5) en fonction de la température

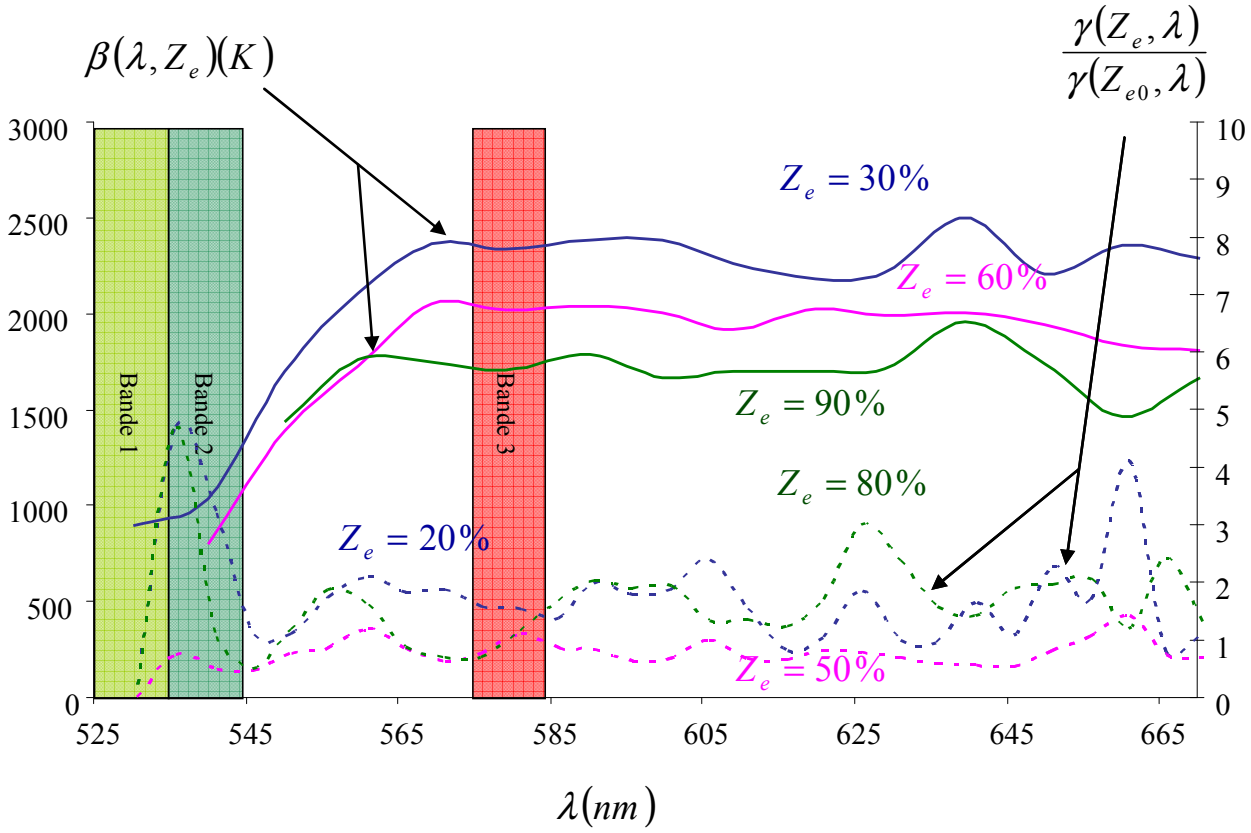


Figure 3.4: Evolution des fonctions β(Z_e, λ) et γ(Z_e , λ) pour différentes compositions

3.3.2 Dispositif expérimental

♦ Excitation laser

Le laser utilisé est un laser à argon ionisé continu dont la longueur d'onde est accordée sur 514.5 nm, approprié pour exciter la Rhodamine B. Le montage est conçu pour mesurer de manière simultanée la vitesse des gouttes par LDA (Laser Doppler Anemometry). Ainsi, un jeu de lames séparatrices et de miroirs permet de générer deux faisceaux laser parallèles. Ces deux faisceaux sont focalisés à l'aide d'une lentille convergente d'une focale de 310 mm et forment à leur intersection un ellipsoïde, de dimensions sont $115 \times 115 \times 1500 \mu m^3$, ce volume est utilisé pour la mesure de vitesse et comme volume excitateur pour les mesures par FIL.

♦ Dispositif optique

Les équations 3.10 ne sont valables que si les intensités sont recueillies simultanément sur les trois bandes spectrales. La figure 3.5 présente la configuration retenue. Le signal de fluorescence est collecté par un doublet achromatique placé à 90° par rapport au faisceau laser incident. Il est amené par fibre optique au niveau de notre dispositif de séparation des bandes spectrales et de détection. Un premier filtre coupe-bande de type Super-Notch-Plus (Kayser-Optical), présentant une densité optique de 10^6 sur la bande de coupure, a pour rôle de supprimer la composante à 514.5 nm de la lumière diffusée par les gouttes afin de ne pas perturber les mesures de fluorescence.
Ensuite, une première lame séparatrice neutre transmet 8% du signal utilisé pour la 3ème bande spectrale. Le reste du signal est réparti équitablement sur les deux autres bandes spectrales grâce à un cube séparateur. Un tel dispositif tient compte des remarques faites précédemment, puisque les 8% du signal total prélevé pour la bande 3 sont largement compensés par la distribution spectrale de l'intensité de fluorescence maximale à cet endroit du spectre (figure 3.3)
Les signaux optiques sont alors convertis en courant grâce à des photomultiplicateurs puis en tension dans la gamme [0V ; 1V] à l'aide d'un amplificateur transimpédance. Notre choix s'est porté sur des photomultiplicateurs Hamamatsu H9307-04. L'amplificateur transimpédance présente une fréquence de coupure à 200 MHz, ce qui est suffisant vis-à-vis de la fréquence du passage des gouttes limitée à 30 kHz. Ces photomultiplicateurs présentent l'avantage d'avoir une bonne sensibilité dans la zone spectrale de la fluorescence et permettent de faire des mesures dans des parties du spectre où le signal est relativement faible.
Avant d'être acquis, le signal électrique est filtré analogiquement par un filtre passe bas du deuxième ordre dont la fréquence de coupure est ajustable en fonction de celle du train de gouttes. Le signal électrique est ensuite ramené dans une gamme de tension comprise entre [-1V ; 1V] afin d'utiliser toute la plage de tension couverte par la carte d'acquisition. Les acquisitions sont réalisées avec une résolution de 12 bits et une fréquence d'échantillonnage ajustable comprise entre 50kHz et 20 MHz.

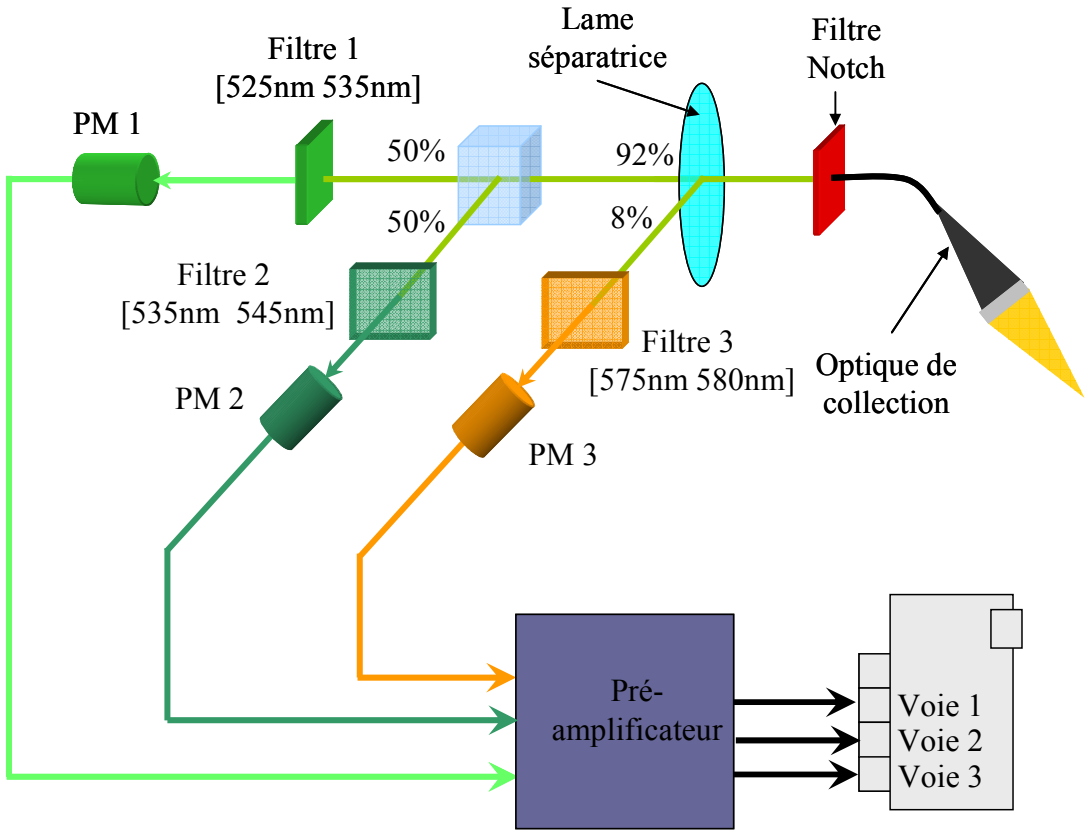


Figure 3.5 : Dispositif optique de séparation du signal de fluorescence et de détection

3.3.3 Etalonnage préliminaire

♦ Linéarité du système :

La linéarité de la chaîne de mesure, autorisant la simplification des constantes dans les rapports d'intensité, doit être vérifiée. La figure 3.6 présente l'évolution du signal de fluorescence d'un mélange éthanol/acétone $Z_e = 0.5$ ensemencé par un traceur fluorescent en fonction de la puissance laser. Il existe un caractère faiblement non linéaire sur les bandes spectrales 1 et 2 ou le signale est collecté avec une ordonnée à l'origine non nulle. Ceci ce traduit par un rapport des intensités non constant en fonction de la puissance laser comme le montre la figure 3.6. Toutefois, pour des intensités de signal assez grand l'influence de ces ordonnées à l'origine est moins marquée. Pour s'affranchir de ce problème, il convient donc de recueillir des intensités correspondant à un signal de plus de 10 U.A. Un constat identique est effectué pour les bandes spectrales 2 et 3. Cette procédure sera respectée au cours des mesures.

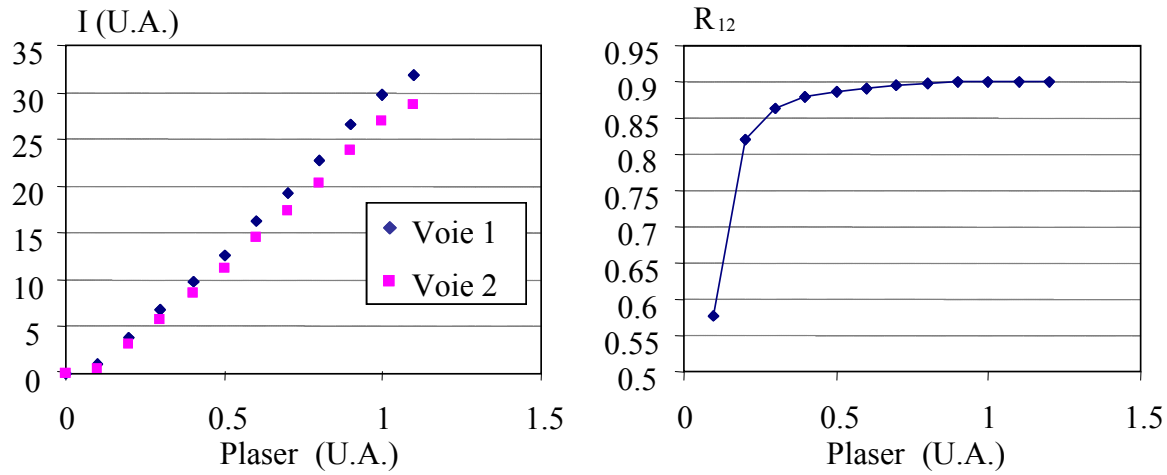


Figure 3.6 : Linéarité de la chaîne de mesure testée sur une solution en cuve

♦ Etalonnages :

La modélisation du signal de fluorescence fait intervenir des fonctions inconnues qui doivent être déterminées expérimentalement en calibrant le signal de fluorescence en fonction de la température et de la composition du mélange. La figure 3.7 présente le dispositif de calibration. La solution étudiée est placée dans une cuve hermétiquement fermée afin d'empêcher l'évaporation du produit et ainsi de maintenir une composition constante. La cuve est agitée en permanence afin d'assurer l'homogénéité thermique et d'éviter le photo-blanchissement de la solution. Un module à effet Pelletier permet de faire varier la température dans la plage [15°C ; 50°C] qui est mesurée à l'aide d'un thermocouple de type K plongé dans le liquide.

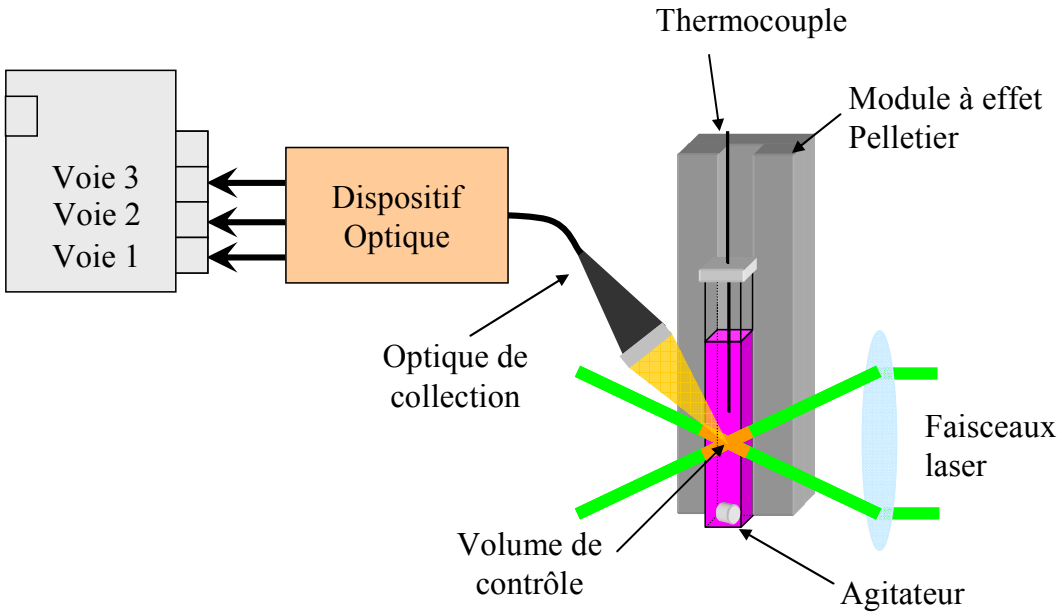


Figure 3.7 : Dispositif de calibration

La fluorescence est recueillie sur les trois bandes spectrales. Le signal est acquis à une fréquence de 500kHz sur une durée d'une seconde. Une mesure du bruit ambiant est faite

initialement lorsque le laser est éteint. Ce bruit est systématiquement soustrait à chaque mesure. La température est mesurée simultanément et enregistrée par la même carte d'acquisition. La figure 3.8 présente l'évolution du logarithme des rapports $R_{12}(T, Z_e)$ et $R_{23}(T, Z_e)$ pour deux compositions en fonction de l'inverse de la température. Les courbes sont ramenées à l'origine en prenant une référence ce qui permet de supprimer mes constantes optique et spectroscopique.

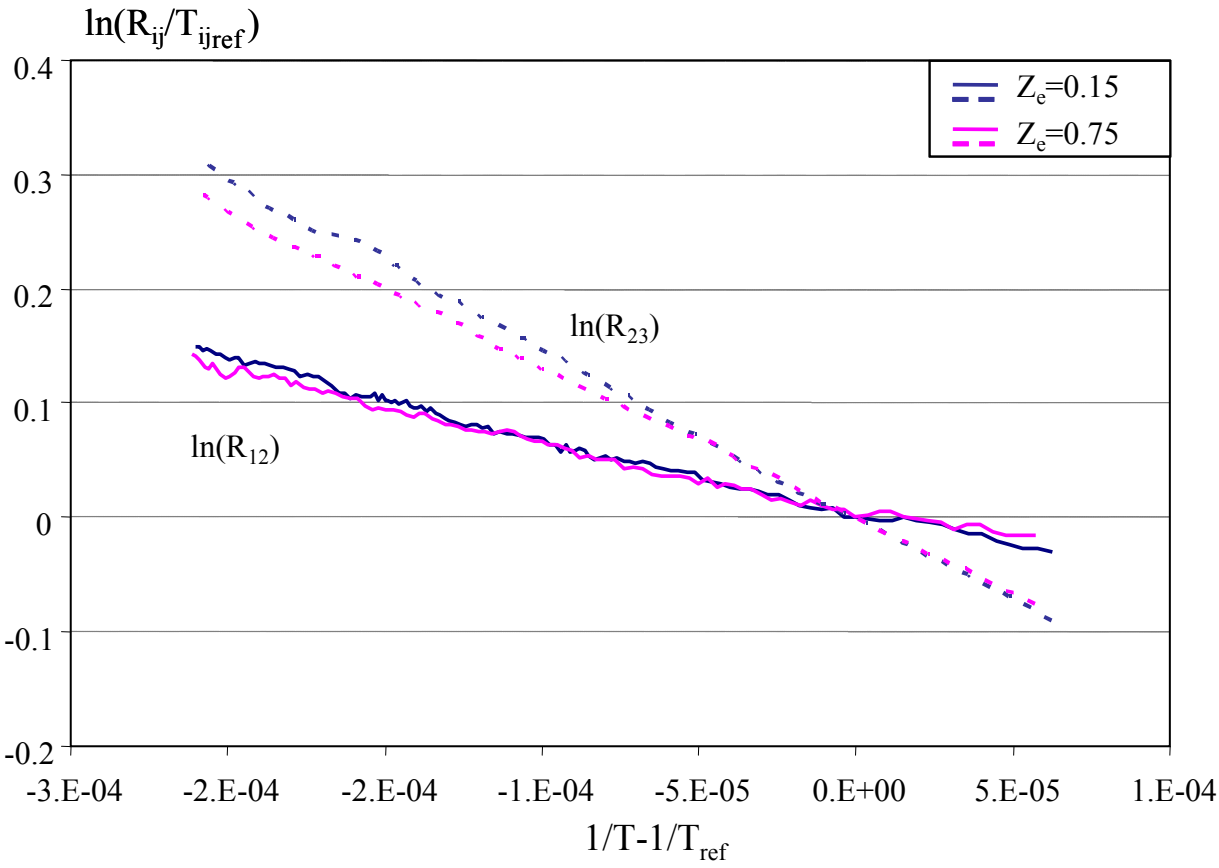


Figure 3.8 : Courbes de calibration pour deux concentrations d'éthanol

Ces courbes confortent les remarques faites en première partie : le rapport $R_{2.3}(T, Z_e)$ est plus sensible à la température que le rapport $R_{12}(T, Z_e)$. Dans tout les cas, plus la concentration en éthanol est importante, plus la sensibilité en température est faible.

Comme l'ont montrés les travaux de Lavieille et al. (2001) et Castanet et al. (2003), le pH de la solution a une influence importante sur le spectre de fluorescence de la rhodamine B. Lavieille et al. (2001) ont montré qu'un pH basique permettait de stabiliser le signal de fluorescence dans le cas de l'éthanol. Pour de la rhodamine en solution dans de l'acétone, Castanet et al.(2003) montrent qu'un ajout d'acide permet de stabiliser la solution.

Dans le cas du mélange d'éthanol et d'acétone, nous nous sommes orientés vers une stabilisation en milieux acide. Afin de tester cette stabilité, différents étalonnages (figure 3.9) ont été réalisés à différentes concentrations en acide chlorhydrique (HCl). Ces étalonnages n'évoluent plus à partir d'une concentration d'acide de $10^{-4}\, mol/l$. Pour assurer une marge de

sécurité, nous avons fixé une concentration opératoire de $2\times10^{-4}\,mol/l$ d'HCl. Pour l'acétone et l'éthanol purs les concentrations préconisées par Lavieille et Castanet sont utilisées, soit :

- pour de l'acétone pure, $C_{HCl}=2\times10^{-4}\,mol/l$
- pour de l'éthanol pur, $C_{NaOH}=12\times10^{-5}\,mol/l$

A titre d'exemple pour fabriquer 1 litre de solution à une concentration en rhodamine de $2.5\times10^{-6}\,mol/l$, 20 ml d'eau avec une concentration en acide de 10^{-2} mol/l sont rajoutés.

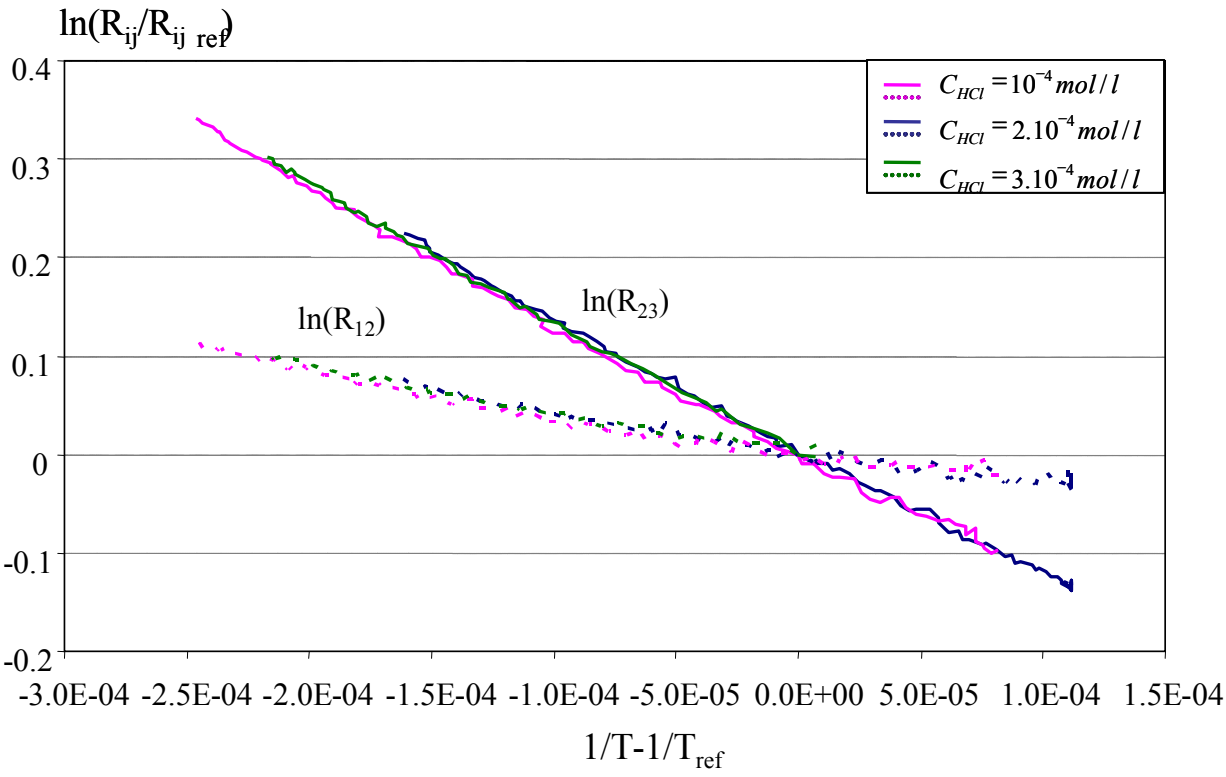


Figure 3.9 : Courbes de calibration pour différentes concentrations d'acide pour Z_e=50%

Un étalonnage complet (figure 3.10) donne l'évolution des fonctions β_{12} et β_{23} en fonction de la fraction volumique d'éthanol. Sur ce même graphe, sont représentées, les fonctions f_1 et f_2 relatives à la dépendance du signal de fluorescence à la composition, définies par :

$$f_i(Z_e)=\frac{\gamma_i(Z_e)}{\gamma_i(Z_{eref})}\frac{\gamma_j(Z_{eref})}{\gamma_j(Z_e)}=\frac{R_{ij}(T,Z_e)}{R_{ij}(T,Z_{eref})}e^{-\frac{\beta_{ij}(Z_e)-\beta_{ij}(Z_{eref})}{T}}\quad(i,j)=\{(1,2),(2,3)\}\qquad(3.13)$$

Ces fonctions sont directement liées à l'amplitude du signal de fluorescence et en particulier au rendement quantique. Plus la concentration en acétone est élevée, plus ces fonctions prennent une valeur élevée. Une interprétation serait de supposer que le quenching de la Rhodamine B par l'éthanol est plus efficace que le quenching par l'acétone.

Toutes ces fonctions sont approchées par des polynômes, ce qui facilite la résolution du système d'équations 3.10.

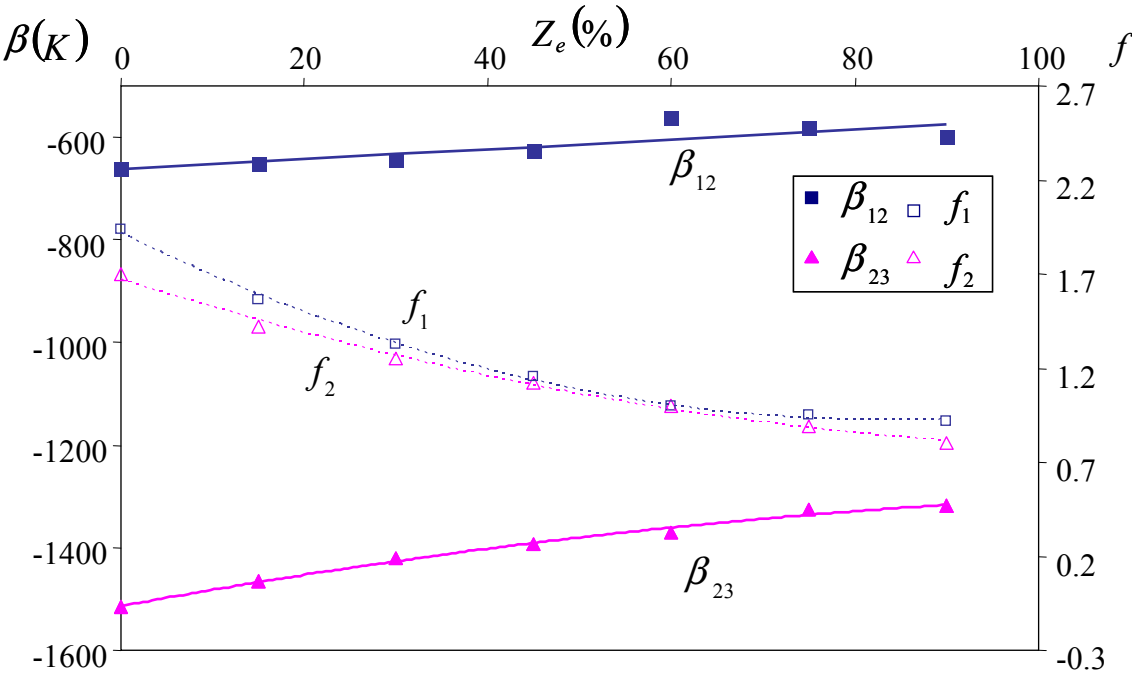


Figure 3.10 : Etalonnage des fonctions $\beta_{12}(Z_e)$, $\beta_{23}(Z_e)$, $f_1(Z_e)$ *et* $f_2(Z_e)$.

3.3.4 Résolution du système et justification du choix des rapports

♦ Stratégie d'inversion du système :

Le système 3.10 comprend deux équations à deux inconnues et n'est pas solvable analytiquement. Une résolution numérique a donc été effectuée. La solution est déterminée en minimisant le résidu issu des fonctions (3.14) et (3.15). Cette solution peut alors être considérée comme un zéro si les fonctions H_1 et H_2 changent de signe en ce point.

$$H_1(Z_e,T)=\left|\ln\left(\frac{R_{12}}{R_{12ref}}\right)-\left[\ln\left(\frac{\gamma_1(Z_e)}{\gamma_2(Z_e)}\frac{\gamma_2(Z_{eref})}{\gamma_1(Z_{eref})}\right)+\frac{\beta_{12}(Z_e)}{T}-\frac{\beta_{12}(Z_{eref})}{T_{ref}}\right]\right| \qquad (3.14)$$

$$H_2(Z_e,T)=\left|\ln\left(\frac{R_{23}}{R_{23ref}}\right)-\left[\ln\left(\frac{\gamma_2(Z_e)}{\gamma_3(Z_e)}\frac{\gamma_3(Z_{eref})}{\gamma_2(Z_{eref})}\right)+\frac{\beta_{23}(Z_e)}{T}-\frac{\beta_{23}(Z_{eref})}{T_{ref}}\right]\right| \qquad (3.15)$$

où T_{ref} et Z_{eref} sont des grandeurs de références choisies de manière arbitraire. En se donnant un point de mesure comme référence, il est possible de déterminer la fraction volumique

d'éthanol et la température d'un deuxième point en minimisant le système formé par les équations (3.14) et (3.15).
A titre d'exemple, deux points de mesure sont résumés dans le tableau 3.1. Le premier point sera considéré comme étant la référence et les intensités mesurées pour le deuxième point seront utilisées afin de déterminer la température et la composition par inversion du système.

	$Z_e(\%)$	$T(°C)$	$I_1(U.A.)$	$I_2(U.A.)$	$I_3(U.A.)$
Référence	45	20.1	1363	3201	2803
Mesure	75	39.9	1216	2863	1904

Tableau 3.1 : Données expérimentales

Afin de déterminer la solution, tous les couples (T,Z) physiquement acceptables sont examinés avec un pas de 0.1 °C pour la température et de 1 % pour la fraction d'éthanol. La figure 3.11 présente l'ensemble des valeurs prisent par les fonctions H_1 et H_2. Dans les deux cas, les fonctions H_1 et H_2 admettent une courbe de zéros dont l'intersection donne la solution.

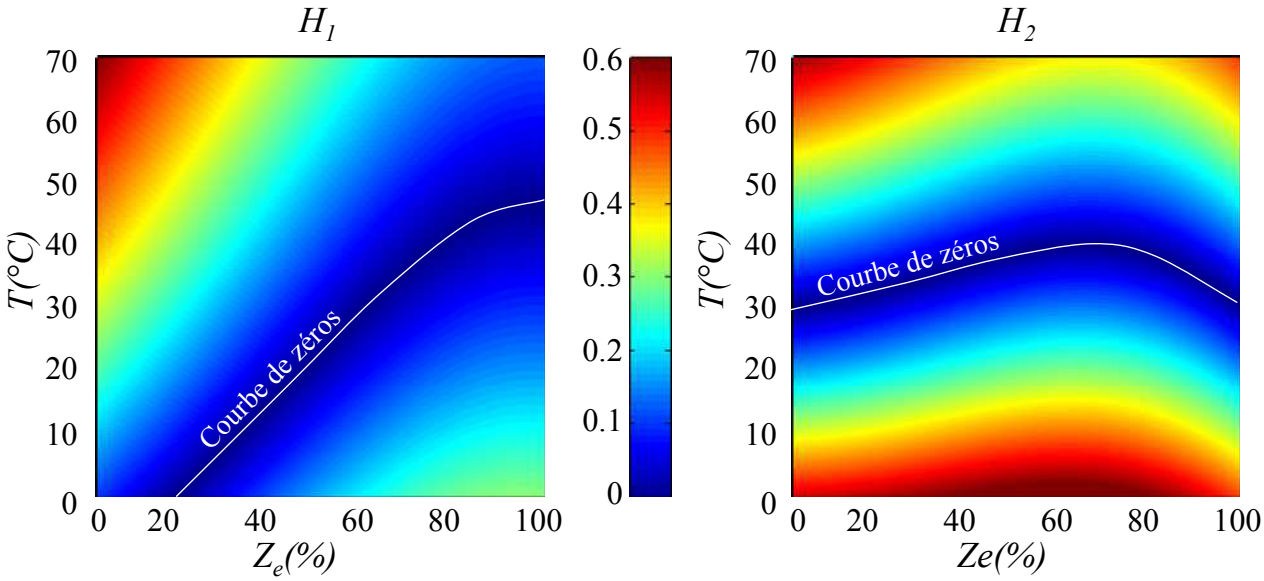


Figure 3.11 : Espace des solutions des fonctions H_1 et H_2.

Dans le cas particulier traité, le couple déterminé par l'inversion du système est donc $(T = 39.6°C, Z_e = 75\%)$. Le résultat obtenu est très proche des données d'entrées soit $T = 39.9°C$ et $Z_e = 75\%$ qui correspondent à une mesure par thermocouple et à la composition de la solution préparée.

♦ Choix optimal des rapports :

Il est possible de résoudre le système soit en utilisant le premier couple de rapport R_{12} et R_{23} préconisé, soit en utilisant d'autres combinaisons, tels que les couples R_{13} et R_{23}, R_{12} et R_{13}, ou encore en utilisant l'information des trois rapports R_{13}, R_{23} et R_{12} simultanément.
Une étude de convergence statistique est réalisée sur des couples (T, Z_e) choisis parmi l'ensemble des points expérimentaux issus de la calibration préliminaire. Ainsi, pour 7 compositions, 7 températures sont choisies et permettent de construire plus de 2041 couples.
La figure 3.12 présente la convergence de l'erreur commise sur la température en inversant le système avec les différents couples sélectionnés aléatoirement en fonction du nombre de couple (T, Z_e) utilisés. Quelque soit la combinaison utilisée la convergence est obtenue pour 500 couples. L'utilisation du couple R_{12} et R_{13} conduit a une erreur maximum, ce qui peut s'expliquer par le faible niveau de signal de la bande 1 qui est utilisé deux fois. Il apparaît donc que le choix optimal des rapports entre bandes spectrales corresponds au couple R_{12} et R_{23}.

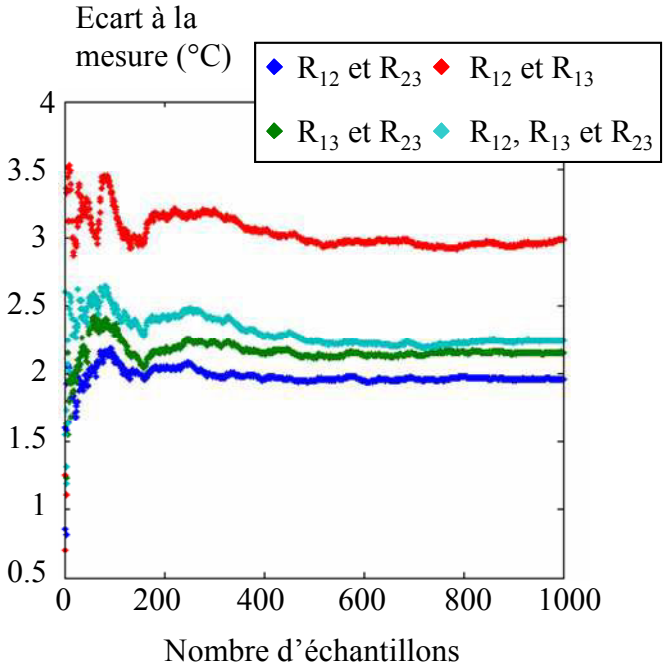


Figure 3.12 : Convergence statistique de l'erreur en fonction du choix des rapports

♦ Incertitude sur la mesure :

L'évaluation de l'erreur commise est difficile, le système 3.10 étant implicite. Cependant une étude de sensibilité aux différents paramètres peut être réalisée afin d'obtenir des informations sur l'incertitude.
Il est alors nécessaire d'identifier les différentes sources d'incertitude inhérentes à la mesure :

- l'incertitude sur les mesure des intensités de fluorescence, issue des photomultiplicateur est estimée à $\frac{\Delta I}{I} = \pm 1\%$.
- l'incertitude sur la mesure de la température de référence dans la cellule, réalisée avec un thermocouple de type K est évaluée à $\Delta T = \pm 0.5°C$.
- l'incertitude sur la concentration de référence, liée à la préparation de la solution, est estimée à $\Delta\chi = \pm 0.5\%$

Cette étude de sensibilité est faite en utilisant l'ensemble des points expérimentaux issus des calibrations initiales.

Les figures 3.13 et 3.14 présentent les histogramme de l'erreur sur la température et sur la composition, en utilisant les rapports R_{12} et R_{23}. Les valeurs RMS calculées pour ces histogrammes sont respectivement de 1.5 °C et de 4% pour l'inversion en ajoutant une perturbation issue des incertitudes précédemment citées, les écarts entre la température mesurée et la température calculée pouvant atteindre 6°C dans les cas les plus défavorables. Ces erreurs extrêmes sont liées à l'intégration dans le calcul de cas où les écarts entre la référence et la mesure sont importants.
En réalité, le point de mesure ne s'écartera pas de plus d'une trentaine de degrés Celsius et d'une quinzaine de % en fraction volumique d'éthanol par rapport à la fraction de référence. En tenant compte de ces remarques, le même calcul d'incertitude conduit à une erreur RMS sur la température de l'ordre de $\pm 1°C$ et $\pm 3\%$ pour la fraction volumique d'éthanol.

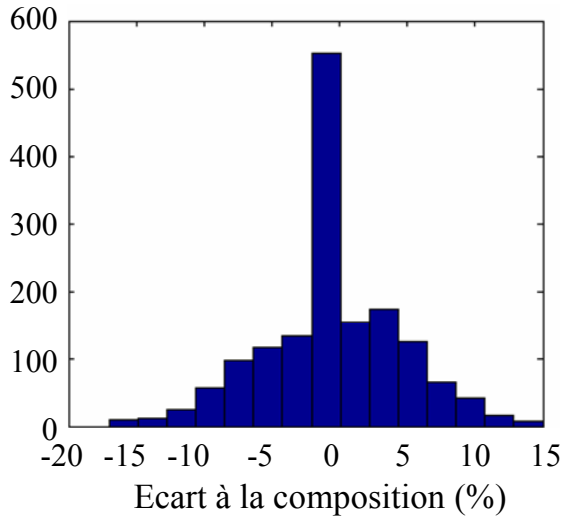


Figure 3.13 : Histogramme sur l'erreur concernant les rapports R_{12} et R_{23}

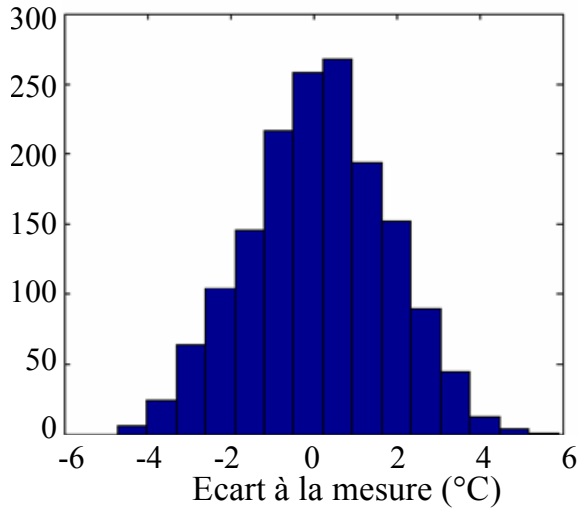


Figure 3.14 : Histogramme sur l'erreur concernant les rapports R_{12} et R_{23},

3.4 Mesure sur des gouttes

♦ Stratégie d'acquisition :

Le dispositif optique ainsi que celui d'acquisition est le même que pour les calibrations initiales (figure 3.15). La principale différence réside dans l'acquisition et le traitement du signal mis en œuvre. En effet, les mesures sur un train de gouttes peuvent devenir délicates lorsqu'elles sont réalisées loin de l'injecteur. Sur des distances relativement élevées par rapport au point d'injection, les gouttes s'écartent de leur trajectoire rectiligne, ce qui engendre une intersection avec le volume de mesure plus ou moins partielle.

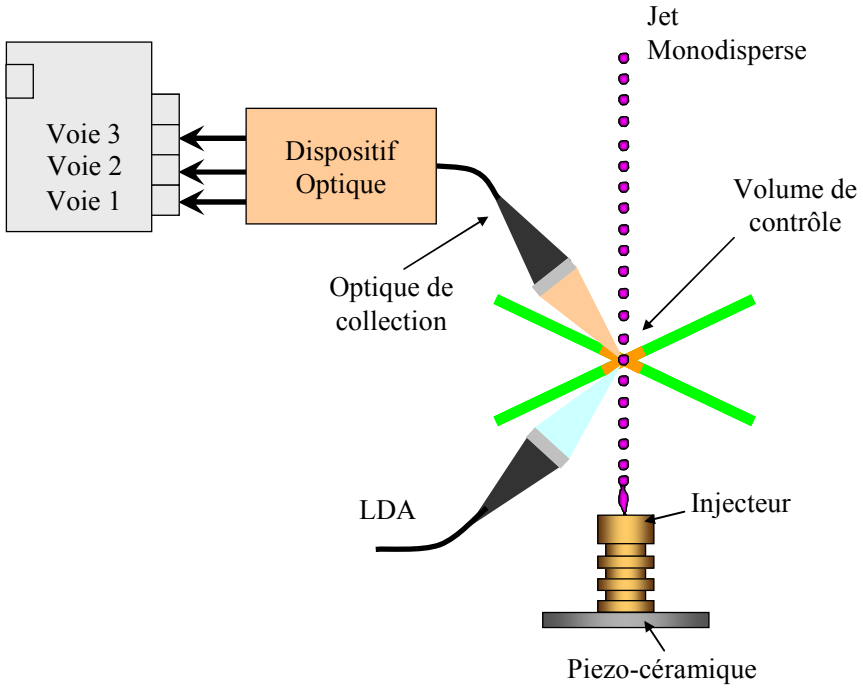


Figure 3.15 : Dispositif pour la mesure de température sur les gouttes

Dans cette configuration, le signal de fluorescence est acquis sur une durée de 500 ms, simultanément sur les trois voies avec une fréquence d'échantillonnage de 1 MHz. Ces signaux sont traités de façon à calculer une valeur moyenne de l'intensité de fluorescence des gouttes sur chacune des trois bandes spectrales, en privilégiant par seuillage celles présentant un signal de fluorescence suffisant. Ce protocole favorise les gouttes dont l'intersection avec le volume d'excitation et de collection est importante et permet de s'affranchir des problèmes de non-linéarité de la chaîne de détection évoqués au paragraphe 3.3.3.
La figure 3.16 présente un schéma de la stratégie d'acquisition des signaux de fluorescence acquis sur les 3 voies de mesure. Un seuil de détection est réglé sur les deux premières voies d'acquisition par l'utilisateur. En dessous de ce seuil, le signal n'est pas pris en compte. Les deux premières voies ([525 nm ; 535 nm] et [535 nm ; 545 nm]) sont celles pour lesquelles le signal est le plus faible. Lorsque le signal émit par une goutte dépasse le seuil fixé sur les

deux voies, son intégrale est calculée simultanément sur les trois voies. Les valeurs des intensités sur chacune des voies ainsi obtenues sont incrémentées pour chaque goutte détectée. Dans le cas présenté sur la figure 3.16, les deux première gouttes émettent un signal de fluorescence suffisant et sont détectées. En revanche, le signal de fluorescence émis par la troisième goutte ne franchit pas le seuil fixé par la première voie. Elle est donc considérée comme trop excentrée par rapport au volume de mesure et ne sera donc pas prise en compte. Le bruit moyen mesuré lorsque le laser est éteint est ensuite retranché des intensités sur chacune des voies. Le calcul des rapports est ensuite effectué.

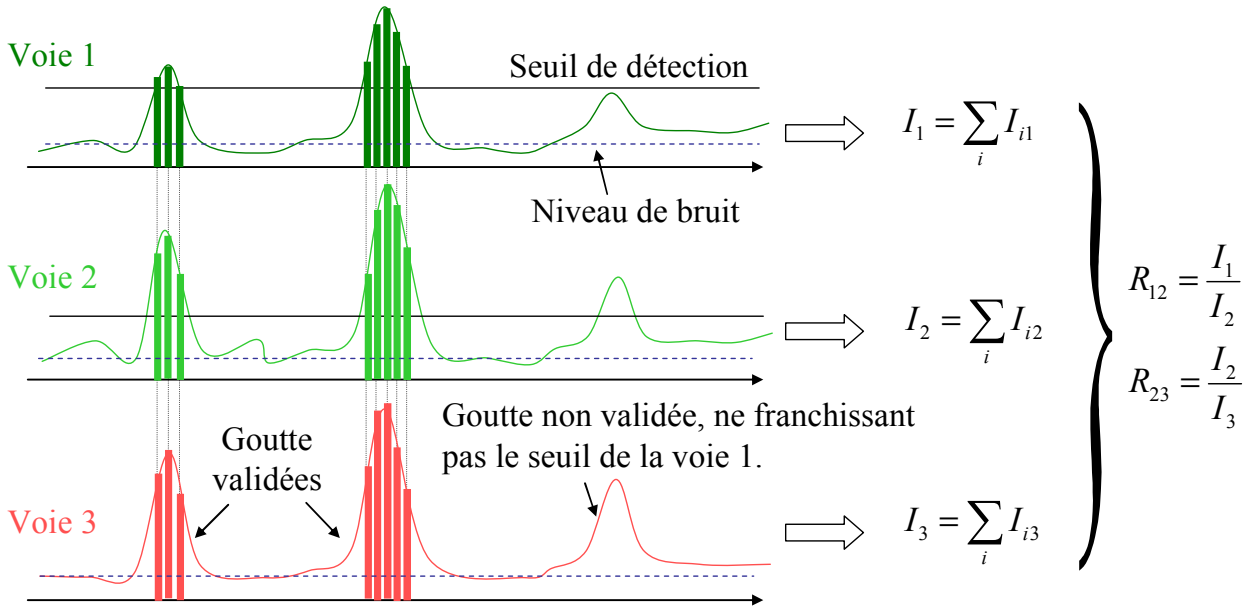


Figure 3.16 : Stratégie d'acquisition du signal de fluorescence sur les gouttes

La possibilité de traiter plusieurs échantillons de 500 ms les uns à la suite des autres combinés au caractère monodisperse et permanent du jet, permettent de faire des acquisitions sur plusieurs milliers de gouttes. Travaillant avec des trains de goutte dont la fréquence est supérieure à 10 kHz, l'évaluation des rapports peut être effectuée en moins de dix secondes tout en assurant une bonne convergence statistique avec plus de 100 000 gouttes.

♦ Protocole expérimental et test de la technique :

Une mesure de référence est effectuée sur le jet cylindrique en sortie de l'injecteur, le plus prés possible de la sortie afin de maintenir la température et la composition du liquide injecté constantes (la température est donnée par un thermocouple placé prés de la sortie et la fraction volumique d'éthanol est connue). Ensuite, les différents paramètres caractérisant le jet comme le débit injecté et la fréquence de la piézo-céramique d'injection sont réglés de manière à obtenir un jet monodisperse stable. Les conditions d'injection en température, en composition,

en débit Q_v et en fréquence f sont connues. Le diamètre initial s'exprime en fonction de ces différents paramètres :

$$D = \left(\frac{6}{\pi f} Q_v \right)^{\frac{1}{3}} \tag{3.16}$$

En se déplaçant à l'aide d'un banc micrométrique et en utilisant la stratégie d'acquisition décrite précédemment l'intensité de fluorescence est recueillie à différentes positions du jet. Les données sont ensuite inversées afin de déterminer la température T et la fraction volumique Z_e des gouttes en fonction de la position. La mesure de la vitesse par PDA en chaque point permet de convertir l'échelle de distance en temps. L'inverse de la vitesse est approximé par un polynôme d'ordre 2 dont l'intégration en fonction de la distance permet de convertir l'espace en temps :

$$t(h) = t_0 + \int_{x=0}^{h} \frac{dx}{V(x)} \tag{3.17}$$

Un test de la méthode a été effectué sur une situation où un combustible surchauffé ($T_{inj} = 45°C$) est injecté dans l'air à la température ambiante ($20°C$) et à la pression atmosphérique. Le diamètre initial des gouttes est de $130\ \mu m$ et l'évolution temporelle de la vitesse est présentée figure 3.19. Trois compositions initiales ont été testées l'éthanol pur, un mélange comportant 25% d'éthanol $Z_e = 0.25$ et de l'acétone pure figure 3.17.

Comme attendu, la composition a une influence importante sur l'évolution temporelle de la température des gouttes (figure 3.17). Plus la fraction du composant le plus volatil est élevée, plus le refroidissement dû à l'évaporation est élevée. Notons que la pression de vapeur saturante de l'acétone est trois fois plus élevée que celle de l'éthanol à 45°C pour une chaleur latente deux fois moindre. On peut noter une pente de refroidissement plus importante dans la phase initiale, en particulier lors de la fragmentation du jet en gouttelettes. Cette observation est assez générale et peut être attribué à des transferts thermiques accentués du fait d'un rapport surface sur volume plus important (Doué, 2005).

La fraction volumique d'éthanol Z_e déduite de l'inversion du système d'équations (3.10) est représentée figure 3.18. Elle ne présente pas de variation significative et demeure conforme à la composition d'injection, ce qui peut être aisément attribué aux très faibles conditions d'évaporation.

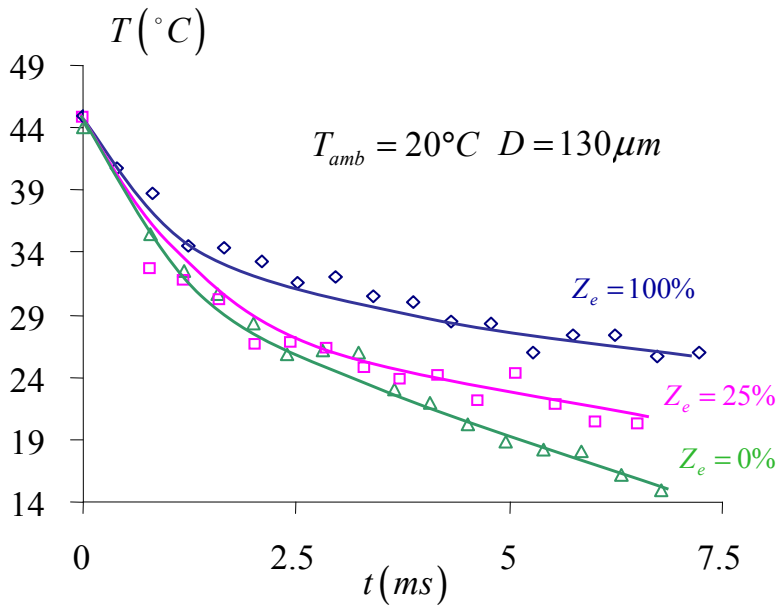


Figure 3.17 : Mesure de température pour des gouttes en évaporation à l'air ambiant

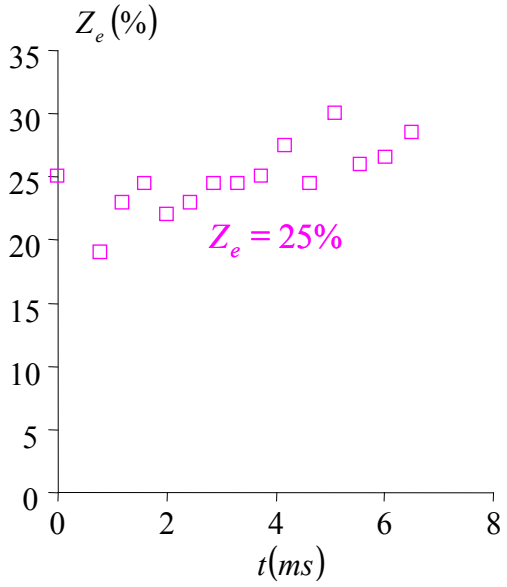


Figure 3.18 : Mesure de concentration pour des gouttes en évaporation à l'air ambiant

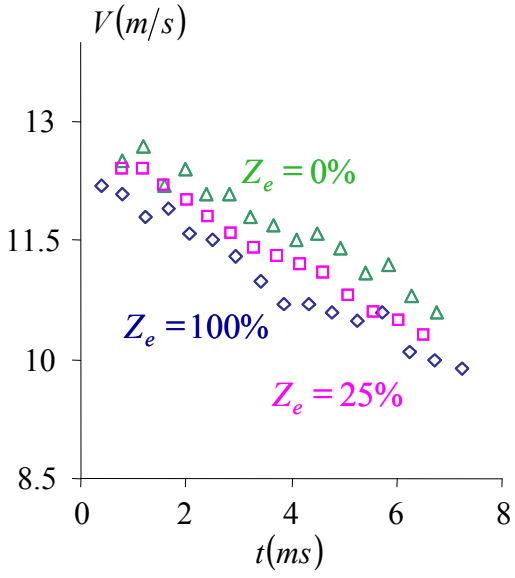


Figure 3.19 : Mesure de vitesse pour des gouttes en évaporation à l'air ambiant

3.5 Conclusion

Une nouvelle technique de fluorescence induite par laser à trois couleurs a permis de déterminer l'évolution de la température de gouttes bicomposant. Cette technique permet une séparation des effets de la composition du mélange et de la température sur le signal de fluorescence. La température des gouttes est déterminée avec une précision de l'ordre de $\pm 1°C$. L'inversion des données donne également accès à une estimation de la composition, qu'il ne faut considérer que comme indicative. La température et la composition ainsi déterminées sont supposées uniformes, sans tenir compte des gradients de température, de composition et d'intensité excitatrice. L'influence de ces gradients sera étudiée numériquement au chapitre 5.

Les premiers tests de la technique sur des gouttes composées d'un mélange d'acétone et d'éthanol sont conformes aux attentes : plus la fraction du composé le plus volatil est important, plus le refroidissement dû à l'évaporation sera important.

Cette technique sera mise en œuvre dans la suite de ce mémoire sur des gouttes bicomposant en configuration de type jet monodisperse en évaporation simple dans l'atmosphère puis en évaporation forte dans un panache d'aire chaud.

Chapitre 4 : Mesure de la composition de gouttes bicomposant par fluorescence induite par laser

Nomenclature

Symboles latins

A_{12}	coefficient d'Einstein	s^{-1}
C	concentration volumique	*mol/l*
D	diamètre de la goutte	μm
I	intensité lumineuse	W/m^2
K_{opt}	constante optique	
K_q	constante de quenching	
K_{spec}	constante spectroscopique	
l	chemin optique	*m*
n	indice de réfraction	
Q_1	taux de désactivations collisionnelles	
Q_2	taux de désactivations non radiatives, non collisionnelles	
t	temps	*ms*
Z	fraction volumique	

Symboles grecs

λ	longueur d'onde	*nm*
ε	Coefficient d'absorption molaire	*mol/l/m*
χ	fraction molaire	
η	rendement de fluorescence	
ξ	fonction d'éclairement	

Indices

a	relatif à l'acétone
e	relatif à l'éthanol
fluo	fluorescence

Chapitre 4

4.1 Introduction et bibliographie

Comme pour la température, la mesure de la compostion de gouttes multicomposant en évaporation ou en combustion est nécessaire afin d'améliorer la compréhension des principes régissant l'évaporation des gouttes multicomposant. Nous nous intéresserons essentiellement aux diagnostics optiques, qui par leur caractère non intrusif répondent à cette problématique. Les principales techniques utilisées sont basées sur la diffusion de la lumière. La réfractométrie arc en ciel, par exemple, permet d'obtenir des informations quantitatives sur la composition en phase liquide. Wilms et al. (2004) ont travaillé sur la réfractométrie arc en ciel appliquée à des mélanges binaires composés de n-hexadécane et de n-dodécane. Afin de s'affranchir de la double dépendance de l'indice à la température et à la composition, la température de chaque mélange est assimilée à celle du n-hexadécane pur mesurée au préalable par réfractométrie arc-en-ciel ; la composition du mélange peut alors être caractérisée. Les principales limitations de la réfractométrie arc-en-ciel, pouvant entraîner un biais sur la mesure, sont liées à la non-sphéricité des gouttes et aux gradients d'indice dans la goutte, associées soit à des gradients thermiques, soit à des gradients de composition. Hopkins et al. (2003) proposent une technique basée sur la diffusion Raman afin de déterminer la composition et le diamètre de gouttes composées d'éthanol et d'eau, d'un diamètre d'une trentaine de micromètres, dans une configuration de type jet monodispersé.

L'étude présentée dans ce chapitre, s'intéresse à la détermination de la composition de gouttes composées d'un mélange d'éthanol et d'acétone en évaporation, par utilisation de la fluorescence induite par laser de l'acétone. Les cétones, de par leurs propriétés spectroscopiques, sont utilisées dans diverses configurations comme traceurs fluorescents. En phase gazeuse, Lozano et al. (1992) et Thurber et al. (1998) utilisent le signal de fluorescence induite par laser de l'acétone pour déterminer la température et la fraction de mélange de combustible. Han et Steeper (2002) déterminent, par fluorescence induite par laser, le débit d'évaporation de deux mélanges composés de cétones de volatilités différentes dans une configuration de spray diesel. Han et Steeper (2002) montrent ainsi que les composés les moins volatils retardent le processus d'évaporation. Orain et al (2005) proposent une technique permettant de caractériser la fraction molaire d'acétone en phase vapeur issue de l'évaporation d'un jet de gouttes d'acétone monodispersé.

La fluorescence induite par laser des cétones en phase liquide est moins utilisée dans la littérature. Bazile et Stepowski (1995) étudient un spray d'acétone en combustion et caractérisent la distribution spatiale de l'acétone liquide et gazeuse. Ils modélisent le signal de fluorescence induite par laser de l'acétone en phase gazeuse et en phase liquide. En phase gazeuse, le signal de fluorescence est proportionnel à l'intensité excitatrice locale et à la concentration en acétone. En phase condensée, le signal de fluorescence induite par laser dépend du diamètre de la goutte. Pour des diamètres de gouttes de l'ordre de 10 μm, l'absorption du faisceau laser reste négligeable et l'intensité de fluorescence est proportionnelle au volume de la goutte. En revanche, pour des gouttes de tailles plus

importantes, les phénomènes d'absorption sont tels que la fluorescence tend à devenir plutôt proportionnelle à la surface. Ritchie et Seitzman (2001) proposent une modélisation du signal de fluorescence induite par un plan laser, émis par des gouttes d'acétone dans un spray. Ce modèle est utilisé afin d'obtenir des informations sur le diamètre des gouttes, leurs positions et la concentration locale en vapeur. Tran (2005) s'intéresse à la fluorescence et la phosphorescence induites par laser sur un jet d'acétone liquide. Plus particulièrement les auteurs s'intéressent à l'influence de la longueur d'onde excitatrice (266 nm ou 285 nm) sur les signaux de fluorescence et de phosphorescence. De plus ils mettent en évidence l'effet de l'oxygène dissout dans le produit sur le signal de phosphorescence en réalisant des purges de durée plus ou moins longue du liquide avec du di-azote.
Les travaux développés dans ce chapitre sont consacrés à l'utilisation de la fluorescence induite par laser de l'acétone afin de mesurer la composition de gouttes binaires composées d'éthanol et d'acétone. Dans ce mélange, l'acétone joue d'une part le rôle de composant le plus volatil du mélange, puisqu'à la température ambiante, la pression de vapeur saturante de l'acétone est trois fois plus élevée que celle de l'éthanol. D'autre part l'acétone joue également le rôle de traceur fluorescent. Lorsque l'acétone (liquide ici) est excitée par un rayonnement UV, une fluorescence est émise, alors que l'autre composant du mélange, l'éthanol, est transparent à ce type de rayonnement et n'émet donc aucune fluorescence. Ces propriétés seront exploitées afin de déterminer la composition du mélange.

4.2 Modélisation de la fluorescence de l'acétone

Afin de mesurer la composition de gouttes bicomposant par FIL, les propriétés de fluorescence de l'acétone seront exploitées. Le signal de fluorescence émis par des molécules d'acétone en phase liquide, excitées par un rayonnement dont la longueur d'onde appartient au spectre d'absorption de la molécule, peut être décrit par l'équation (3.1).

$$I_{fluo}(\lambda) = K_{spec} K_{opt}(\lambda) \varepsilon(\lambda) \eta C_0 e^{-\varepsilon(\lambda) C_0 e} \int_V I(\vec{x}, \chi_a) dV \tag{4.1}$$

Les hypothèses faites dans le cadre de la FIL à trois couleurs ne sont plus valables. La concentration d'acétone est telle que l'absorption du faisceau laser par la phase liquide ne peut plus être négligée. En effet, l'épaisseur optique conduisant à l'extinction complète d'un rayonnement laser à 266 nm, traversant de l'acétone liquide, est de l'ordre de la dizaine de micromètres. En revanche les spectres d'émission et d'absorption de l'acétone sont suffisamment décalés l'un par rapport à l'autre pour négliger le phénomène de réabsorption de la fluorescence traduit par le terme $e^{-\varepsilon(\lambda) C_0 e}$ (figure 4.5).

L'expression générale du signal de fluorescence, intégrée sur une bande spectrale, sous ces hypothèses, est donnée par :

$$I_{fluo} = K' C_a \eta \varepsilon_a \int_V I_l(\vec{x}, \chi_a) dV \tag{4.2}$$

où K' représente une constante liée à la chaîne optique et aux propriétés spectroscopiques de la molécule d'acétone. C_a et χ_a représentent respectivement la concentration volumique molaire et la fraction molaire d'acétone. η est le rendement quantique de fluorescence, ε_a le coefficient d'absorption molaire relatif à la longueur d'onde excitatrice et $\int_V I_l(\vec{x}, \chi_a) dV$ représente l'intensité lumineuse vue par la goutte. Cette dernière dépend de la fraction molaire d'acétone χ_a du fait de la forte absorption de l'acétone. Notons que pour des raisons pratiques le modèle sera écrit pour en utilisant des fractions molaires (notées χ_a) et les données expérimentales seront exprimées en fonction de la fraction volumique (notée Z_a). D'une manière générale, le rendement quantique de fluorescence peut s'écrire comme le rapport entre le taux d'émission spontanée de la fluorescence A_{21} et l'ensemble des phénomènes physiques permettant le retour à l'état fondamental. Ces phénomènes incluent les transitions radiatives comme la fluorescence, mais aussi des transitions non radiatives comme le taux de désactivation collisionnelle Q_1, ou non collisionnelle Q_2 liées essentiellement à des conversions inter-système extrêmement rapide.

$$\eta = \frac{A_{21}}{A_{21} + Q_1 + Q_2} \tag{4.3}$$

Dans l'hypothèse des milieux condensés, le taux d'émission de la fluorescence A_{21} est négligeable devant les phénomènes non radiatifs. Dans le cadre d'un mélange éthanol-acétone le taux de désactivation collisionnelle peut s'écrire sous la forme $Q_1 = K_{qa-a} C_a + K_{qe-a} C_e$ avec C_a et C_e représentant respectivement la concentration molaire en acétone et en éthanol. K_{qe-a} est relatif au taux de désactivation collisionnelle des molécules d'éthanol par les molécules d'acétone et K_{qa-a} est relatif aux taux de désactivation collisionnelle des molécules d'acétone par elles mêmes. De manière générale, ces coefficients dépendent de la température. Dans le cas de la fluorescence induite par laser de l'acétone, cette dépendance en température est relativement faible. Nous négligerons cette variation étant donné l'intervalle restreint dans lequel évolue la température de la phase liquide, limité par la température d'ébullition de l'acétone qui est de 56°C et celle de l'éthanol 75°C. Cette hypothèse fera l'objet d'une validation expérimentale ultérieure. Le rendement de fluorescence peut se mettre sous la forme :

$$\eta = \frac{A_{21}}{K_{qa-a} C_a + K_{qe-a} C_e + Q_2} \tag{4.4}$$

Dans un tel formalisme les constantes K_{qa-a} et K_{qe-a} sont inconnues. Pour cela, nous avons adopté une forme empirique simplifiée, en choisissant de modéliser le terme $C_a\eta$ intervenant dans l'expression (4.2) sous la forme :

$$C_a\eta \propto \frac{\chi_a}{1+\mu\chi_a} \tag{4.5}$$

où μ est une constante qui fera l'objet d'un étalonnage préalable.

En regroupant toutes les constantes ε_a, A_{21}, K' sous une seule constante K, l'expression du signal de fluorescence devient :

$$I_{fluo} = K\frac{\chi_a}{1+\mu\chi_a}\int_V I_l(\vec{x},\chi_a)dV \tag{4.6}$$

En l'absence d'absorption du faisceau laser, l'équation (4.6) se réduit sous la forme $I_{fluo} \approx K\frac{\chi_a}{1+\mu\chi_a} I_0 D^3$ dans la mesure où $\int_V I_l(\vec{x},\chi_a=0)dV \approx I_0 D^3$. Pour tenir compte de l'absorption, il convient d'introduire un facteur d'efficacité $\xi(\varepsilon_a, D)$ de l'éclairement de la goutte par le rayonnement incident :

$$I_{fluo} = K\frac{\chi_a}{1+\mu\chi_a} I_0 D^3 \xi(\chi_a, D) \tag{4.7}$$

Cette efficacité est définie par :

$$\xi(\varepsilon_a, D) = \frac{\int_V I_l(\vec{x},\chi_a)dV}{\int_V I_l(\vec{x},\chi_a=0)dV} \tag{4.8}$$

L'évaluation de cette efficacité sera faite à l'aide d'un code de lancé de rayons fondé sur l'optique géométrique, décrit par la suite. L'ensemble des calculs présentés sera effectué sous une hypothèse de gouttes isothermes et les erreurs générées pas cette hypothèse seront estimées. Le paramètre μ, propre au mélange étudié, sera déterminé par un étalonnage préalable et le coefficient ε_a relatif à l'acétone sera mesuré par spectrométrie d'absorption.

4.3 Calcul de l'efficacité d'éclairement par la méthode du lancé de rayons

En optique géométrique, un faisceau laser peut être considéré comme un ensemble de rayons transportant chacun une partie de l'énergie. Il est possible de rendre compte du caractère gaussien de l'énergie en pondérant chaque rayon par une fonction de distribution spatiale. Chaque rayon arrive sur la goutte avec une incidence $\vec{i}_1$ (figure 4.1). Pour chaque rayon interceptant la goutte, il convient de définir la normale à la surface de la goutte $\vec{n}_1$, définissant un angle θ_1 avec $\vec{i}_1$.

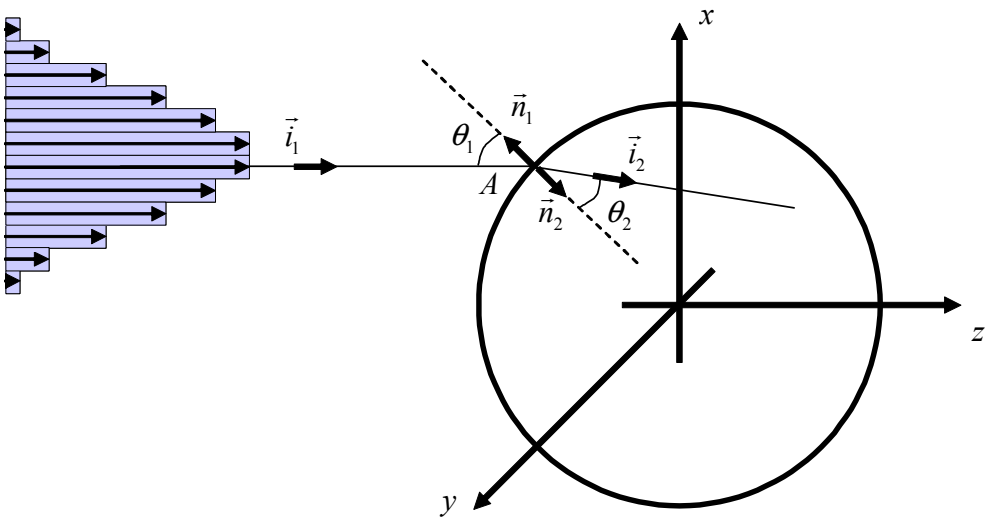


Figure 4.1 : Schéma de principe du lancé de rayon.

La différence d'indice entre le liquide et l'air induit une déviation du rayon, le vecteur directeur du rayon transmis $\vec{i}_2$ étant déterminé par des considérations d'optique géométrique. La fraction d'énergie transmise Tr est donnée par les lois de Fresnel pour une polarisation parallèle par :

$$Tr = 1 - \left(\frac{n\cos(\theta_1) - \cos(\theta_2)}{n\cos(\theta_1) + \cos(\theta_2)} \right)^2 \tag{4.9}$$

et pour une polarisation perpendiculaire par :

$$Tr = 1 - \left(\frac{n\cos(\theta_2) - \cos(\theta_1)}{n\cos(\theta_2) + \cos(\theta_1)} \right)^2 \tag{4.10}$$

où n est l'indice de réfraction du liquide qui sera pris égal à 1.36. En effet, pour l'éthanol et l'acétone les indices sont très proches et cette valeur donne une précision sur l'indice de

l'ordre du millième dans la plage de température étudiée. Par la suite, l'ensemble des réflexions internes seront négligées.

Tout d'abord le vecteur directeur du rayon réfléchi $\vec{i}_2$ appartient au plan formé par la normale $\vec{n}_2$ et le rayon incident $\vec{i}_1$:

$$\vec{i}_1 \wedge \vec{n}_1 \cdot \vec{i}_2 = 0 \tag{4.11}$$

La première loi de Descartes permet de déterminer l'angle θ_2 formé par les vecteurs $\vec{i}_2$ et le vecteur normal $\vec{n}_2$:

$$\sin(\theta_1) = n \sin(\theta_2) \tag{4.12}$$

Enfin la position du vecteur $\vec{i}_2$ par rapport à la normale est connue et satisfait à :

$$-\vec{n}_1 \cdot \vec{i}_2 = \cos(\theta_2) \tag{4.13}$$

La trajectoire de chacun des rayons peut donc être déterminée et les rayons traversant la goutte sont alors soumis à l'absorption de Beer-Lambert. Le suivi du rayon au cours de sa travérsée permet de collecter l'énergie qu'il transmet à la goutte en chaque cellule d'un maillage cartésien.

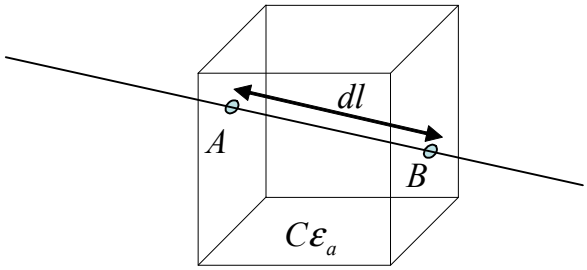


Figure 4.2 : Schéma d'une maille traversée par un rayon.

Plus précisement, chaque maille de la goutte traversée par un rayon permet de définir les points d'intersection A et B du rayon et de la maille (figure 4.2). En notant dl la distance entre les points A et B, il est possible de calculer l'intensité lumineuse I_B sortant de la maille en fonction de l'intensité lumineuse entrante I_A, grâce à la loi de Beer-Lambert :

$$I_B = I_A e^{-\varepsilon_a C_a dl} \tag{4.14}$$

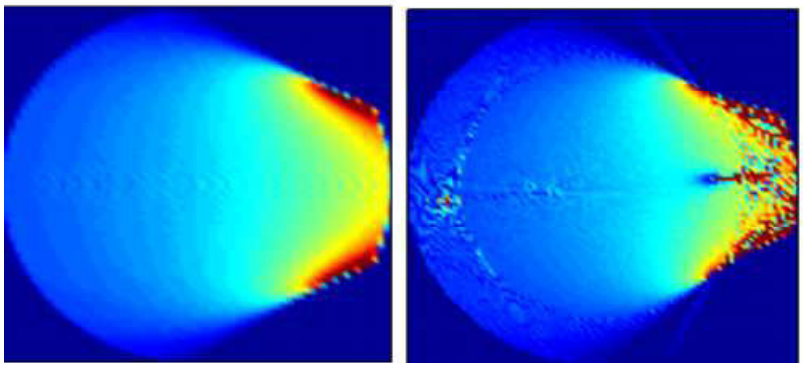
C_a et ε_a sont respectivement la concentration en traceur et le coefficient d'absorption molaire. Enfin la maille voit la valeur de son intensité lumineuse incrémentée par :

$$I = dlI_m = \int_0^{dl} I_A e^{-\varepsilon_a C_a x} dx = I_A \frac{1 - e^{\varepsilon_a C_a dl}}{\varepsilon_a} \tag{4.15}$$

En lançant un nombre suffisant de rayons, il est possible de construire des cartes d'intensité 3D et de quantifier la fonction $\xi(\chi_a, D)$. Le nombre de rayons nécessaire est déterminé par un test de convergence statistique.

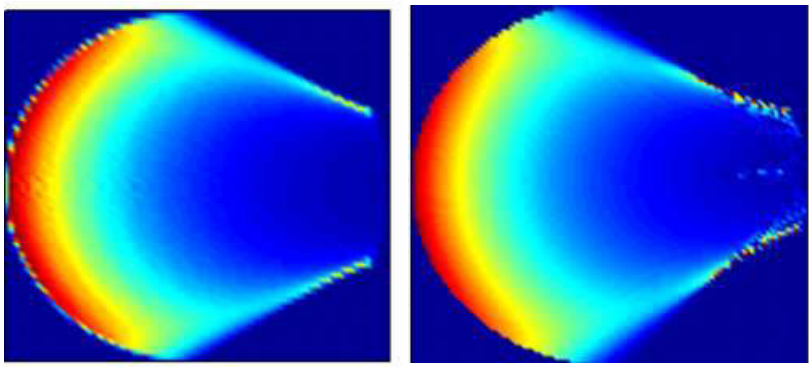
Un code de TLMG (Théorie de Lorentz Mie-Généralisée), développé au CORIA à Rouen a été utilisé afin de valider notre code. Ce code restitue la répartition de l'intensité lumineuse au sein d'une goutte traversée par un faisceau laser, en prenant en compte les phénomènes d'absorption et de réflexions internes. Les paramètres d'entrés de ce code sont le rayon du faisceau laser au col dont la répartition d'énergie est gaussienne, la longueur d'onde du rayonement incident, les parties réelles et imaginaire de l'indice de réfraction.

Une première validation qualitative est présentée figure 4.3. Une carte équatoriale du champ d'intensité d'une goutte de diamètre 130 µm a été calculée, pour deux fractions volumiques d'acétone $Z_a = 0$ et $Z_a = 1$. Les résultats donnés par les deux codes conduisent à des résultats comparables qualitativement. Cependant la TLMG laisse apparaître des points chauds liés aux réflexions internes négligées dans le code de lancé de rayons.



Lancé de rayons TLMG

$D = 130\mu m \quad Z_a = 0$



Lancé de rayons TLMG

$D = 130\mu m \quad Z_a = 1$

Figure 4.3 : Comparaison des codes TLMG et lancé de rayons

D'un point de vue quantitatif, le facteur d'efficacité $\xi(\chi_a, D)$ a été évalué à l'aide des deux méthodes, en fonction de la fraction volumique d'acétone. Les résultats obtenus (figure 4.4) sont en excellent accord, ce qui valide la méthodologie du lancé de rayon, beaucoup moins coûteuse que la TLMG en terme de temps de calcul.

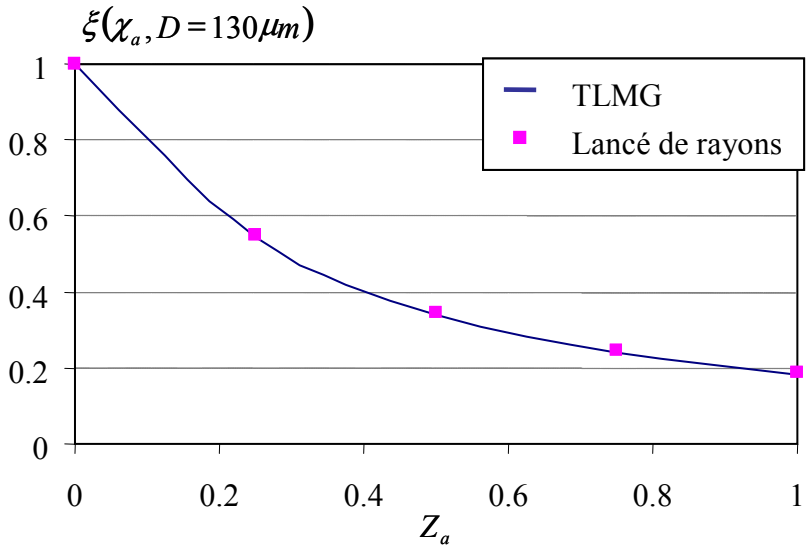


Figure 4.4 : Comparaison de la fonction $\xi(\chi_a, D)$ calculée par TLMG et lancé de rayons

4.4 Etalonnages préliminaires

4.4.1 Propriétés spectroscopiques de la molécule d'acétone et moyens expérimentaux

♦ Le laser

Le laser utilisé dans le cadre de ce travail est un laser à cristal de type Nd-Yag. Il s'agit d'un modèle Brillant-B développé par Quantel ; ce laser dont la longueur d'onde fondamentale est 1064 nm est quadruplé en fréquence. Ainsi un faisceau laser à 266 nm, contenant un faible résiduel de vert à 532 nm, est émis à une cadence de répétition de 10 Hz. L'énergie maximale délivrée par ce laser est de 90 mJ et est modulable en jouant sur le retard entre les flash de pompage et l'ouverture de la cellule de Pockels (délai de fluorescence) .

♦ Mesure de l'énergie laser

L'énergie laser fluctue naturellement avec une distribution tir à tir de 7 % RMS. La mesure de l'énergie laser incidente permet de pondérer le signal de fluorescence, proportionnelle à celle-ci. Un capteur pyroéléctrique a été choisi : il convertit l'énergie reçue en chaleur, puis en

courant. Ainsi une simple mesure de tension permet de restituer l'énergie laser de chaque impulsion laser.

♦ Spectroscopie de la molécule d'acétone

Un spectre d'absorption de la molécule d'acétone a été réalisé et montre qu'une excitation à 266 nm est tout à fait adéquat pour exciter la molécule d'acétone (figure 4.5). Le spectre d'émission de la fluorescence a été réalisé avec un spectromètre d'une résolution de l'ordre du nanomètre, en collectant le signal de fluorescence sur un jet liquide excité à 266 nm. Un filtre spectral de détection du signal de fluorescence doit être choisi et doit répondre aux caractéristiques suivantes :

- il doit permettre de détecter l'émission maximale de la fluorescence
- il doit isoler la fluorescence détectée du rayonnement résiduel du laser à 532 nm. En effet, ce résiduel est diffusé par les gouttes et risque d'interférer avec le signal de fluorescence.

Parmi les filtres disponibles dans le commerce, un filtre passe bande centré sur la longueur d'onde 450 nm avec une bande spectrale d'une largeur de 20 nm a été choisi. La transmittance de ce filtre est représentée sur la figure 4.5.

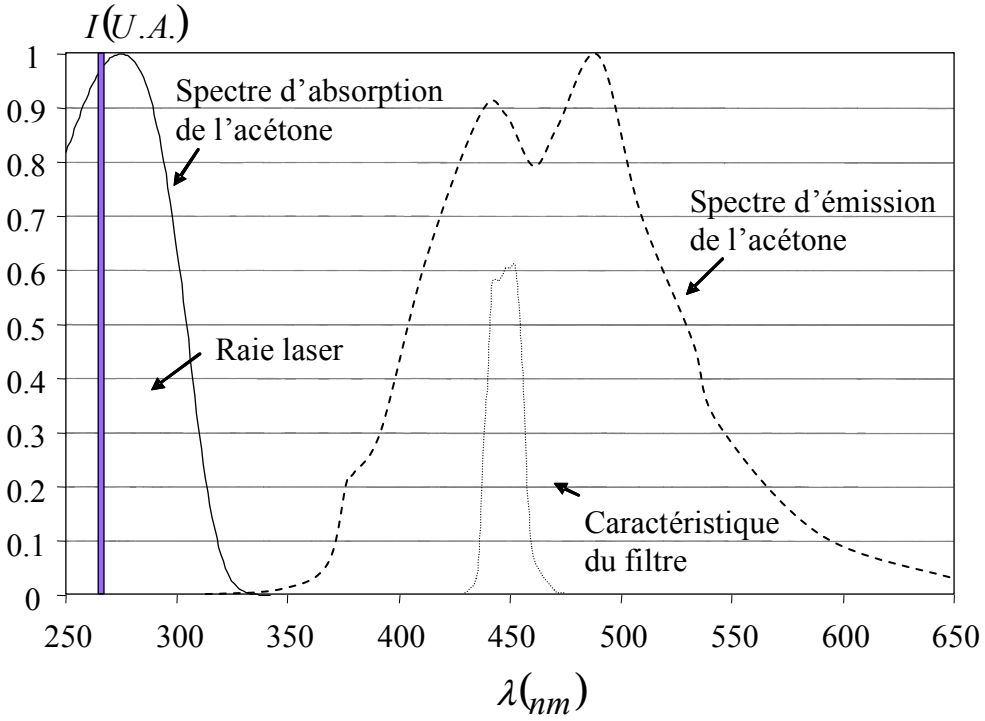


Figure 4.5 : Caractéristiques spectroscopiques de l'acétone et du filtre utilisé

♦ Détection de la fluorescence

Deux stratégies d'acquisition ont été retenues afin de mesurer le signal de fluorescence. Une première stratégie consiste à utiliser un photomultiplicateur Hamamatsu R1923 à très faible temps de réponse, avec une fréquence de coupure à 120 MHz. Afin d'améliorer la précision des mesures et la mise en œuvre, une deuxième stratégie d'acquisition a été développée, utilisant une caméra CCD à multiplication d'électrons. Le signal de fluorescence, détecté, est digitalisé sur 14 bits, soit 16384 niveaux de gris. Dans ce type de caméra, chaque pixel se comporte, en quelque sorte comme un photo-multiplicateur et possède donc un gain ajustable par le réglage d'une haute tension. Le capteur matriciel possède un million de pixels et un objectif à fort grandissement est utilisé. Ceci permet d'obtenir une résolution spatiale optimale de 3 μm par pixel. La caméra permet d'effectuer aussi des groupements de pixels (bining) permettant d'accroître l'intensité collectée par un pixel, mais en dégradant la résolution spatiale.
Enfin, afin de pouvoir mesurer l'intensité de fluorescence des gouttes, il est nécessaire de synchroniser la fréquence des impulsions laser sur celle des gouttes. Une fonction électronique a été développée à cet effet. Les gouttes ont une fréquence de l'ordre de la dizaine de kHz ; toutefois cette fréquence ne peut pas être modifiée afin de conserver le caractère stationnaire et monodisperse du jet. En revanche la fréquence naturelle du laser Nd-Yag, de l'ordre de 10 Hz, est modifiable sur une petite plage de fréquences, typiquement entre 9 et 11 Hz.
La figure 4.6 présente la stratégie de synchronisation. Un signal à 10 Hz issu d'une horloge est modifié afin de synchroniser ses fronts montants sur ceux du signal des gouttes. Le signal ainsi obtenu a une fréquence de $10\ \mathrm{Hz} \pm \varepsilon$. Ce signal est utilisé afin de contrôler l'ouverture de la cellule de pockels du laser, ce qui permet d'une part de synchroniser les impulsions laser sur la fréquence d'arrivée des gouttes et d'autre part de déclencher l'acquisition de la camera sur le passage des gouttes. Enfin, un déphaseur variable permet un décalage temporel maximal de 0.12 ms, correspondant à une fréquence du signal des gouttes de 8 kHz.

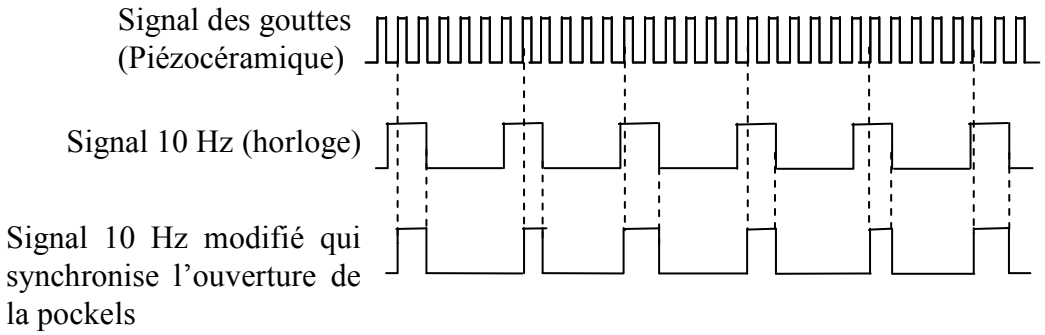


Figure 4.6 : Synchronisation des tirs laser sur les gouttes

4.4.2 Détermination des caractéristiques d'absorption

Le rayonnement laser U.V. à 266 nm est utilisé dans le cadre de cette étude afin d'exciter l'acétone. Il est donc nécessaire de déterminer le coefficient d'absorption ε_a relatif à cette longueur d'onde. Deux méthodes ont été mises en œuvre afin de déterminer ce coefficient.

Méthode 1 : Utilisation d'un spectromètre d'absorption

La mesure des spectres d'absorption permet d'avoir une bonne évaluation du coefficient d'absorption molaire ε_a. Les spectres d'absorption sont mesurés pour une concentration en acétone connue et un chemin optique donné par l'épaisseur de la cuve du spectromètre.

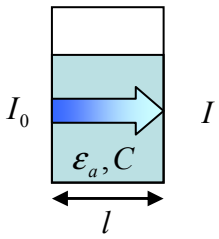


Figure 4.7 : Atténuation du faisceau laser traversant une solution d'acétone

En introduisant l'énergie incidente I_0, l'intensité transmise I, la concentration en traceur C et le chemin optique l parcouru par le faisceau, l'atténuation du faisceau laser (figure 4.7) peut être quantifié par la loi de Beer-Lambert, et le coefficient d'absorption molaire peut être déterminé :

$$\varepsilon_a = -\frac{\ln(I/I_0)}{Cl} \tag{4.16}$$

La figure 4.8 présente l'intensité lumineuse transmise pour deux fractions volumiques d'acétone Z_a différentes, 0.5% et 1%, en présence ou non de rhodamine B afin de préciser l'influence de celle-ci. L'intensité lumineuse transmise est d'autant plus importante que la fraction volumique en acétone est faible ; de plus la Rhodamine B n'influence pas le spectre d'absorption de l'acétone. Connaissant la longueur du chemin optique $l = 8mm$, il est possible de déterminer la valeur du coefficient d'absorption molaire $\varepsilon_a = 3625 mol^{-1} l^{-1} m^{-1}$.

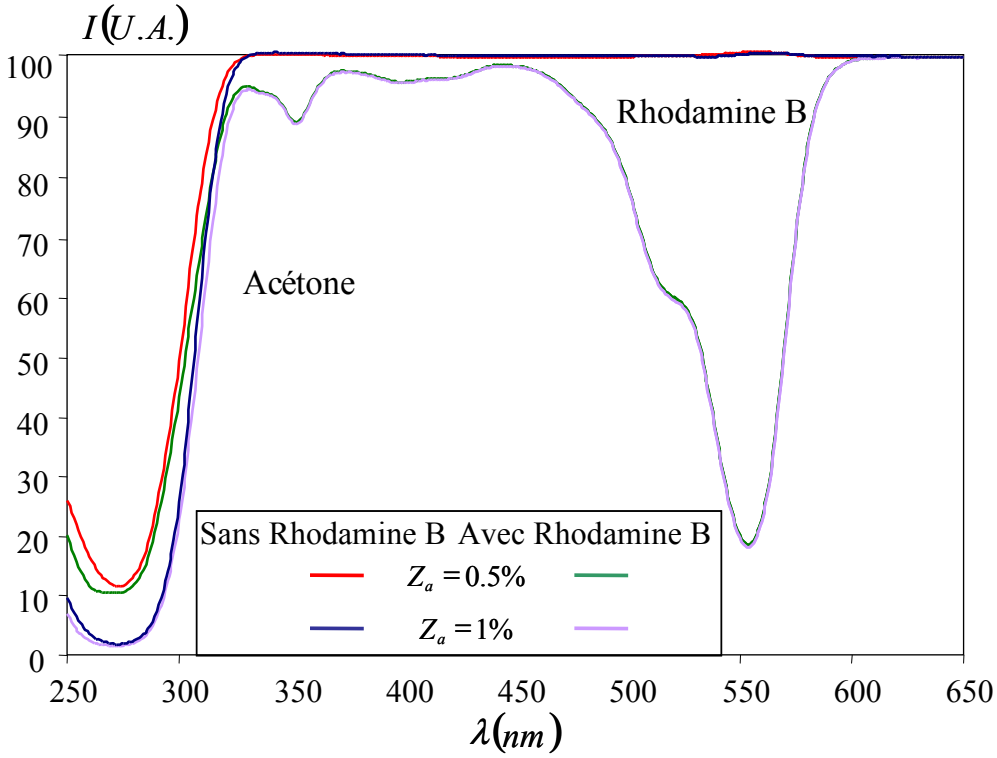


Figure 4.8 : Spectre d'absorption de l'acétone pour différentes fractions volumiques d'acétone

Méthode 2 : Utilisation de la camera CCD à multiplication d'électrons

Le faisceau laser U.V. (266 nm) est focalisé dans une direction grâce à un jeu de lentilles cylindriques afin d'obtenir une nappe laser de 400 µm d'épaisseur (Figure 4.9). Des images de la fluorescence de l'acétone placée dans une cuve de spectrométrie en quartz sont acquises. La cuve en quartz est hermétique afin d'éviter une modification de la concentration par évaporation et sa température est contrôlée par un module à effet Pelletier. Une fraction du faisceau laser est prélevée avec une lame 4% puis dirigée vers le capteur pyroélectrique, afin de quantifier les fluctuations de l'énergie laser et de corriger le signal.

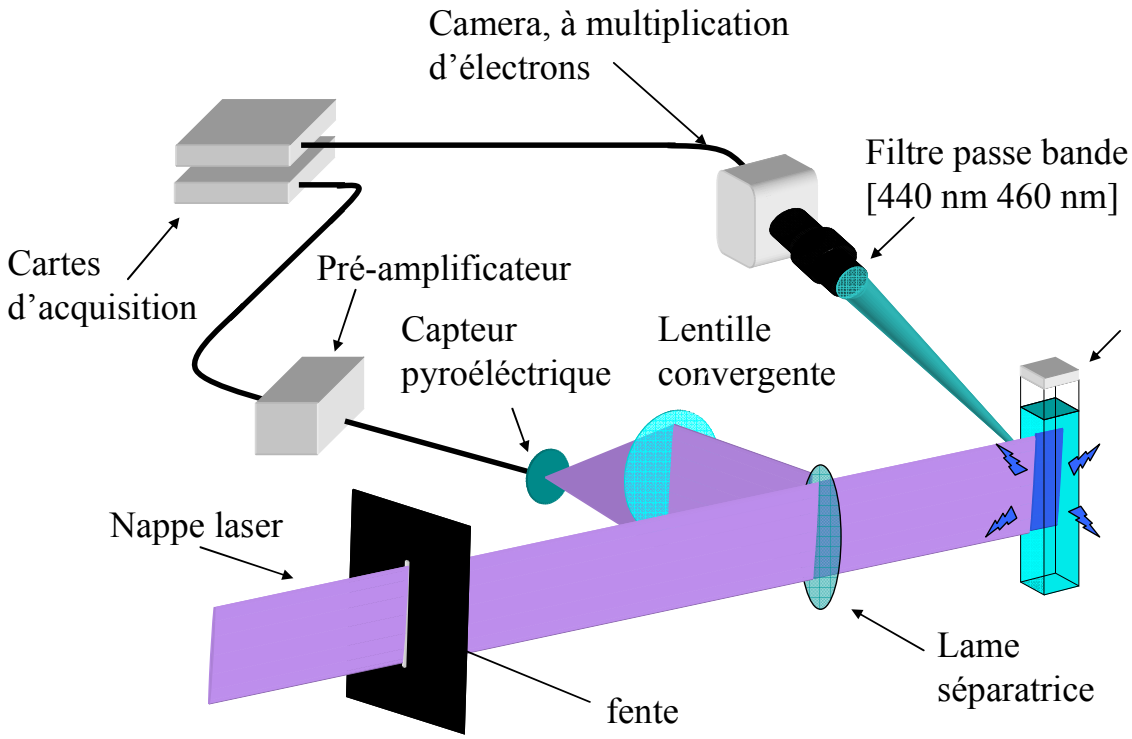


Figure 4.9 : Dispositif expérimental

♦ Linéarité de la chaîne de mesure

Dans un premier temps, la linéarité de la chaîne de mesure a été vérifiée. La puissance du laser peut être contrôlée grâce au délai entre l'émission laser par le cristal et l'ouverture de la cellule de pockels (Q-Switch). Toutefois, ce procédé ne s'avère pas être le meilleur, puisque la structure du faisceau (divergence, répartition spatiale d'énergie) est affectée d'une manière qui ne peut pas être quantifiée.

Une autre stratégie a donc été mise en place, en mesurant le signal de fluorescence en fonction de la concentration d'acétone dans une cuve, en maintenant la puissance laser constante. Pour de faibles concentrations en acétone, l'intensité de fluorescence est peu sensible au terme $1/(1+\mu\chi_a)$ relatif au rendement de fluorescence dans l'équation 4.6. L'intensité de fluorescence peut s'écrire en première approche :

$$I_{fluo} \approx K\chi_a \int_V I_l \, dV \qquad (4.17)$$

La figure 4.10 illustre l'atténuation du faisceau laser dans une cuve remplie d'un mélange contenant une fraction molaire d'acétone $\chi_a = 0.031$. Un volume de contrôle de côté $l = 0.05mm$ a été défini, sur lequel l'intensité est collectée. La loi de Beer-Lambert permet d'évaluer le terme intégral intervenant dans l'équation 4.17.

$$\int_V I_l \, dV \approx \frac{1 - e^{-\varepsilon_a C_a l}}{\varepsilon_a C_a} \tag{4.18}$$

En combinant 4.17 et 4.18 et introduisant la quantité I_m relative à l'énergie de fluorescence collectée, il vient :

$$I_m = \frac{C_a I_{fluo}}{1 - e^{-\varepsilon_a C_a dl}} \propto \chi_a \tag{4.19}$$

Les mesures réalisées (Figure 4.11) sont en accord avec la relation de proportionnalité 4.19 et mettent en évidence le caractère linéaire de l'ensemble de la chaîne d'acquisition y compris de la caméra CCD utilisée.

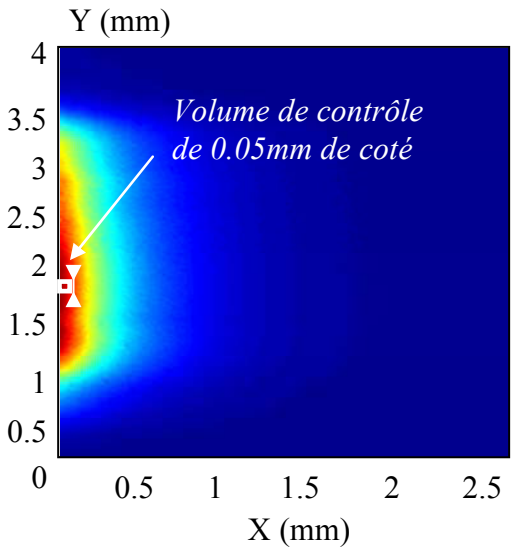


Figure 4.10 : Absorption du faisceau laser incident à 266 nm et définition du volume de contrôle

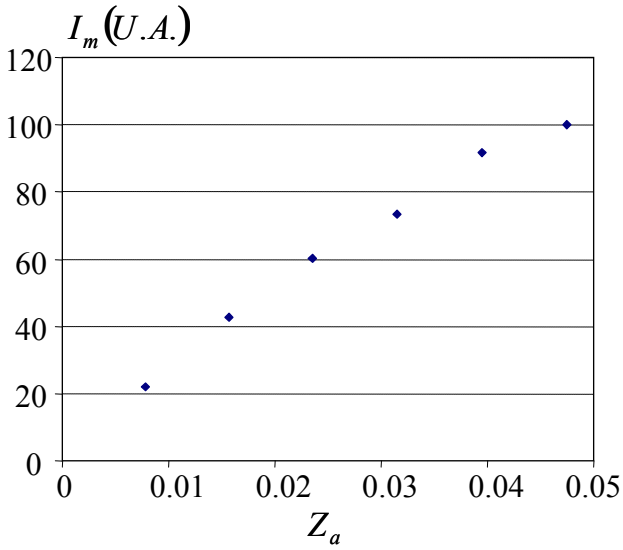


Figure 4.11 : Linéarité de l'intensité de fluorescence, en fonction de la fraction volumique d'acétone

♦ Détermination du coefficient d'absorption molaire

L'atténuation de l'intensité I du faisceau incident dans le volume de contrôle (figure 4.10) est régie par la loi de Beer-Lambert :

$$\ln\left(\frac{I}{I_0}\right) = -\varepsilon_a C l \tag{4.20}$$

Le tracé du logarithme de l'intensité de fluorescence en fonction du chemin optique du faisceau incident x permet de déterminer la valeur du coefficient d'absorption molaire ε_a.

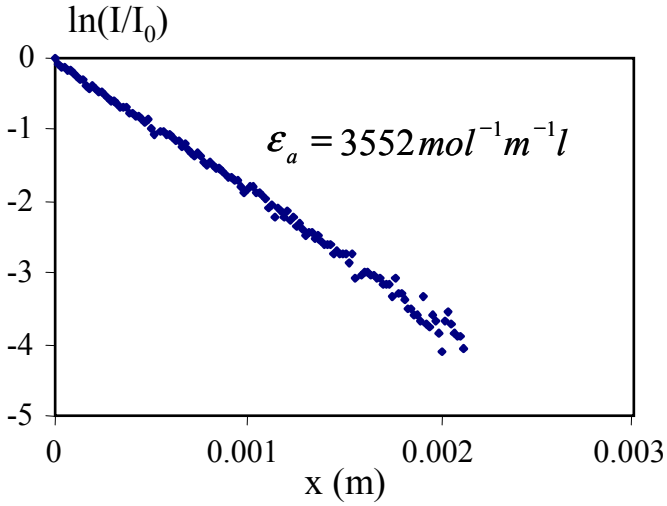


Figure 4.12 : Absorption de Beer lambert

A l'aide du tracé de la figure 4.12, le coefficient d'absorption molaire de l'acétone en phase liquide à la longueur d'onde 266 nm peut-être évalué à $\varepsilon_a = 3552 \pm 106 mol^{-1}m^{-1}l$, ce qui est très proche de la valeur déterminée par spectrométrie d'absorption L'incertitude est donnée comme l'écart type relatif aux valeurs trouvées pour différentes fractions d'acétone.

4.4.3 Détermination de la correction de quenching

Le paramètre μ lié au terme de quenching de l'équation (4.7) est inconnu et doit être déterminé par une calibration préliminaire. Celle-ci a été effectuée sur un jet cylindrique composé d'acétone et d'éthanol. Ce type de dispositif a été utilisé afin d'éviter les phénomènes de photo-blanchissement et pour limiter le chemin optique, du fait de la forte absorption de l'acétone. Le dispositif expérimental est décrit figure 4.13 : le jet liquide est généré à l'aide d'une aiguille de seringue dans laquelle le liquide est injecté sous pression. Pour cette expérience de calibration, une fine nappe de 400 μm d'épaisseur a été réalisée, avec un jeu de deux lentilles cylindriques. Les dimensions finales du faisceau sont imposées par le passage à travers deux fentes perpendiculaires (200 μm x 500 μm). Ces dimensions restent grandes devant la longueur d'onde du laser (266 nm), ce qui limite les effets de diffraction.
La fluorescence est collectée à angle droit par un doublet achromatique puis traverse le filtre interférentiel sélectionné précédemment. La détection du signal optique est assurée par le photomultiplicateur. Le signal électrique est ensuite filtré passe bas, puis amplifié avant d'être transféré vers une carte d'acquisition dont la fréquence d'acquisition est limitée à 20 MHz. Le rôle du filtrage passe bas est d'étaler temporellement le signal d'une durée typique de quelques ns sur une durée compatible avec la fréquence d'échantillonnage. L'amplificateur

permet d'ajuster l'amplitude du signal. Après chaque mesure d'intensité de fluorescence, le jet liquide est coupé et la totalité de l'énergie laser incidente interceptée par le jet est mesurée à l'aide du capteur pyroélectrique positionné juste après le jet liquide.

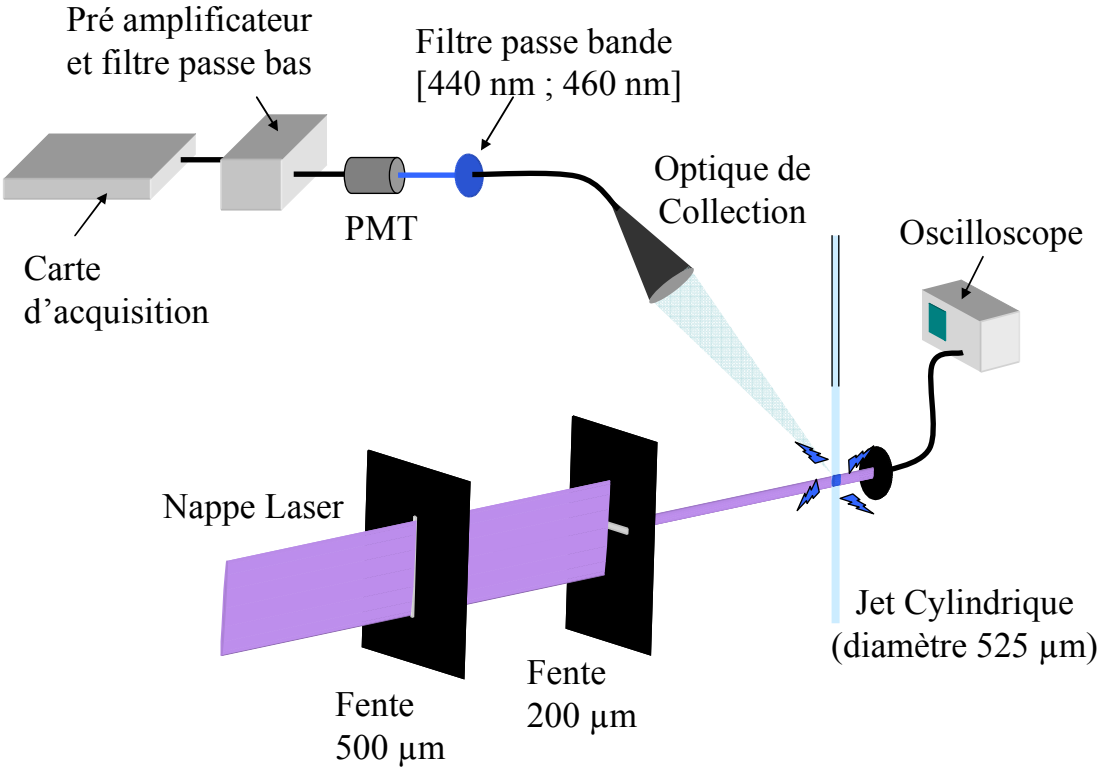


Figure 4.13 : *Schéma de l'expérience de calibration sur un jet cylindrique.*

Une étude de l'intensité de fluorescence en fonction de l'énergie des impulsions laser a été réalisée pour cinq fractions volumiques d'acétone. Les résultats sont rassemblés sur la figure 4.14 pour $Z_a = 10$ %, 60 % et 100 % ($Z_a = 20$ % et 80 % ne sont pas représentés pour la bonne lisibilité du graphique). Nous pouvons observer une augmentation linéaire de l'intensité de fluorescence en fonction de l'énergie laser. Pour les énergies laser les plus hautes, nous constatons un phénomène de saturation suivie d'une décroissance de l'intensité de fluorescence. Cette dernière observation peut potentiellement être attribuée à des phénomènes de pré-dissociation de la molécule comme suggéré par Majumder et al. (1999).
Le modèle permettant de quantifier l'intensité de fluorescence de goutte (équation 4.7) peut être adapté au cas de la géométrie cylindrique d'un jet par :

$$I_{fluo} = \gamma \xi(\chi_a, D_{cyl}) I_0 \tag{4.21}$$

avec

$$\gamma = K \frac{\chi_a}{1 + \mu \chi_a} D_{cyl}{}^2 \tag{4.22}$$

où $\xi(\chi_a, D_{cyl})$ est le facteur d'efficacité d'éclairement, calculé à l'aide du code de lancé de rayons, adapté au cas de la géométrie du jet cylindrique ; D_{cyl} est le diamètre du jet liquide et K est une constante.

Paradoxalement, la pente $\gamma\xi(\chi_a, D_{cyl})$ de la région linéaire est d'autant plus élevée que la fraction d'acétone est faible. Ceci peu être attribué :

- à un quenching plus efficace des molécules d'acétone par elles mêmes, que par les molécules d'éthanol,
- à la présence du facteur d'efficacité $\xi(\chi_a, D_{cyl})$ qui tend à limiter l'accroissement du signal lorsque la concentration en acétone augmente.

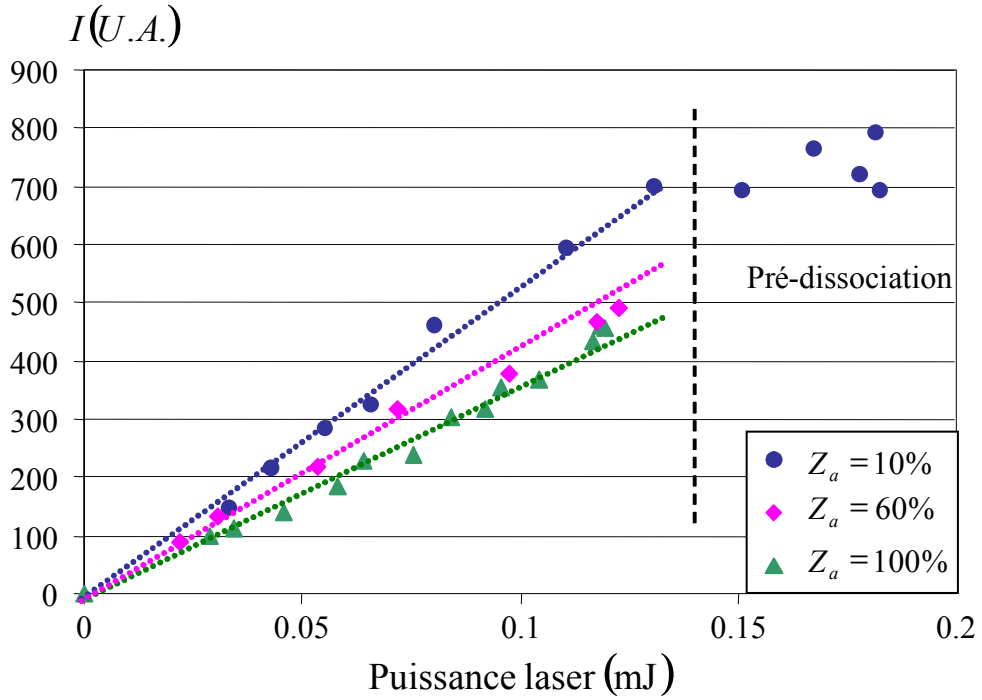


Figure 4.14 Evolution de l'intensité de fluorescence en fonction de l'énergie laser incidente pour différentes fractions d'acétone dans le jet liquide

Afin de déterminer la valeur du paramètre μ, la pente γ doit auparavant être corrigée par le facteur d'efficacité ξ. La pente corrigée γ_{cor} s'exprime par :

$$\gamma_{cor} = \frac{\gamma}{\xi(\chi_a, D_{cyl})} = K \frac{\chi_a}{\mu\chi_a + 1} D_{cyl}^2 \qquad (4.23)$$

Les évolutions de la pente corrigée γ_{cor} et du facteur d'efficacité $\xi(\chi_a, D_{cyl})$ sont représentées figure 4.15, en fonction de la fraction d'acétone. Comme attendu, les valeurs de γ_{cor} les plus élevées sont associées aux fractions d'acétone les plus élevées et le facteur d'efficacité décroît

très rapidement entre $Z_a = 10\%$ et $Z_a = 20\%$, puis de manière beaucoup plus modérée par la suite. Le calcul du rapport entre deux pentes corrigées, correspondant à deux fractions molaires χ_{ai} et χ_{aj} permet d'éliminer la constante K et le diamètre du jet D_{cyl} puisque les mesures sont effectuées dans les mêmes conditions. Ainsi, le paramètre μ peut être déduit de rapports du type :

$$\gamma_{icor} / \gamma_{jcor} = \left(\frac{\chi_{ai}}{\mu\chi_{ai} + 1} \right) \Big/ \left(\frac{\chi_{aj}}{\mu\chi_{aj} + 1} \right) \tag{4.24}$$

i, j désignant les indices correspondant à l'une des fractions d'acétone testée. Le calcul de μ est effectué en minimisant la fonction $\sum_{\substack{i,j \\ i<j}} \left| \gamma_{icor} / \gamma_{jcor} - \left(\frac{\chi_{ai}}{\mu\chi_{ai} + 1} \right) \Big/ \left(\frac{\chi_{aj}}{\mu\chi_{aj} + 1} \right) \right|$, représentant le résidu entre le modèle et l'expérience. Après moyennage, une valeur μ=1.15 ± 0.09 peut être déterminée. L'incertitude est conditionné par celles sur la pente de 2%, sur la fraction d'acétone évaluée à 3 % et sur la valeur de la fonction ξ. Il est ensuite aisé de vérifier que le modèle de fluorescence préconisé avec μ=1.15 permet d'obtenir un bon accord avec les données expérimentales (figure 4.15).

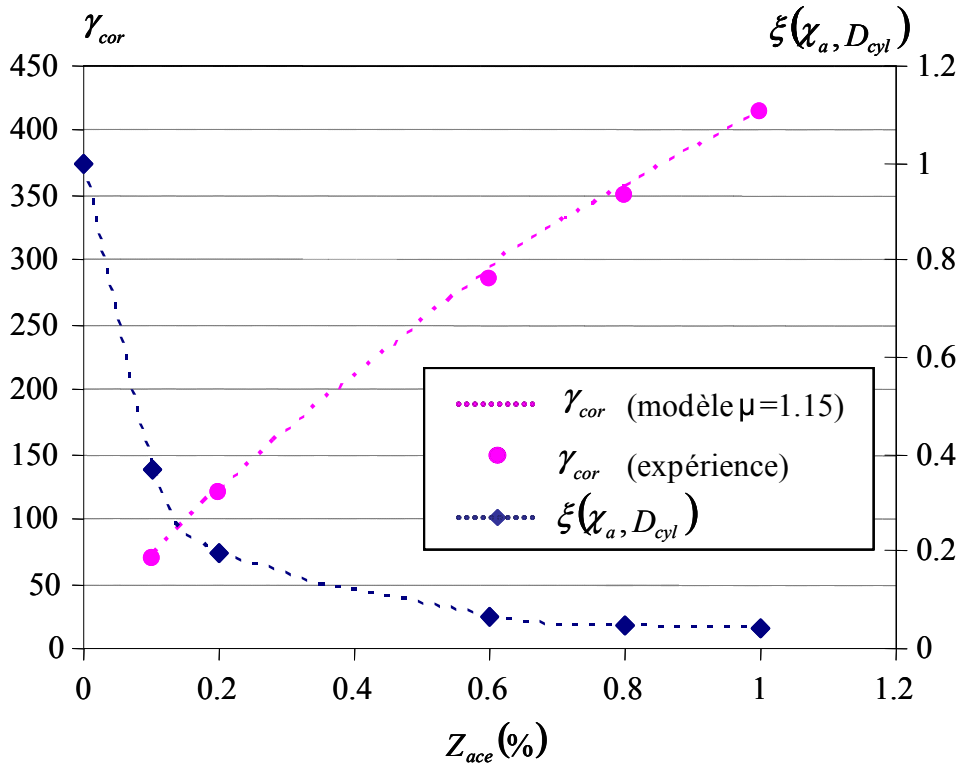


Figure 4.15 : Evolution du paramètre de correction (mesures et modèle) et du facteur d'efficacité, en fonction de la fraction d'acétone.

4.5 Calculs préliminaires sur les gouttes

Dans un premier temps, l'évolution du signal de fluorescence d'une goutte contenant de l'acétone en fonction de la composition et du diamètre peut être quantifiée grâce à l'équation 4.7. L'évolution calculée de l'intensité de fluorescence est présentée sur la figure 4.16 en fonction de la fraction volumique d'acétone dans la goutte et pour différents diamètres de goutte. Comme attendu, l'intensité de fluorescence obtenue dépend fortement du diamètre de la goutte. De plus, pour un diamètre fixé, la variation de l'intensité avec la fraction d'acétone est très forte pour les faibles fractions d'acétone. Un régime quasi-linéaire peut être noté pour des fractions volumiques n'excédant pas Z_a=10%. La dépendance à la fraction d'acétone décroît après Z_a=10%, mais demeure néanmoins notable et utilisable jusqu'à Z_a=30%. Pour des fractions supérieures à 30%, cette dépendance devient très limitée. Ce phénomène peut être attribué à l'équilibre entre l'augmentation de la fraction d'acétone et l'accroissement résultant de l'extinction du faisceau laser incident par absorption, réduisant ainsi la fraction de la goutte contribuant au signal de fluorescence. La légère diminution du signal de fluorescence pour les fortes fractions d'acétone provient de la correction du quenching.

L'évolution du facteur d'efficacité $\xi(\chi_a, D) = e^{-\varepsilon_a C_a D^{1.1}}$ calculé par le code de lancé de rayons est portée figure 4.17, en fonction de la fraction d'acétone et pour différents diamètres de gouttes. Le facteur d'efficacité est une fonction décroissante de la fraction d'acétone et du diamètre de goutte. Le calcul est en bon accord avec la loi de Beer-Lambert modifiée suggérée par Ritchie et Seitzman (2001), pour les plus petits diamètres considérés (D<100 μm):

$$\xi(\chi_a, D) \approx e^{-\varepsilon_a C_a D^{1.1}} \tag{4.25}$$

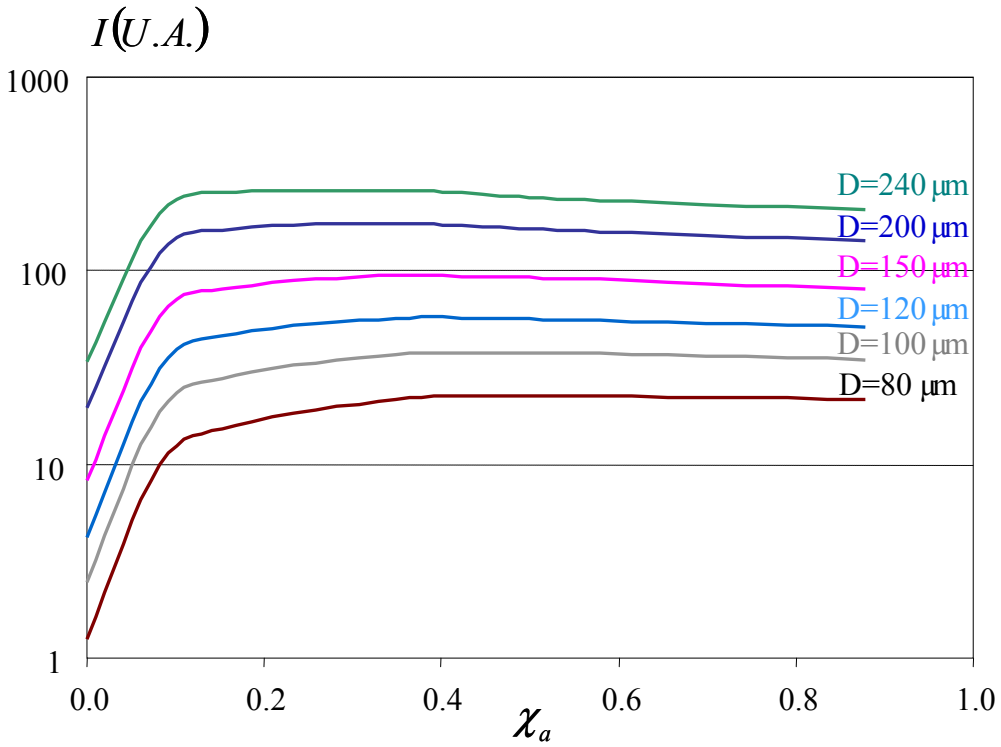


Figure 4.16: Evolution calculée de l'intensité de fluorescence en fonction de la fraction volumique d'acétone pour différents diamètres de goutte.

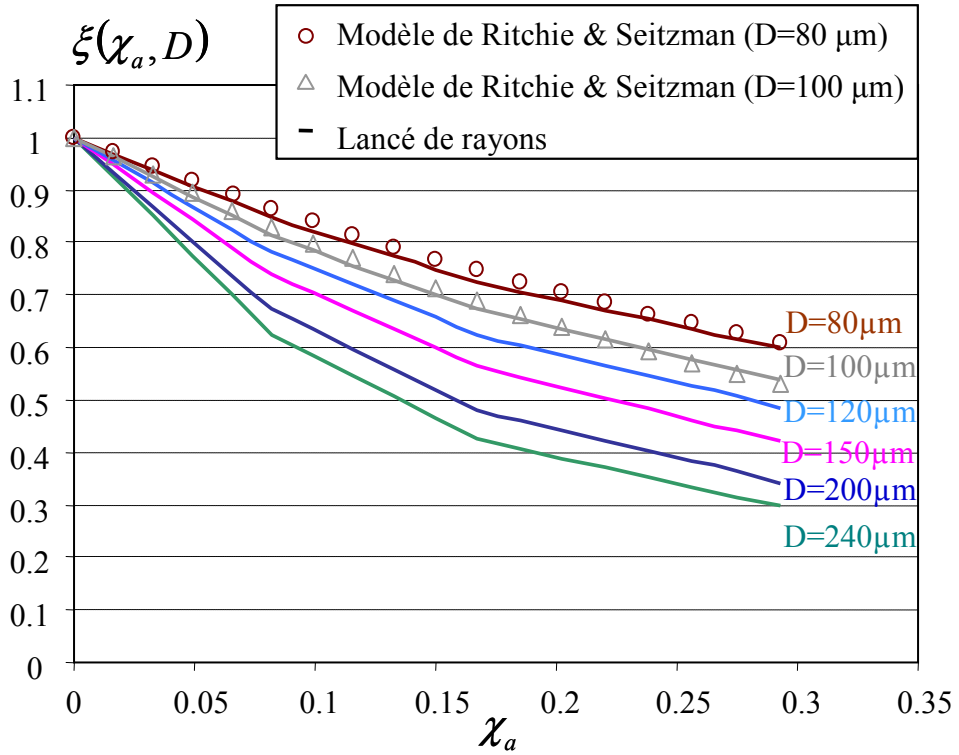


Figure 4.17: Evolution du facteur d'efficacité en fonction de la fraction volumique d'acétone pour différents diamètres de goutte. Comparaison au modèle de Ritchie et Seitzman pour D<100 µm.

4.6 Acquisition du signal de fluorescence

4.6.1 Dispositif expérimental

L'ouverture complète du faisceau laser (diamètre 9mm) est utilisée pour les expériences sur les gouttes (figure 4.18). La densité d'énergie dans cette configuration est bien plus faible que dans le cas d'un faisceau focalisé, mais elle présente l'avantage de s'affranchir des mouvements transverses de la goutte, en garantissant en permanence un éclairement total de la goutte. Le signal de fluorescence est imagé sur la caméra CCD, dont l'ouverture est synchronisée sur l'impulsion laser et le passage des gouttes. Une lame séparatrice, permet de collecter 4 % de l'énergie laser incidente et ainsi de normaliser l'intensité de fluorescence de la goutte considérée par énergie laser vue par la goutte.

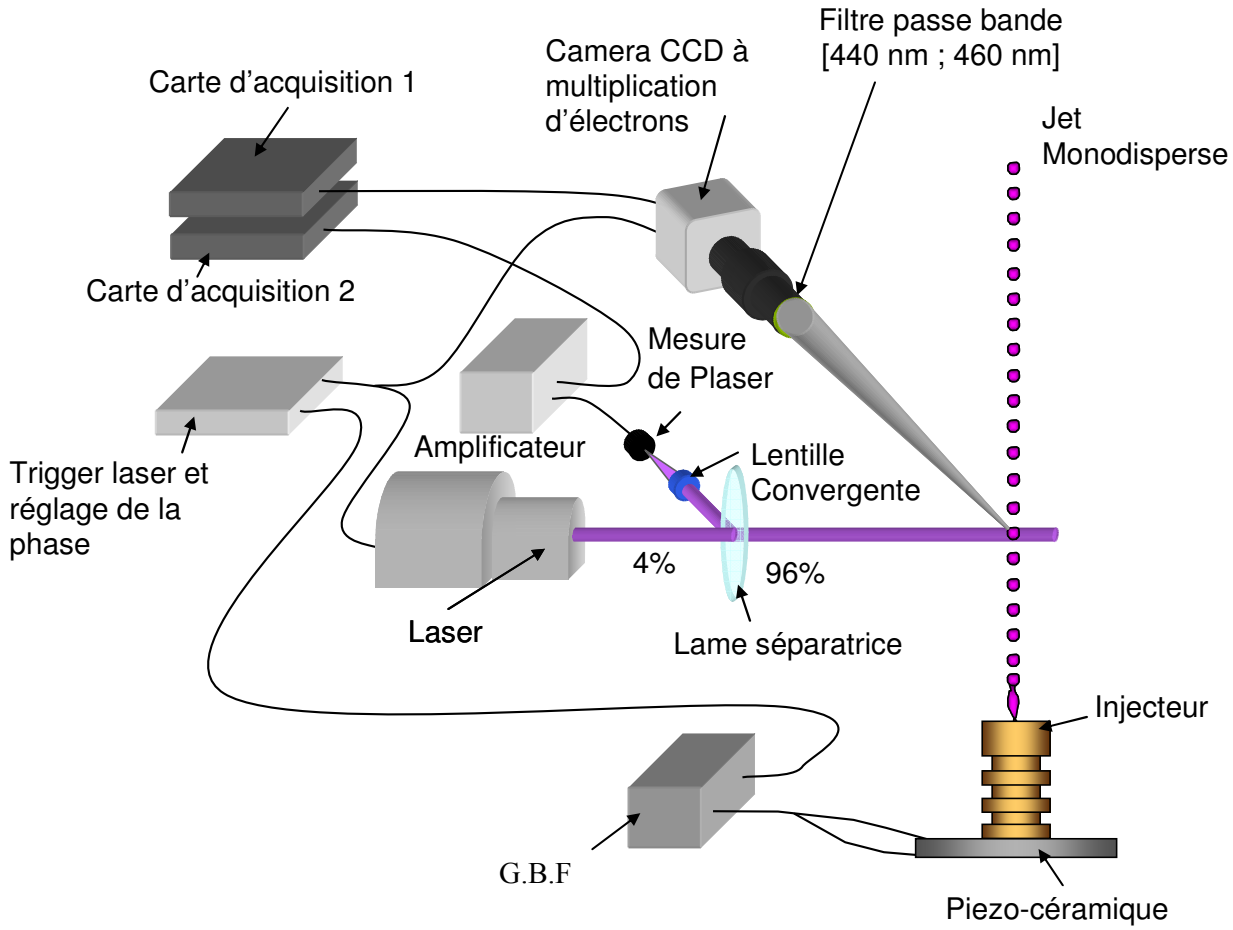
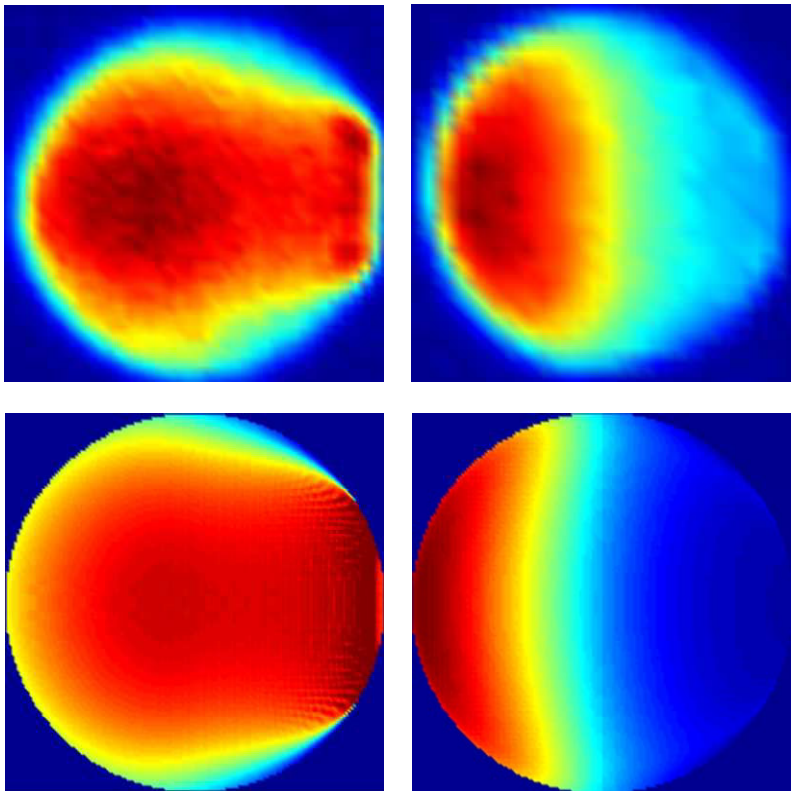


Figure 4.18 : Dispositif d'acquisition sur les gouttes

4.6.2 Traitement de l'image

Deux traitements de l'image ont été mis en œuvre pour l'exploitation du signal.
Le premier traitement vise à obtenir une image de l'intensité de fluorescence à l'intérieur de la gouttelette. Ce procédé a été utilisé pour la calibration en fonction du diamètre. Le contour de

la goutte est extrait en utilisant un seuil fixé à 1.5 fois le bruit de fond ; puis, après repositionnement, 200 images sont moyennées. Une image du bruit de fond est tout d'abord enregistrée puis soustraite des images acquises. Un test préliminaire a été effectué pour deux diamètres de goutte, D=109 µm et D=187 µm et respectivement deux fractions d'acétone Z_a=20% et Z_a=90% (figure 4.19).



Z_a= 20%, D=109 µm Z_a= 90%, D=187 µm

Figure 4.19 : Champs d'intensité de fluorescence de l'acétone

La figure (4.19) montre l'effet très important de l'absorption du faisceau dans la goutte. Les résultats obtenus par calcul à l'aide du code de lancé de rayons sont très proches des cartes mesurées expérimentalement. Pour une concentration volumique d'acétone Z_a=20%, l'effet de focalisation de l'énergie est compensé par l'absorption. En revanche pour une concentration volumique d'acétone Z_a=90%, le faisceau laser est quasiment éteint à la périphérie de la goutte.

Un deuxième traitement de l'image mis en œuvre vise à obtenir une concentration moyenne dans la goutte (moyenne au sens spatial). Une région d'intérêt (figure 4.20) incluant plusieurs gouttes est définie sur l'image. 250 images, normalisées par l'énergie laser, sont acquises puis moyennées entre elle après soustraction de l'image moyenne de bruit de fond. Enfin le signal résultant est déterminé en calculant la moyenne sur la région d'intérêt.

Dans cette configuration la résolution spatiale est dégradée, au profit d'une amélioration du rapport signal sur bruit. De plus en combustion, ou dans le panache d'air chaud, les gouttes

peuvent avoir un léger mouvement transverse sans perturber la mesure. Les positions extrêmes des gouttes sont repérées afin d'éliminer les images ou les gouttes risquent de sortir de la région d'intérêt.

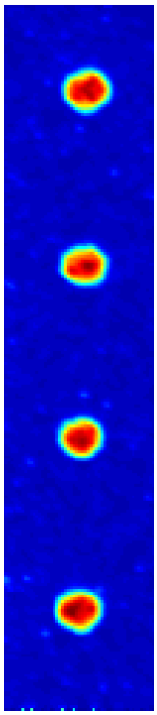


Figure 4.20 : Région d'intérêt sur des gouttes en combustion
Za=30 % D=97µm C=3.17 V=7.5m/s

♦ Images singulières

Lors des mesures, certaines images laissent apparaître des zones de très forte intensité conduisant à une saturation locale du capteur (Figure 4.21). Ces images sont difficilement interprétables et peuvent laisser penser à des résonances morphologiques. Cependant dans le cas de l'acétone en phase liquide, l'absorption du rayonnement laser est telle que le mode raisonnant devrait être très rapidement amorti. L'effet du rayonnement résiduel à 532 nm provenant du laser Nd-Yag a également été écarté: en effet ce type de phénomène n'a pas été observé sur des gouttes d'éthanol pur. Ces images sont systématiquement éliminées du traitement.

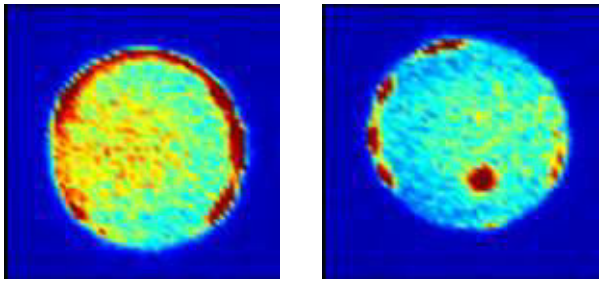


Figure 4.21: Images singulières de gouttes de diamètre 130 µm, composées de 20 % d'acétone

4.6.3 Influence du diamètre des gouttes

Différents diamètres de goutte ont été générés en ajustant la fréquence de la piézo-céramique du jet monodisperse compris, entre 80 µm et 238 µm. Deux fractions d'acétone ($Z_a = 10$ % et $Z_a = 20$ %) ont été considérées. Les mesures ont été réalisées dans une zone proche de l'injecteur afin de limiter l'évaporation des gouttes entre le point d'injection et la zone de mesure. Le seul paramètre variable est donc le diamètre. De plus, comme les trajectoires des gouttelettes sont très stables au voisinage de l'injection, elles sont toujours exposées au même profil de distribution d'intensité lumineuse lorsqu'elles traversent le faisceau laser. Dans cette configuration, le premier type de traitement de l'image décrit dans le paragraphe 4.6.2 a été mis en œuvre. L'évolution de l'intensité de fluorescence est présentée figure 4.22, en fonction du diamètre des gouttes, pour les deux fractions d'acétone mentionnées. Deux séries d'expérience ont été réalisées, afin de vérifier la reproductibilité des mesures. Les résultats obtenus laissent apparaître une reproductibilité moins bonne pour les grosses tailles de goutte ; en effet pour les diamètres supérieurs à 170 µm, les points de mesure sont plus dispersés. Pour cette plage de diamètre, l'hypothèse de sphéricité des gouttes est plus délicate et peut être remise en cause. Comme prévu, l'intensité de fluorescence mesurée croit avec le diamètre des gouttes et la fraction volumique d'acétone. Un bon accord avec le modèle (4.7) peut être observé dans le domaine de taille étudié.

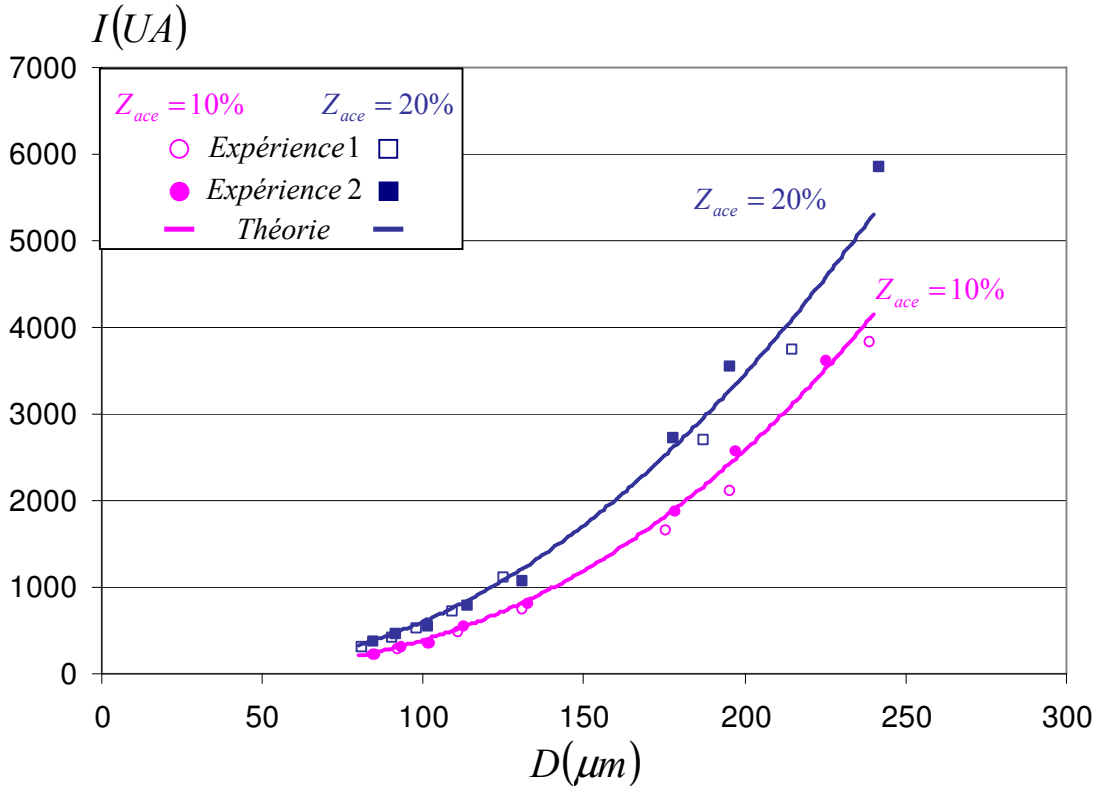


Figure 4.22: Mesures de l'intensité de fluorescence en fonction du diamètre des gouttes pour Za=10 % et Za= 20%. Comparaison au modèle.

4.6.4 Influence de la fraction d'acétone

L'influence de la fraction d'acétone a été testée pour trois diamètres de gouttes (D=90 µm, D=150 µm et D=200 µm) et trois fractions volumique d'acétone (Z_a=5 %, Z_a=10 %, Z_a=20 %). L'évolution de l'intensité de fluorescence est présentée figure 4.23, en fonction de la fraction d'acétone pour les trois diamètres de gouttes envisagés. L'équation 4.7 semble prédire avec une bonne précision l'évolution observée expérimentalement et ceci dans un domaine de fractions d'acétone relativement large. En revanche, les différences sont plus prononcées pour les gouttes les plus grosses, ce qui peut être attribué à des gouttelettes potentiellement non-sphériques.
L'équation 4.7 a été évaluée pour une température des gouttes de 20°C pour le calcul de la mesure volumique du liquide. La masse volumique de l'acétone évolue de 749 kg/m^3 à 20°C à 758 kg/m^3 à 56°C alors que celle de l'éthanol évolue de 782 kg/m^3 à 786 kg/m^3 dans la même gamme de température. Une évaluation similaire de l'équation 4.7 a été effectuée à la température d'ébullition de l'acétone, soit 56°C. Les différences avec le calcul à 20°C restent négligeables pour des fractions d'acétone inférieures à $Z_a = 0.3$.

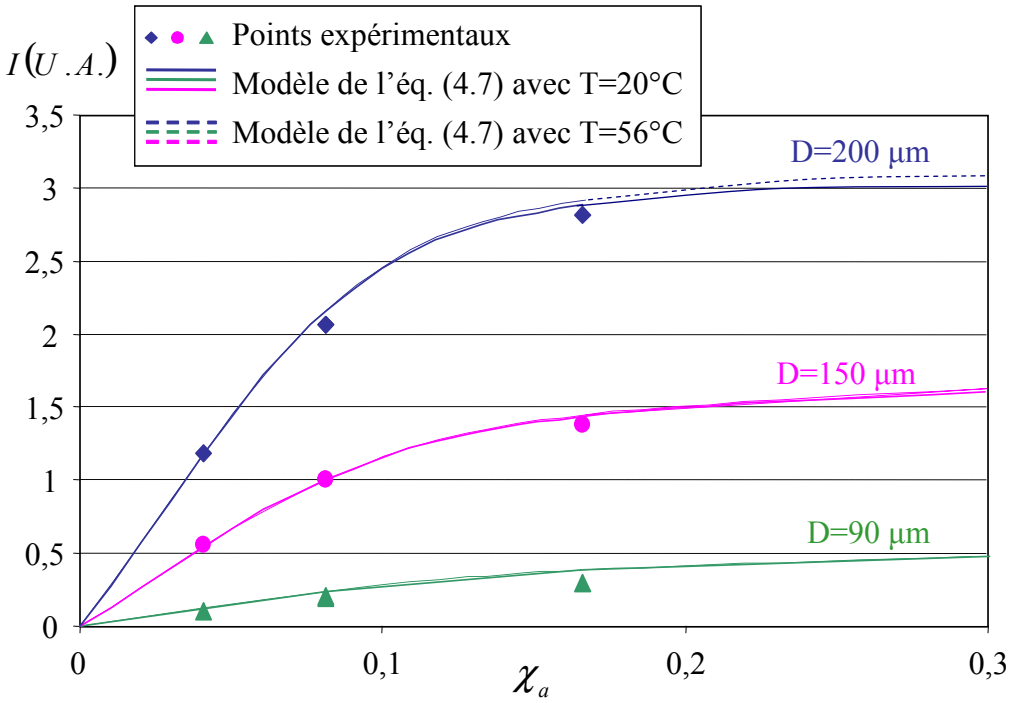


Figure 4.23: Mesures de l'intensité de fluorescence en fonction de la fraction d'acétone pour trois diamètres de goutte. Comparaison au modèle.

4.6.5 Dépendance en température

Le modèle décrit par l'équation 4.7 présuppose que le signal de fluorescence est indépendant de la température dans les conditions rencontrées dans l'expérience. Nous avons notamment supposé que la dépendance en température des constantes de désactivation collisionnelle et du coefficient d'absorption était négligeable. Cette hypothèse a été validée en mesurant l'intensité de fluorescence pour Z_a=20% dans deux configurations différentes. Une première considère des gouttes de 115 µm dont la température d'injection est contrôlée. Les mesures sont effectuées le plus proche possible de l'injection (environ à 2 cm de l'injection) afin de minimiser le refroidissement dû à l'évaporation et de garantir la sphéricité des gouttes. La deuxième a été réalisée dans une cellule agitée à température contrôlée. Les résultats montrent des variations de l'intensité distribuée aléatoirement autour de la valeur moyenne à $\pm 2\%$ (figure 4.24).

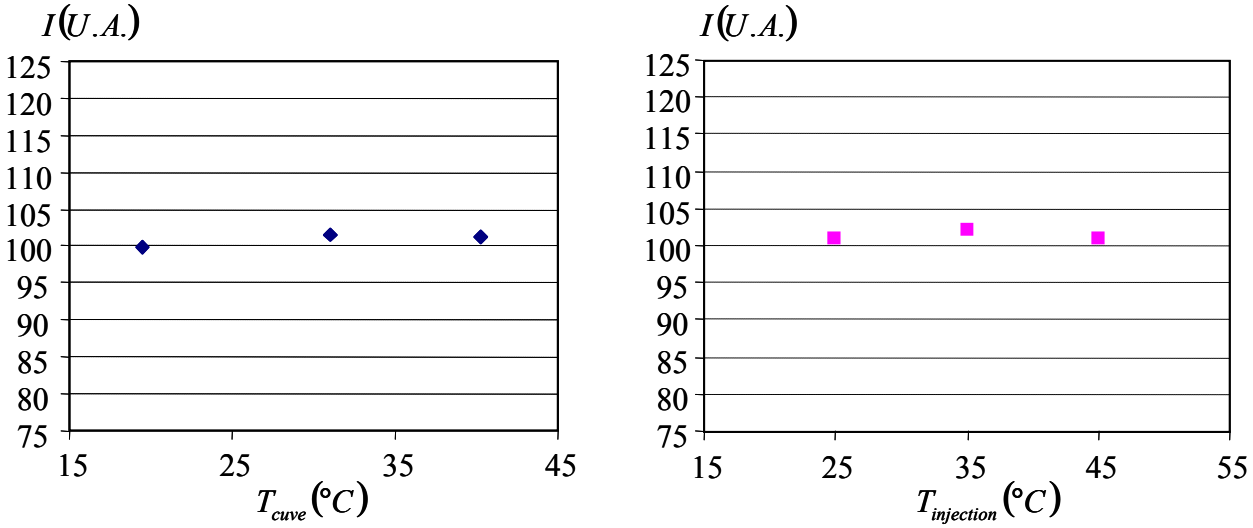


Figure 4.24: Intensité de fluorescence en fonction de la température du combustible mesuré en cuve et sur des gouttes (Z_a=20 %).

4.6.6 Principe de la mesure de concentration d'acétone sur le jet de gouttes en évaporation

L'inversion de l'équation 4.7 permet de déterminer la valeur de la composition. La constante K n'est pas connue et nécessite une mesure de référence à une concentration χ_{a0} et un diamètre D_0 connus.

Pour cela une mesure de l'intensité de fluorescence est prise sur des gouttes injectées à l'air ambiant, au voisinage immédiat de la sortie de l'injecteur, sous l'hypothèse d'une modification de la composition négligeable entre le mélange injecté et le point de référence.

Le rapport entre l'intensité mesurée en un point du jet et l'intensité mesurée au point de référence est donné par :

$$\frac{I_{fluo}(\lambda)}{I_{fluo_0}(\lambda)} = \frac{E}{E_0}\frac{\chi_a}{1+\mu\chi_a}\frac{1+\mu\chi_{a0}}{\chi_{a0}}\left(\frac{D}{D_0}\right)^3\frac{\xi(\chi_a, D)}{\xi(\chi_{a0}, D_0)} \tag{4.26}$$

Ce rapport est indépendant des constantes du système K, χ_{a0} est supposée connue et D_0 est mesuré préalablement par débitmètrie

$$D = 2\left(Q_v \Big/ \frac{4}{3}\pi f\right)^{\frac{1}{3}} \tag{4.27}$$

où Q_v est le débit mesuré et f est la fréquence du train de goutte. E_0 et E sont mesurées à l'aide du capteur pyroéléctrique. D, le diamètre au point de mesure, est déterminé par interférométrie (voir chapitre 2, §3.2). Enfin, les intensités de fluorescence $I_{fluo}(\lambda)$ et $I_{fluo0}(\lambda)$, respectivement au point de mesure et au point de référence, sont mesurés à l'aide de la caméra CCD. Ces intensités sont ensuite évaluées en utilisant le deuxième type de traitement de l'image expliqué au paragraphe 4.6.2.
Le seul paramètre inconnu de l'équation 4.26 est alors la fraction d'acétone qui pourra être calculée à chaque position du jet.

4.6.7 Evaluation de l'incertitude

Afin d'évaluer l'incertitude sur la mesure de l'intensité de fluorescence, une première série de mesures a été effectué sur un jet de gouttelettes injectées à la température ambiante dans de l'air à la même température. Dans ces conditions, la concentration d'acétone et le diamètre, ne varient pratiquement pas, ce qui implique que l'intensité de fluorescence doit donc rester quasiment constante. L'évolution de l'intensité de fluorescence est présentée sur la figure 4.25. L'écart type des valeurs obtenues est de l'ordre de 2 % ; nous retiendrons cette valeur pour l'incertitude sur la mesure de l'intensité de fluorescence.

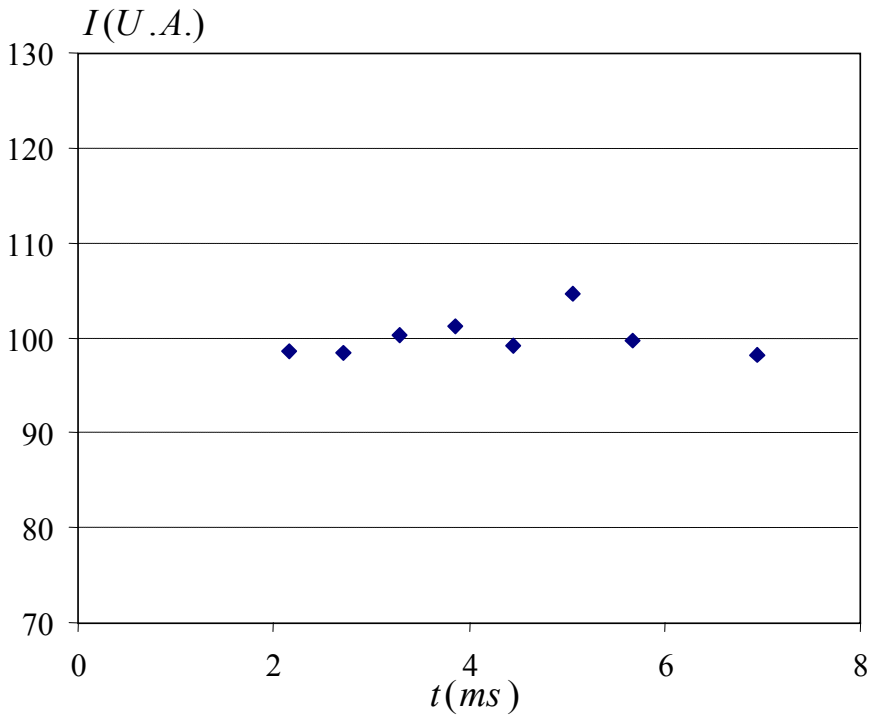


Figure 4.25: Mesures de l'intensité de fluorescence sur le jet de gouttes monodisperse à différents instants après injection dans des conditions de très faible évaporation (Z_{a0}=20%, D=106 µm V=5m/s).

L'équation 4.26 peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{I}{I_0}\frac{\chi_{a0}}{\chi_{a0}\mu+1}\left(\frac{D_0}{D}\right)^3\xi(\chi_{a0},D_0,\varepsilon_a)=\frac{\chi_a}{\chi_a\mu+1}\xi(\chi_a,D,\varepsilon_a) \tag{4.28}$$

soit une forme générique :

$$f(I,I_0,\mu,\chi_{a0},D,\varepsilon_a,D_0)=g(\mu,\chi_a,D,\varepsilon_a) \tag{4.29}$$

En utilisant la technique de différenciation et en sommant les différentes sources d'incertitude sur la mesure de l'intensité, du diamètre, sur le coefficient d'absorption molaire ε_a, et sur le paramètre relatif au quenching μ, il vient :

$$\Delta\chi_a=\frac{\left|\frac{\partial f}{\partial\mu}-\frac{\partial g}{\partial\mu}\right|\Delta\mu+\left|\frac{\partial f}{\partial\chi_{a0}}\right|\Delta\chi_{a0}+\left|\frac{\partial f}{\partial I}\right|\Delta I+\left|\frac{\partial f}{\partial I_0}\right|\Delta I_0+\left|\frac{\partial f}{\partial D}-\frac{\partial g}{\partial D}\right|\Delta D+\left|\frac{\partial f}{\partial\varepsilon}-\frac{\partial g}{\partial\varepsilon}\right|\Delta\varepsilon+\left|\frac{\partial f}{\partial D_0}\right|\Delta D_0}{\left|\frac{\partial g}{\partial\chi_a}\right|} \tag{4.30}$$

Les paramètres μ et ε_a sont connus avec une incertitude respective de $\Delta\mu=0.09$ et $\Delta\varepsilon_a=106\ mol^{-1}lm^{-1}$, la composition de référence est connue avec une incertitude de

$\Delta\chi_{a0} = 0.002$. L'incertitude sur l'intensité mesurée et sur l'intensité de référence sont de l'ordre de 2%, soit $\Delta I = 0.02I$ et $\Delta I_0 = 0.02I_0$. Enfin l'incertitude sur le diamètre mesuré par débitmètrie est évalué à $\Delta D = 0.4\ \mu m$ et celle mesurée par interférométrie à $\Delta D = 1\mu m$.

Dans la gamme de composition (Z_a<0.3) et de diamètre (D≈100 μm) étudiées, ces incertitudes conduisent à une erreur relative sur la composition de 12 %.

4.6.8 Application de la technique

L'objectif de cette partie est de décrire le protocole utilisé pour déterminer l'évolution de la fraction volumique de gouttes d'acétone dans une configuration de jet monodisperse en combustion.
Les gouttes injectées ont un diamètre de 100 μm mesuré initialement par débimètrie, une fraction volumique d'acétone comprise entre 10 % et 30 %. Le paramètre de distance à l'injection est de l'ordre de 3.2.
La mesure de référence est effectuée lorsque la flamme est éteinte et à une position la plus proche possible de l'injecteur lorsque les gouttes sphériques sont formées. Nous supposons dans ces conditions que le diamètre des gouttes correspond à celui mesuré par débitmètrie et que la fraction volumique d'acétone correspond à celle de l'injection.
Ensuite, une fois le dispositif à l'équilibre thermique, une première exploration du jet en combustion est effectuée, de la même manière que pour la mesure du signal de référence,. L'intensité moyenne de fluorescence est mesurée à chacune des positions. La possibilité de modifier de manière continue le déphasage entre les impulsions laser et la fréquence d'arrivée des gouttes permet de positionner de manière identique, pour chaque point de mesure, l'emplacement des gouttes sur l'image. De plus le passage du faisceau à travers une fente calibrée de 200 μm permet d'assurer la reproductibilité du positionnement du jet de gouttes par rapport à l'objectif de la caméra. Une deuxième exploration du jet est ensuite réalisée afin de mesurer l'évolution de la vitesse des gouttes par LDA et le diamètre des gouttes par interferométrie (figure 4.26). La mesure de la vitesse permet de convertir la distance parcourue depuis la sortie de l'injecteur en temps. L'origine des distances (ou du temps) est fixée au point de sortie de la spire d'allumage du jet.

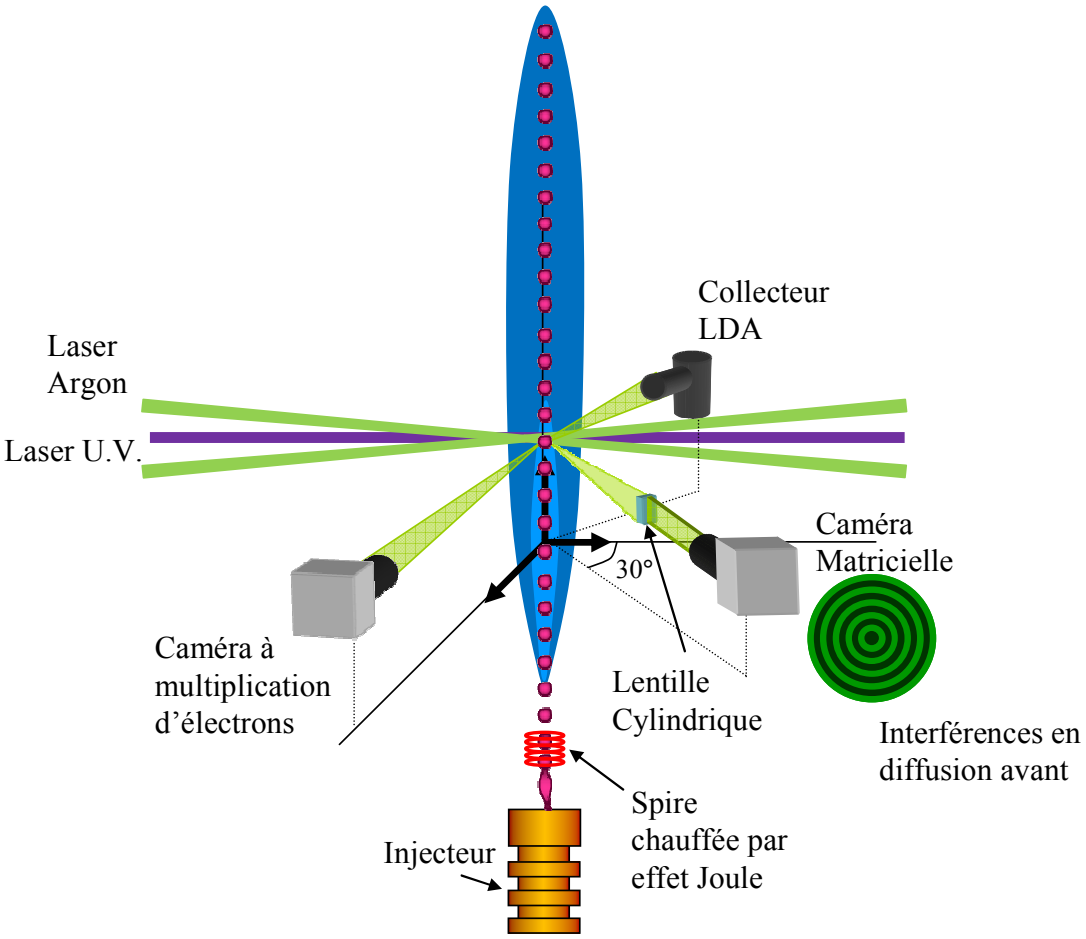


Figure 4.26 : Dispositif de mise en combustion.

La figure 4.27 présente les évolutions du diamètre et de la vitesse mesurés en fonction du temps. Pour chaque composition, et comme attendu, le diamètre décroit d'une manière significative sans influence notable de la composition. La vitesse décroit aussi mais légèrement et de façon monotone. La mesure des variations de l'intensité de fluorescence met en évidence la décroissance du nombre de molécules d'acétone en phase liquide au cours du temps (figure 4.28); et ceci pour les trois compositions initiales considérées.
La figure 4.29 présente l'évolution de la fraction volumique déterminée à l'aide des intensités de fluorescence, du diamètre mesuré et du modèle (équation 4.26). Les incertitudes, calculées à l'aide de l'équation 4.30, ont été portées sur la figure 4.29. La dispersion des résultats observée reste compatible avec ces incertitudes. La figure 4.30 présente l'évolution de la fraction molaire d'acétone normalisée par la fraction molaire d'acétone initiale en fonction du temps adimensionné par le temps caractéristique diffusif. Ces figures mettent en évidence un comportement évaporatif similaire pour les différentes fractions d'acétone étudiées. L'évaporation semble se dérouler en deux phases :

- une phase de disparition rapide de l'acétone en phase liquide, toute l'acétone présente en surface s'évapore rapidement, la pression de vapeur saturante de l'acétone étant beaucoup plus élevée que celle de l'éthanol.
- une phase où la fraction d'acétone semble stagner, la totalité de l'acétone est localisée au centre de la goutte, le processus d'évaporation étant ainsi limité par la diffusion des espèces.

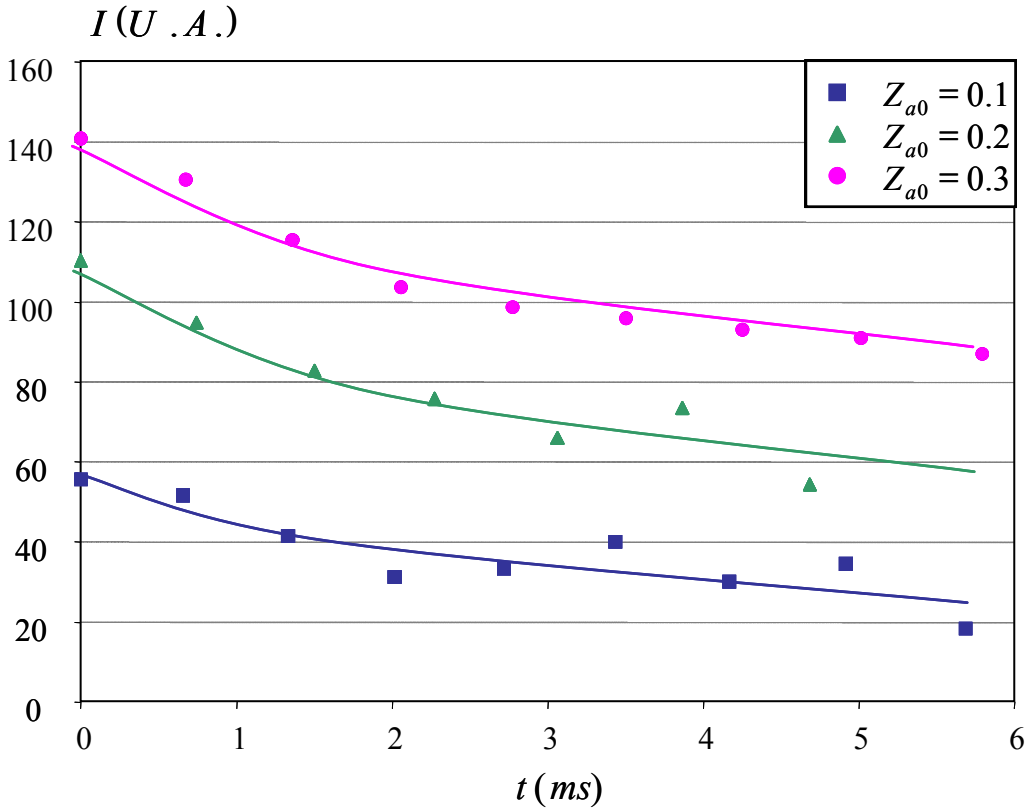


Figure 4.27: Evolution de l'intensité de fluorescence des gouttes en fonction du temps.

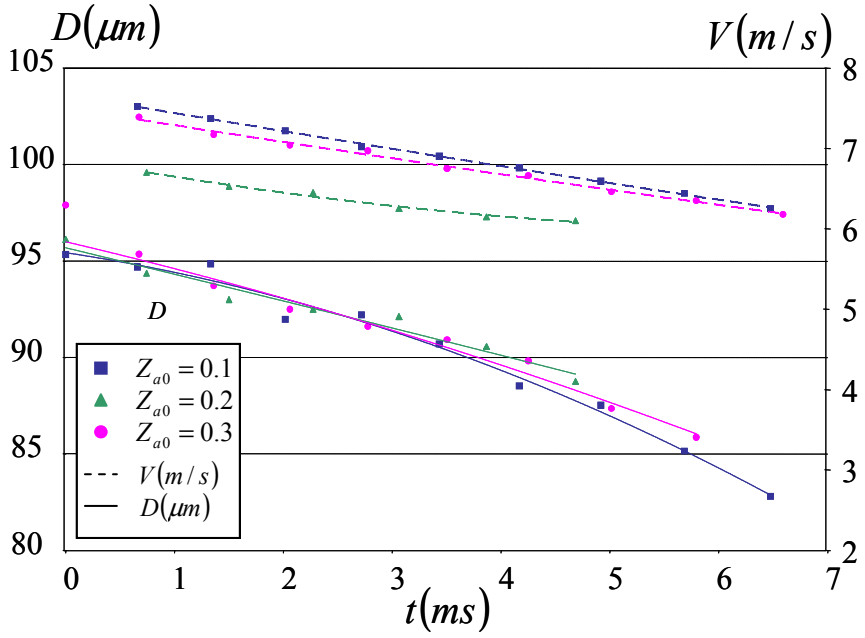


Figure 4.28: Evolution de la vitesse, et du diamètre des gouttes en fonction du temps.

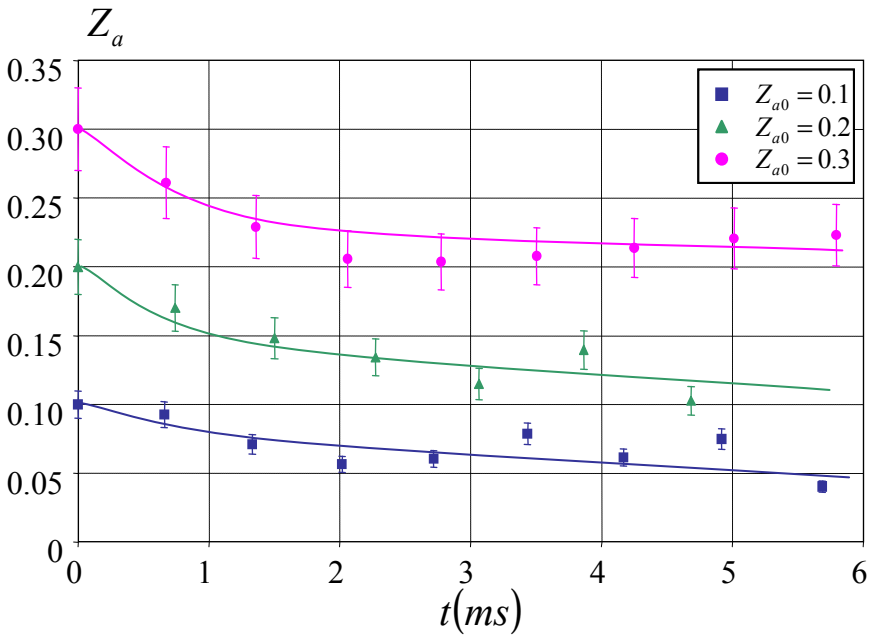


Figure 4.29: Evolution de la concentration volumique d'acétone en fonction du temps.

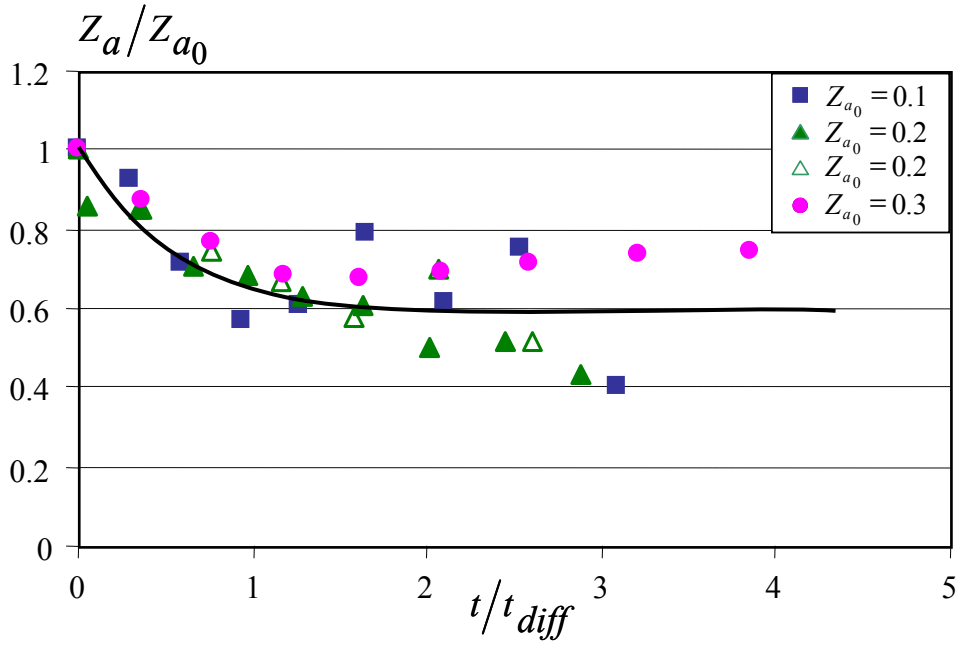


Figure 4.30: Evolution de la concentration volumique d'acétone adimensionnée en fonction du temps adimensionné.

4.7 Conclusion

Une nouvelle technique de fluorescence de l'acétone induite par un laser U.V. a permis de déterminer l'évolution de la composition de gouttes bicomposant. Cette technique, peu sensible à la température, donne une information quantitative sur la fraction molaire d'acétone avec une incertitude relative de 10%.

Les premiers tests de la technique sur des gouttes composées d'un mélange d'acétone et d'éthanol en combustion sont conformes aux attentes : la fraction du composé le plus volatile (l'acétone) disparaît rapidement dans une première phase. Dans une deuxième phase la composition, piégé par la diffusion de masse, n'évolue plus.

Cette technique sera mise en œuvre dans la suite de ce mémoire sur des gouttes bicomposant en configuration de type jet monodisperse, en évaporation forte dans un panache d'air chaud.

Chapitre 5 : Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux

Nomenclature

Symboles latins

C	paramètre de distance	*mol/l*
D	diamètre de la goutte	μm
T	température	*°C*
t	temps	*ms*
V	vitesse	*m/s*
Z	fraction volumique	

Symboles grecs

β	fonction de calibration
γ	fonction de calibration
χ	fraction molaire

Indices

a	relatif à l'acétone
e	relatif à l'éthanol
i	Relatif aux conditions initiales
j	Relatif à la bande spectrale j

Chapitre 5

5.1 Introduction

L'objectif de ce chapitre est de présenter une comparaison entre la modélisation à composants discrets et les résultats expérimentaux obtenus dans les chapitres précédents. Nous présenterons dans un premier temps une étude paramétrique montrant la sensibilité du code de calcul aux différents modèles utilisés (la diffusion limitée, effective ou vortex de Hill), l'idéalité de la phase liquide et la correction des effets d'interactions. Ensuite nous nous intéresserons à l'influence du dispositif optique sur le calcul des grandeurs moyennes (température et composition). Nous attacherons une attention particulière à la réponse du système optique aux gradients de composition et de température dans la goutte. Enfin nous présenterons et commenterons la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus par la modélisation.

5.2 Etudes préliminaires

L'objectif de cette étude préliminaire est d'examiner sur un cas test précis, traité expérimentalement, les différents paramétrages possibles de la simulation numérique en ce qui concernent :

- le choix du modèle de transfert (masse et chaleur) dans la phase liquide,
- la prise en compte de la non-idéalité du mélange dans la phase liquide,
- le choix du modèle permettant la correction des interactions longitudinales entre les gouttes.

Les conditions de simulation retenues dans le cadre de cette étude préliminaire sont issues de l'un des cas traité expérimentalement correspondant à l'injection du jet de gouttes dans un panache d'air chaud (chapitre 2, §2.2, configuration 1). Les conditions aux limites en température et en vitesse de l'air sont données au chapitre 2, §2.2. Deux configurations seront examinées pour une composition donnée et deux tailles de gouttes avec les données suivantes :

	D_i=130.1 µm	D_i=227.2 µm
C_i	7.3	3.8
Z_{ai}	0.5	0.5
T_i (°C)	25.8	21.4
V (m/s)	$-3.22 \cdot 10^{-3} t+9.89$ t (ms)	$-4.27 \cdot 10^{-2} t+8.9$ t (ms)

Tableau 5.1 : Conditions expérimentales pour les tests préliminaires du modèle.

Dans le tableau précédent C_i représente le paramètre de distance initial, Z_{ai} la fraction volumique d'acétone à l'injection, T_i la température d'injection et V l'évolution de la vitesse des gouttes en fonction du temps t. Le champ de vitesse des gouttes n'a pas été modélisé, mais mesuré expérimentalement. Ces mesures seront directement utilisées dans les simulations numériques afin de limiter les sources d'incertitudes.

5.2.1 Choix du modèle de transfert dans la phase liquide

Différents modèles de transfert de chaleur et de masse dans la phase liquide sont envisageables dans une approche à composants discrets. Ceux-ci ont été développés dans le chapitre 1, §2.3, il s'agit du modèle de conduction infinie, du modèle de diffusion limitée, du modèle de diffusion effective et du modèle à Vortex de Hill. Les simulations présentées sur la figure 4.1 montrent l'évolution de la température et de la fraction molaire moyenne d'éthanol des gouttes évoluant dans le panache d'air chaud. Ces simulations sont effectuées en utilisant la corrélation d'Atthasit (chapitre 1, §2.4) pour décrire l'influence du paramètre de distance sur l'évaporation et en prenant en compte la non idéalité du mélange en phase.
L'évolution de la température et de la composition sont plus marquées dans le cas des petites gouttes (D_i=130 μm) que dans celui des grosses gouttes (D_i=227 μm). Pour les deux diamètres testés, les différences qui existent entre les différents modèles utilisés sont similaires. Tout d'abord, le modèle de conduction effective et le modèle à Vortex de Hill donnent des résultats semblables en ce qui concernent l'évolution de la T° moyenne (Abramzon et Sirignano (1989)). De plus, les phases d'échauffement et de refroidissement induites par les conditions aérothermiques du panache d'air chaud sont plus marquées dans le cas du modèle de diffusion infinie. Le modèle de diffusion limitée laisse apparaître les variations de température les moins prononcées, puisque seuls les phénomènes de diffusion moléculaire sont pris en compte. Dans le cas du modèle de diffusion effective (ou du vortex de Hill), la prise en compte des phénomènes de transport convectif accélère les transferts de chaleur et de masse. Enfin, le modèle de diffusion infinie est celui avec la dynamique la plus marquée puisque les champs de température et de composition s'y établissent de manière instantanée. Les résultats obtenus pour la fraction molaire sont plus difficilement interprétables du fait des variations peu significatives de la fraction molaire, puisque les transports de matière sont beaucoup plus lents que ceux de la chaleur.
Le modèle retenu pour les comparaisons entre la modélisation et les expériences sera celui de la diffusion effective, puisque ce modèle intègre les différents phénomènes convectifs et diffusifs au sein de la goutte. De plus, ce modèle offre un temps de calcul nettement plus faible que le modèle impliquant le vortex de Hill.

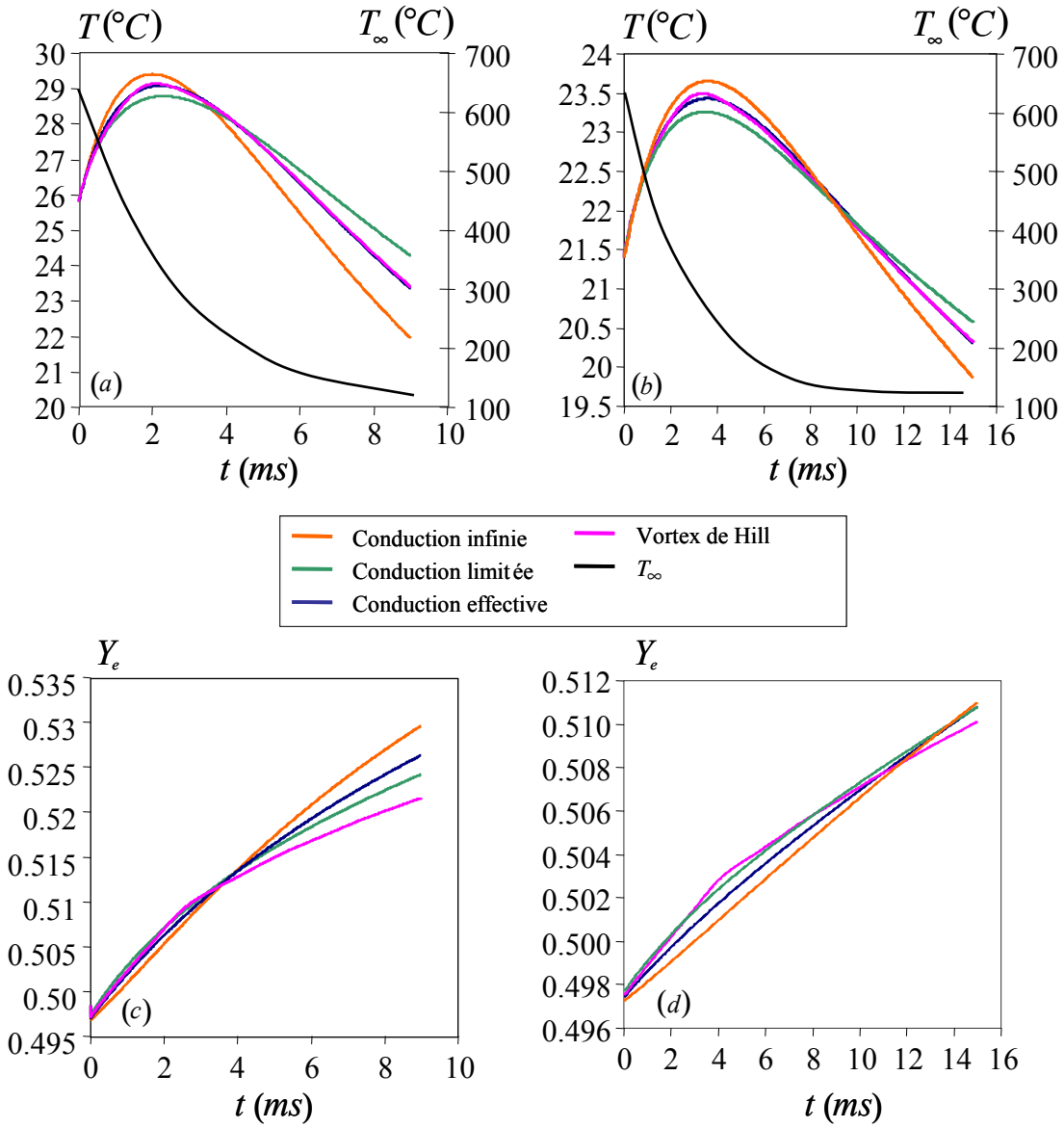


Figure 5.1 : Evolution de la température et de la composition de la goutte pour différents modèles de transfert de masse et de chaleur en phase liquide.
(T et Y_e pour D_i=130 µm (a) et (c) ; T et Y_e pour D_i=227 µm (b) et (d))

5.2.2 Influence du caractère non-idéal du mélange éthanol-acétone

Le caractère non-idéal des mélanges est caractérisé par le coefficient d'activité, intervenant dans la loi de Raoult (chapitre 1, §2.5). Dans le cas du mélange éthanol-acétone, le coefficient d'activité est une propriété d'excès. Supposer un mélange idéal revient à sous-évaluer la fraction molaire de vapeur en équilibre thermodynamique avec la phase liquide. L'étude de l'influence de l'idéalité sur le mélange a été effectuée en utilisant la corrélation d'Atthasit (chapitre 1, §2.4) pour décrire l'influence du paramètre de distance sur l'évaporation et un modèle de diffusion effective pour les transferts de chaleur et de masse en phase liquide. Les résultats obtenus pour la température et la fraction molaire des gouttes d'éthanol sont

présentés sur la figure 5.2. Il existe une différence notable entre les résultats obtenus avec le modèle du mélange idéal et celui prenant en compte la non-idéalité. Pour des gouttes de composition initiale Z_{ai}=0.5 et d'un diamètre D_i=130 µm, l'écart est de l'ordre de 3°C après 10 ms; pour des gouttes d'un diamètre D_i=230 µm, l'écart est de l'ordre de l'ordre de 2°C après 15 ms. Dans tous les cas, les températures calculées pour un mélange non-idéal sont plus faibles que celles calculées pour un mélange idéal. L'explication réside dans le fait que pour être à l'équilibre thermodynamique, les gouttes d'un mélange idéal s'évaporent moins et s'échauffent donc plus. Les calculs numériques effectués par la suite seront fait dans le cadre d'un mélange non-idéal. Toutefois nous garderons en mémoire les possibles incertitudes concernant les coefficients d'activité.

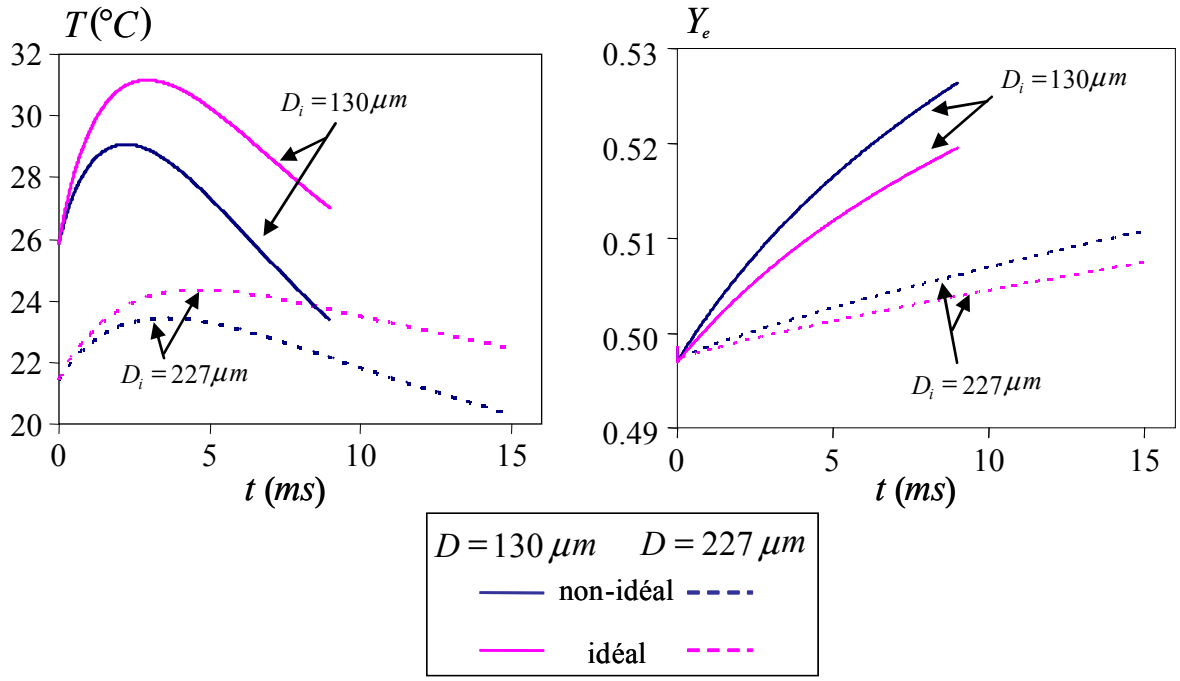


Figure 5.2 : Evolution de la température et de la fraction massique pour un mélange considéré idéal et non-idéal

5.2.3 Influence de la correction des phénomènes d'interactions

Afin de prendre en compte de l'influence des interactions entre les gouttes sur les nombres de Sherwood et de Nusselt, caractérisant les transferts de masse et de chaleur entre la phase gazeuse et la phase liquide, un paramètre η dépendant uniquement du paramètre de distance C a été introduit (éq 1.60). Les différentes corrélations sur le paramètre η_C évoquées au chapitre 1, §2.4 sont comparées afin d'examiner leur influence sur les résultats de simulation. La configuration étudiée est la même que précédemment, pour un mélange non idéal traité avec l'approche fondée sur le modèle de diffusion effective. Trois corrélations pour η_C seront testées, celle de Castanet et al. (2005), Atthasit (2003) et Virepinte (1999), les résultats sont présentées figure 5.3. Les corrélations de Castanet et al. (2005) et de Virepinte (1999), établies dans les mêmes conditions expérimentales de gouttes en combustion, donnent des résultats relativement proches pour la composition ou la température (figure 5.3). Les résultats

obtenus avec la corrélation d'Athasit (2003), déterminée dans une configuration expérimentale de forte évaporation, s'écartent un peu plus des deux autres corrélations. L'écart maximal est de l'ordre de 2°C pour la température et de 2% pour la composition, dans le cas de gouttes de petit diamètre (D_i=130 µm) et de l'ordre de 1°C pour la température et de 0.05% pour la composition, dans le cas de gouttes de diamètre plus important (D_i=227 µm). Il est difficile, à ce stade, de choisir l'une ou l'autre des corrélations. Toutefois les conditions opérationnelles ayant conduit à l'établissement de la corrélation d'Atthasit (2003) (gouttes en évaporation dans la couche limite thermique d'une plaque chauffée) semblent plus proches des conditions de le la présente étude. Nous demeurons toutefois conscients des points faibles de la corrélation d'Atthasit (2003), déterminée par des conditions aux limites males maîtrisées et non-symétriques de part et d'autre de la goutte.

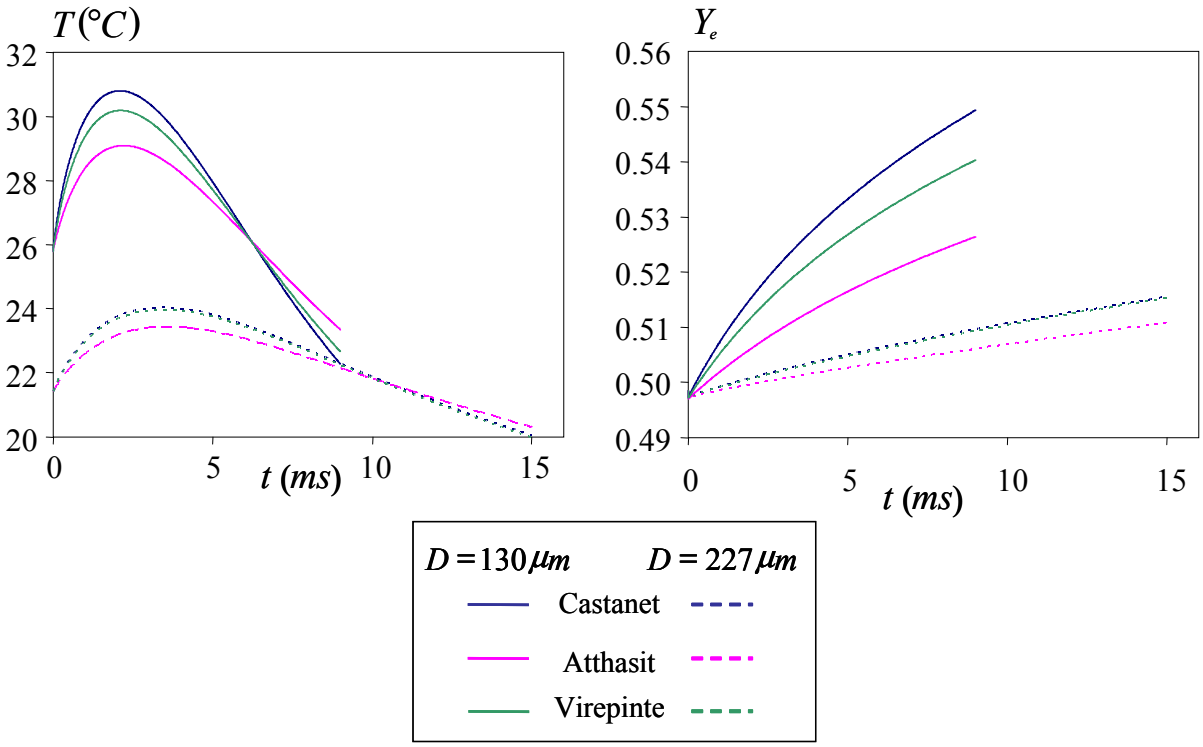


Figure 5.3 : Evolution de la température et de la fraction massique des gouttes pour différentes corrélations de η

5.3 Influence du système optique sur les mesures de fluorescence induite par laser

Les mesures effectuées par fluorescence induite par laser (température et composition) ne peuvent pas directement être comparées à la température et la composition moyennes calculées numériquement. En effet, la distribution de l'énergie laser n'est pas homogène dans la goutte. Cette hétérogénéité provient de la façon dont est distribuée l'énergie dans la goutte et du fait de la focalisation liée à la différence d'indice de réfraction entre la goutte et l'air. L'objectif de cette partie est d'évaluer l'influence du système optique sur la mesure de

température et de composition. Nous nous efforcerons donc d'établir la fonction de transfert du système optique afin d'évaluer l'effet de cette fonction sur les résultats de la simulation numérique.

5.3.1 Cas de la fluorescence induite par laser à 3 couleurs appliquée à la mesure de température

L'évaluation du champ d'excitation laser à l'intérieur de la goutte, ainsi que celle du volume de mesure seront réalisées à l'aide du code de lancé de rayons fondé sur l'optique géométrique (chapitre 4, §4). La configuration retenue est décrite au chapitre 3, §3.2 et est rappelé sur la figure 5.4. Le volume de collection et le volume excitateur sont supposés centrés l'un par rapport à l'autre.

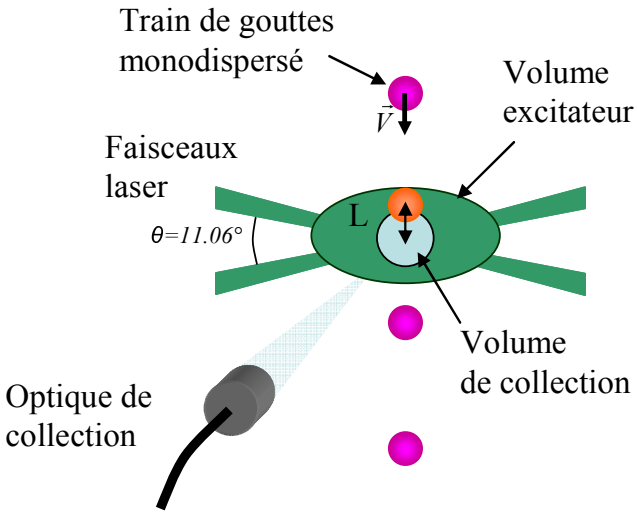


Figure 5.4 : Configuration expérimentale de la F.I.L. 3 couleurs

Les gouttes, repérées par la distance L avec le centre du volume de collection, traversent l'intersection formée par deux faisceaux laser focalisés et émettent un signal de fluorescence durant leurs traversées dans le volume de mesure. Pour différentes positions dans le jet monodisperse, la goutte se voie affecter les champs de température et de composition calculés numériquement. Le calcul numérique prend en compte le modèle du vortex de Hill pour le calcul des transferts de masse et de chaleur en phase liquide. Les autres hypothèses de calcul sont conformes au choix précédent : prises en compte de la non-idéalité en phase liquide et utilisation de la corrélation d'Atthasit pour la correction des nombres de Nusselt et de Sherwood. La figure 5.5 présente deux champs de température calculés à deux instants différents (t=2ms et t=15 ms) pour des gouttes de diamètre initial 227 µm et de composition volumique initiale en éthanol de Z_e=0.5 évoluant dans le panache d'air chaud (cas décrit précédemment).

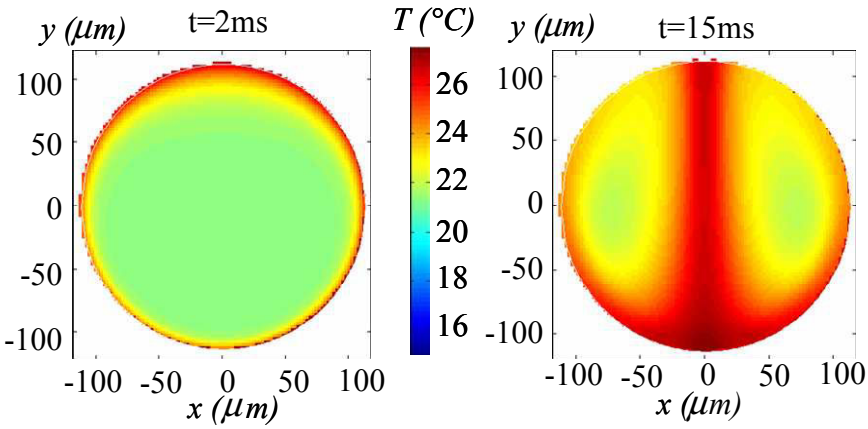


Figure 5.5 : Champ de température numérique obtenu pour le modèle à vortex de Hill

Les champs de température et de composition sont supposés rester constants pendant la traversée du volume de mesure. Les champs d'excitation laser sont calculés pour différentes positions de la goutte dans le volume de mesure, sa trajectoire restant confondue avec l'axe central du volume de mesure. Le modèle de fluorescence induite par laser est ensuite appliqué à ces champs d'excitation, en utilisant le champ de température et de composition issus du calcul numérique à chaque position dans le jet. Le champ d'intensité de fluorescence au sein de la goutte est alors déterminé pour chaque bande spectrale indicée *j* selon :

$$I_{fluo,j}(\vec{x}) \propto I(\vec{x})\gamma_j(Z_e(\vec{x}))e^{-\frac{\beta_j(Z_e(\vec{x}))}{T}} \tag{5.1}$$

$\vec{x}$ est le vecteur position d'un point de la goutte, $I_{fluo,j}(\vec{x})$ représente le champ de fluorescence recueilli sur la bande spectrale *j*, $I(\vec{x})$ le champ d'excitation laser calculé à l'aide du code de lancé de rayons, $\gamma_j(Z_e(\vec{x}))$ et $\beta_j(Z_e(\vec{x}))$ sont les fonctions obtenues par les calibrations initiales pour la bande spectrale *i*, $Z_e(\vec{x})$ et $T(\vec{x})$ représentent respectivement le champ de composition et le champ de température. Enfin, l'intensité collectée par le dispositif optique est également calculée en optique géométrique par le code de lancé de rayons. La figure 5.6 présente l'intensité collectée pour la 3ème bande spectrale à deux positions données dans le volume de mesure (*L=0 μm et L=-120 μm*), *L* représentant la distance entre le centre de la goutte et l'intersection des faisceaux laser n'ayant pas été déviés par la goutte.

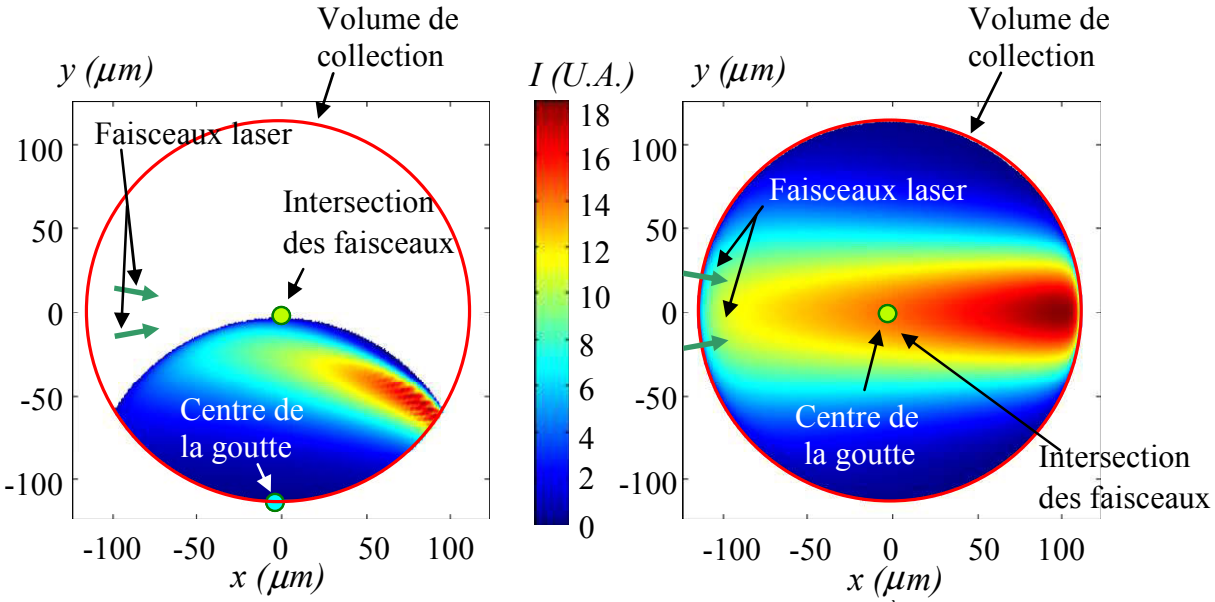


Figure 5.6 : Collection de l'intensité de fluorescence pour la 3ème bande spectrale

Compte tenu de la résolution spatiale du dispositif optique, la surface de collection est supposée circulaire de diamètre 231 µm. L'intensité I_j détectée par le photomultiplicateur correspondant à une bande spectrale donnée est obtenue par l'intégration de l'intensité collectée I_C sur la surface S du dispositif de collection :

$$I_j = \int_S I_C(\vec{x}) dS \tag{5.2}$$

L'application de la fonction de transfert du système optique à différentes positions de la goutte dans le volume de mesure permet de reconstruire le signal de fluorescence détecté par le photomultiplicateur en fonction du temps à différentes positions dans le jet de gouttes. La figure 5.7 représente les signaux obtenus pour la troisième bande spectrale à différents instants dans le jet de gouttes. Les positions relatives de l'intersection des faisceaux laser par rapport à la goutte ont été converties en temps, connaissant la vitesse locale de la goute. La diminution du signal observable entre les instants t=0 ms et t=5 ms traduit une augmentation de température alors que l'augmentation du signal entre t=5 ms et t=9 ms traduit une diminution de température. L'intégration de ce signal sur la durée de passage de la goutte dans le volume de collection pour les différentes bandes permet d'obtenir les intensités de fluorescence recueillies sur les trois bandes spectrales. La température et la composition du premier instant de simulation étant homogènes spatialement, nous utiliserons ce point comme référence afin de déterminer la température et la composition des autres points mesurés après application de la fonction de transfert du système optique.

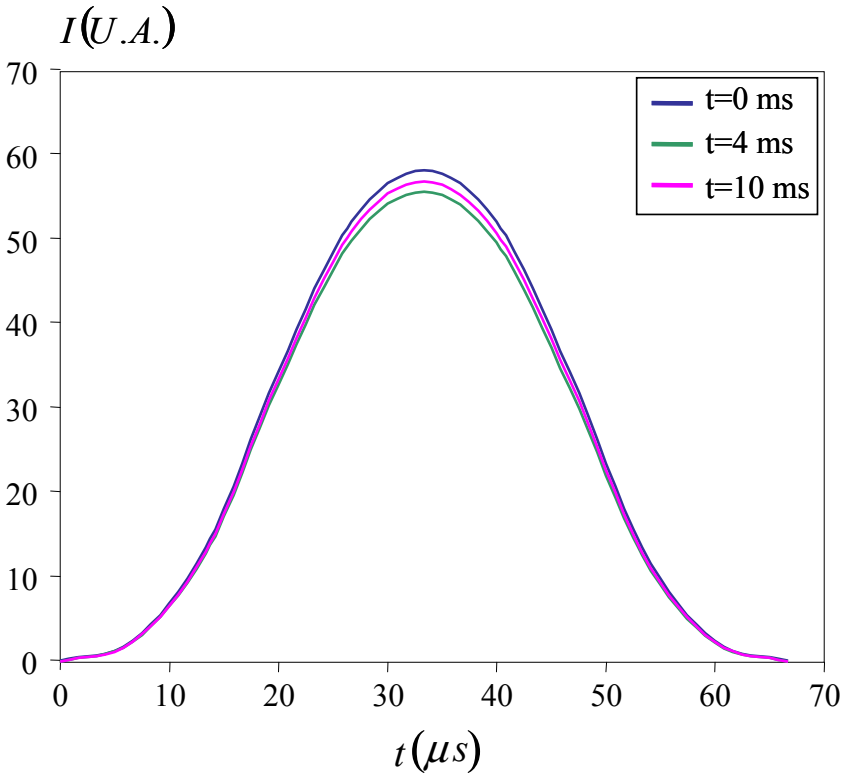


Figure 5.7 : Signaux de fluorescence calculés sur la 3ème bande spectrale, en tenant compte du dispositif optique et de la distribution de température et de composition dans la goutte, à différents instants.

L'influence de la fonction de transfert du dispositif optique a donc été testée pour les deux configurations expérimentales décrites au paragraphe précédent pour une composition initiale Z_{ai}=0.5 et des gouttes de diamètres initiaux D_i=130 µm et D_i=227 µm (figure 5.8 et 5.9). Les résultats des calculs numériques prenant en compte la fonction de transfert du systéme optique ont été comparés à la température moyenne calculée numériquement par :

$$T_{numérique} = \frac{1}{V}\int_V T(\vec{x})dV \qquad (5.3)$$

où V représente le volume total de la goutte. La différence maximale constatée est de l'ordre de 0.5°C pour des gouttes de diamètre 227 µm et de 0.2°C pour des gouttes de diamètre 130 µm. La prise en compte de la convection dans la goutte et l'inversion des gradients dans la goutte entre la phase d'échauffement et celle de refroidissement permettent d'expliquer partiellement cet écart relativement faible.

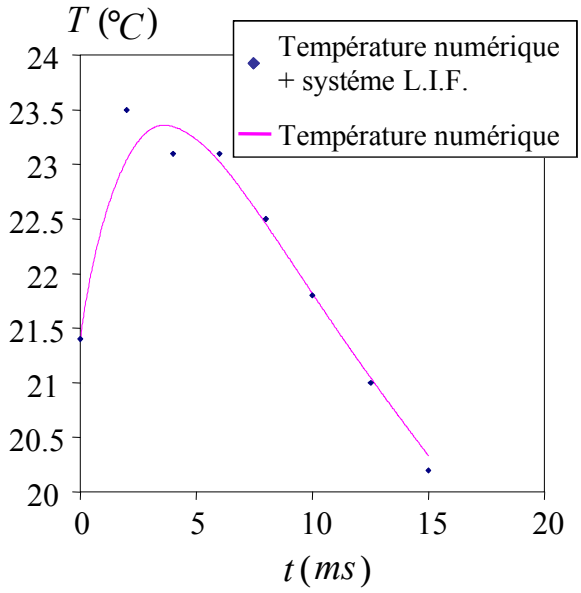


Figure 5.8 : Comparaison des températures obtenues numériquement avec et sans application de la fonction de transfert du dispositif optique pour des gouttes de diamètre D=227 µm.

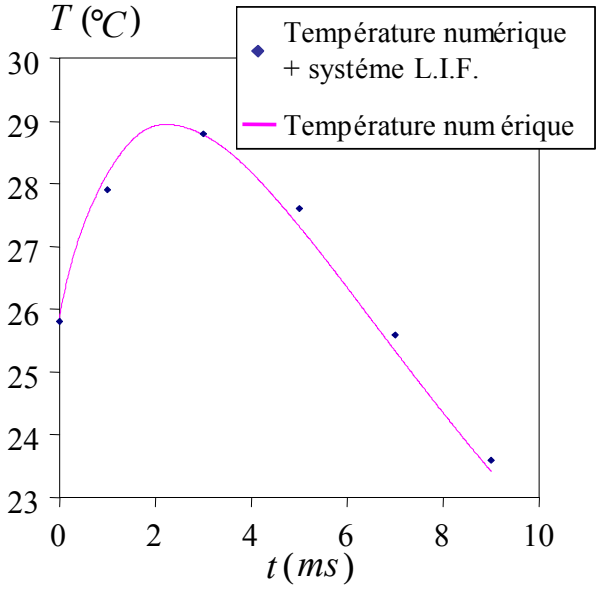


Figure 5.9 : Comparaison des températures obtenues numériquement avec et sans application de la fonction de transfert du dispositif optique pour des gouttes de diamètre D=130 µm.

Le système optique a donc peu d'influence sur la détermination de la température moyenne des gouttes. Les températures obtenues expérimentalement seront donc comparées directement à la valeur moyenne calculée numériquement.

5.3.2 Cas de la fluorescence induite de l'acétone

L'influence du dispositif optique utilisé pour les expériences de fluorescence induite par laser de l'acétone, sur la mesure de composition moyenne, a été examiné pour les paramètres résumés dans le tableau 5.2, correspondant à l'injection des gouttes dans le panache d'air chaud (configuration 2 décrite au chapitre 2, §2.2)

D_i (µm)	119
C_i	4.78
Z_{ai}	0.246
T_i (°C)	40
V (m/s)	-0.1842•t+6.66 t (ms)

Tableau 5.2 : Conditions expérimentales pour l'effet de la fonction de transfert du dispositif optique dans le cas de la fluorescence de l'acétone .

Dans ce cas, la configuration optique est plus simple, puisque le signal collecté ne correspond plus à la traversée du volume de collection pour les gouttes. La goutte est figée par la brève impulsion laser d'une durée de 9 ns (figure 5.10).

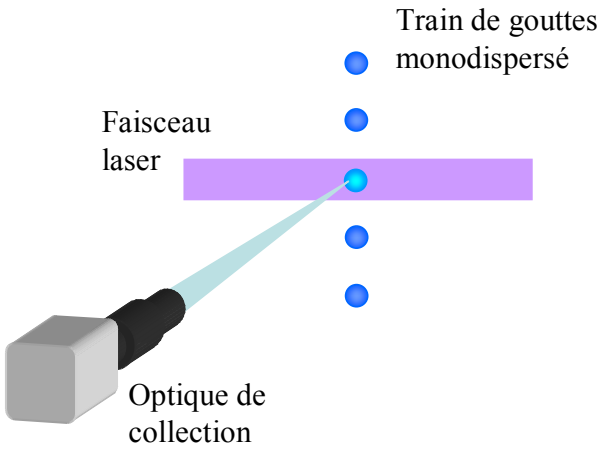


Figure 5.10 : Configuration expérimentale correspondant à l'excitation impulsionelle d'un train de goutte.

De la même manière, les champs de température et de composition sont calculés numériquement. Le modèle de fluorescence permet de déterminer le champ d'émission de fluorescence de la goutte suivant la relation :

$$I_{fluo,i}(\vec{x}) \propto \frac{\chi_a(\vec{x})}{\mu\chi_a(\vec{x})+1} E(\vec{x}) \tag{5.4}$$

où $E(\vec{x})$ représente le champ d'excitation laser calculé en tenant compte de l'absorption locale due à l'acétone et μ est la constante d'étalonnage définie au chapitre 4, §2. La figure 5.11 présente deux cartes équatoriales du champ de composition à deux instants différents. Les cartes d'intensité de fluorescence recueillie pour ces deux instants sont présentées sur la figure 5.12. Ces cartes sont calculées en sommant le champ d'intensité sur toute la profondeur de la goutte en utilisant l'optique géométrique. La carte à t=1.52 ms est uniforme, puisque elle correspond à la condition initiale. La carte à t=5.5 ms présente un gradient établit avec un appauvrissement d'acétone au centre de la goutte. Ces champs d'intensité collectée $I_C(\vec{x})$ sont ensuite intégrés sur la surface S du capteur CCD, ce qui permet de reconstruire l'intensité de fluorescence totale I collectée par la caméra :

$$I = \int_S I_C(\vec{x}) dS \tag{5.5}$$

Les cartes d'intensité de fluorescence correspondant aux champs de composition calculée numériquement (figure 5.12) mettent en évidence l'effet des gradients de concentration dans la goutte : en particulier à l'instant t=6.5 ms, le signal de fluorescence est moins intense au centre, là où la concentration en acétone est plus faible.

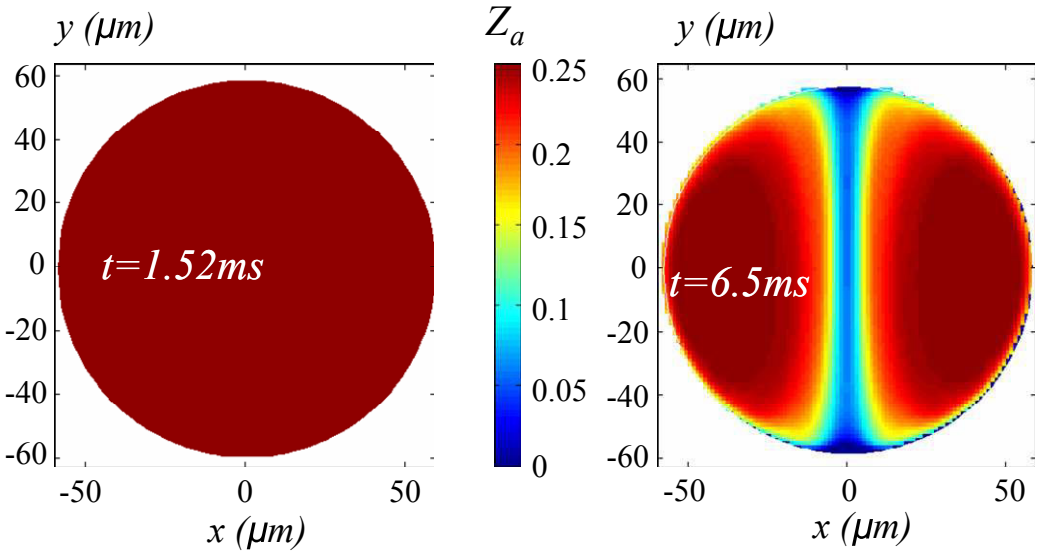


Figure 5.11 : Champs de concentration de l'acétone calculés numériquement dans la goutte, obtenus pour le modèle à vortex de Hill

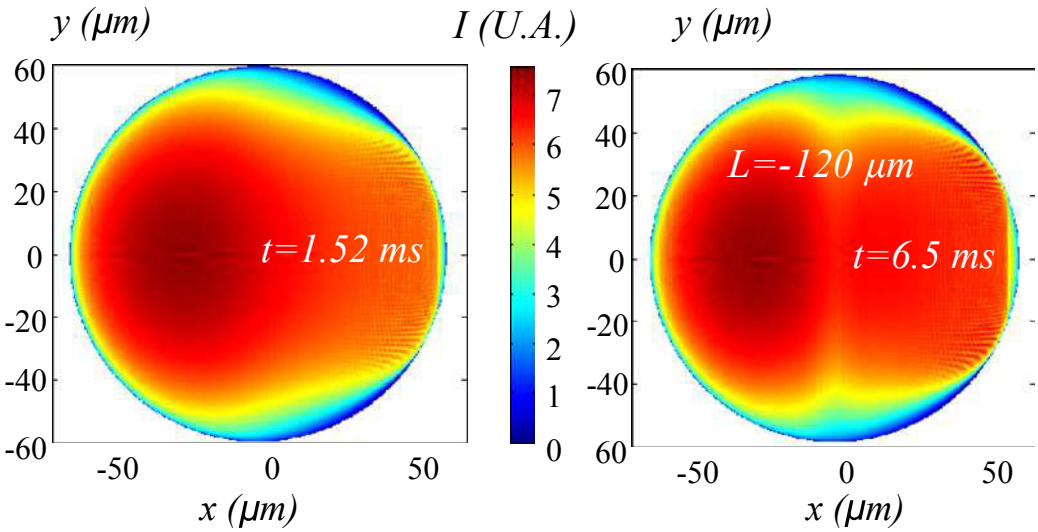


Figure 5.12 : Intensité de fluorescence de l'acétone collectée par la caméra CCD, compte tenu du champ de concentration de l'acétone calculé numériquement.

L'utilisation du modèle de fluorescence décrit par l'équation (4.7) permet de déterminer la composition de la goutte à l'aide de l'intensité de fluorescence recueillie théoriquement par la caméra, provenant de la prise en compte du dispositif optique et de la distribution d'acétone dans la goutte calculée numériquement. Cette composition est ensuite comparée à la moyenne numérique au sens classique du terme :

$$\chi_a = \frac{1}{V}\int_V \chi_a(\vec{x})dV \tag{5.6}$$

où V représente le volume total de la goutte. Cette comparaison est présentée figure 5.13 : il semblerait ainsi que le dispositif optique de mesure sous estime la variation de composition moyenne en accordant un poids plus important à la région centrale de la goutte. L'influence du dispositif optique sur la mesure de la composition moyenne a une influence de l'ordre de 5%. Cet ordre de grandeur est donné pour une configuration où les vortex sont établis et reste inférieur à l'incertitude expérimentale de l'ordre de 10%.

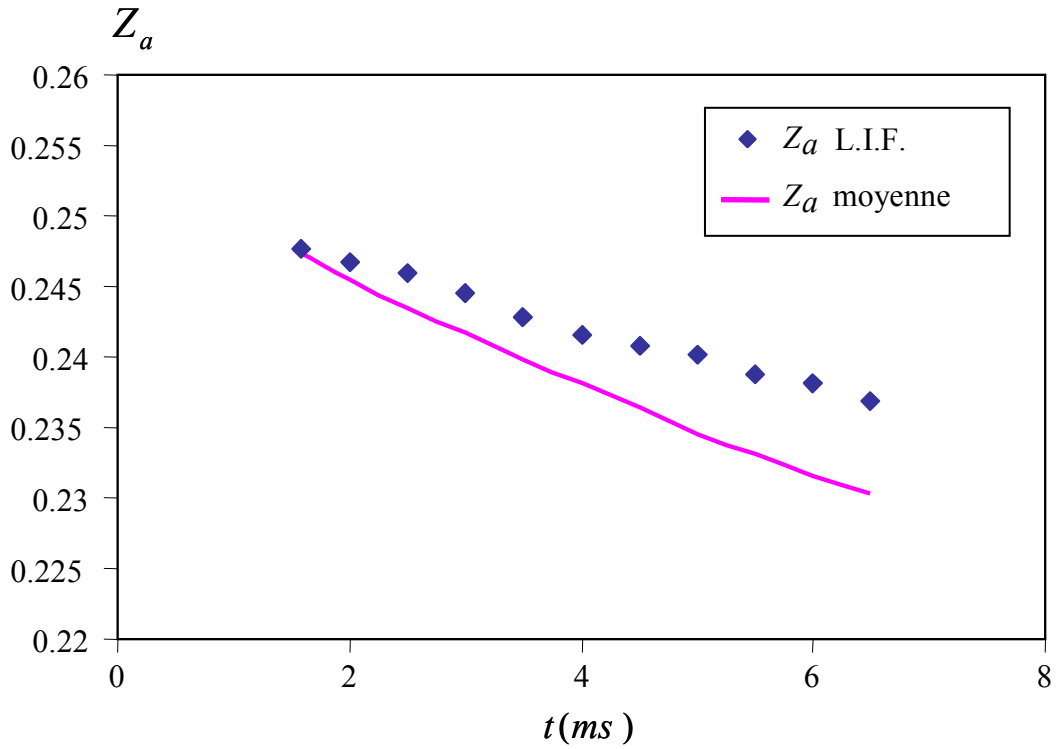


Figure 5.13 : Comparaison des compositions obtenues numériquement avec et sans application de la fonction de transfert du dispositif optique.

5.4 Comparaison des résultats expérimentaux aux calculs numériques

5.4.1 Evolution de la température des gouttes en évaporation dans l'air à température ambiante

Deux séries de mesures ont été effectuées, correspondant à des conditions aérothermiques différentes à l'injection. Les conditions à l'injection sont résumées dans les tableaux 5.3 et 5.4. Les compositions étant différentes, il en est de même pour les propriétés physico-chimiques (tension superficielle, viscosité, masse volumique …). Ainsi il est difficile de reproduire pour chacune des compositions des conditions d'injection exactement identiques.

	Z_{ai}=0	Z_{ai}=0.25	Z_{ai}=0.5	Z_{ai}=0.75	Z_{ai}=1
C_i	7.13	7.53	7.43	8.77	7.69
D_i (µm)	140.83	137.09	142.67	133.83	143.37
T_i (°C)	35	38.2	37.2	35	35.5
T_∞ (°C)	22	21.6	20.8	21.1	21.5
V (m/s)	-0.34•t+12.31 t (ms)	-0.31•t+12.3 t (ms)	-0.4•t+12.7 t (ms)	-0.37•t+12.75 t (ms)	-0.32•t+12.92 t (ms)

Tableau 5.3 : Série I, gouttes en évaporation dans l'air ambiante

	Z_{ai}=0.25	Z_{ai}=0.5	Z_{ai}=0.75	Z_{ai}=1
C_i	3.27	3.56	3.64	3.69
D_i (µm)	229.26	223.87	213.7	228.76
T_i (°C)	38.95	45.2	42	36.2
T_∞ (°C)	22.9	21.2	23.5	22
V (m/s)	*-0.065•t +8.616* t (ms)	*-0.09•t+8.56* t (ms)	*-0.06•t+8.6* t (ms)	*-0.059•t+8.97* t (ms)

Tableau 5.4 : Série II, gouttes en évaporation dans l'air ambiante

L'évolution temporelle de la température des gouttes est présentée figure 5.14 et 5.15 pour les séries de mesures I et II respectivement. La distance parcourue par les gouttes depuis l'injecteur est convertie en temps à l'aide des mesures de vitesses effectuées sur les gouttes par vélocimétrie laser Doppler. L'origine des temps est fixée à la sortie de l'injecteur. L'évolution du diamètre n'a pas été mesurée et seule la valeur du diamètre initiale a été mesurée par débitmètrie. La simulation numérique est initiée lorsque les gouttes sphériques sont formées, c'est-à-dire à une température T_i indiquée dans les tableaux 5.3 et 5.4 et mesurée par fluorescence induite par laser à 3 couleurs.

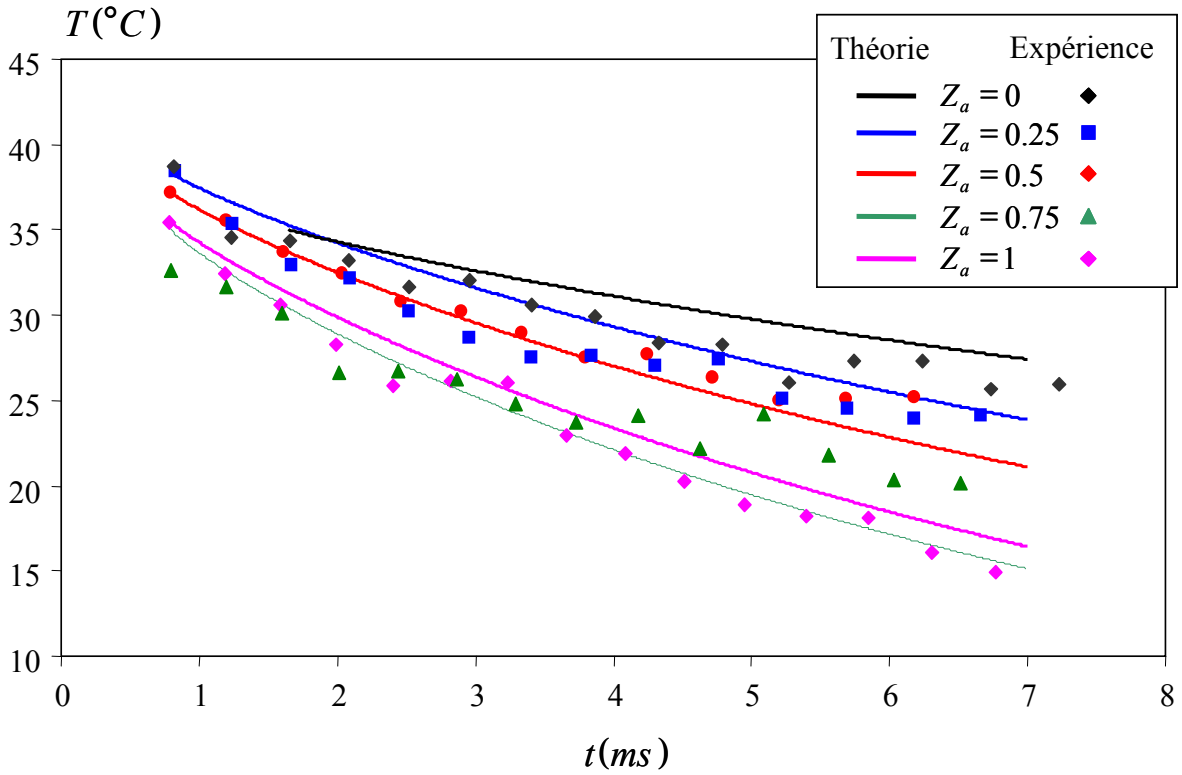


Figure 5.14 : Evolution de la température pour des gouttes en évaporation, pour les gouttes correspondant aux conditions I.

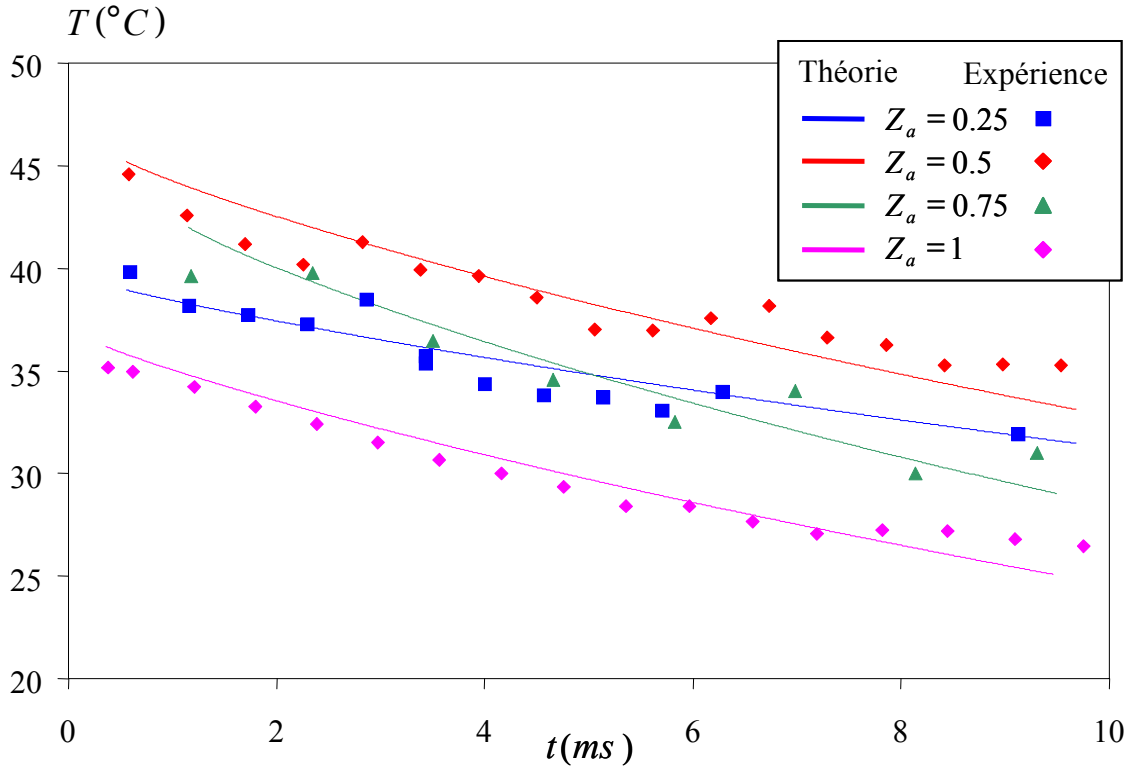


Figure 5.15 : Evolution de la température pour des gouttes en évaporation, pour les gouttes correspondant aux conditions II.

Dans les deux cas de figures, on constate un refroidissement des gouttes dû à l'évaporation. Pour les gouttes de la série I, le refroidissement est de l'ordre d'une quinzaine de degrés et est plus important que celui observé pour la série II, de l'ordre d'une dizaine de degrés. L'intensité du refroidissement des gouttes est corrélée au diamètre, celui-ci étant d'autant plus important que le diamètre des gouttes est petit. Les deux séries I et II mettent également en évidence l'influence de la composition : plus la fraction du composé le plus volatil est importante, plus le refroidissement est marqué. Cette remarque est cependant à nuancer pour les fortes fractions d'acétone, compte tenue de la non-idéalité du mélange en phase liquide. En effet la non-idéalité correspond à une propriété d'excès. Comme le montre la figure 5.13, le mélange composé de 75% d'acétone se refroidit d'une manière similaire à l'acétone pure, tendance particulièrement bien capturée par l'expérience. D'une manière générale les résultats de la simulation numérique sont en bon accord avec les résultats expérimentaux, les écarts observés étant de l'ordre de l'incertitude expérimentale.

5.4.2 Evolution de la température des gouttes en forte évaporation dans le panache d'air chaud

Deux configurations de panaches d'air chaud, décrites au chapitre 2, §2.2 ont été étudiées.

Evaporation dans le panache d'air chaud : configuration 1

Les propriétés aérothermiques du panache d'air chaud (configuration 1) sont récapitulées au chapitre 2, §2.2 et les conditions d'injection correspondant à ces deux séries de mesures sont données dans les tableaux 5.5 et 5.6.

	Z_{ai}=0	Z_{ai}=0.25	Z_{ai}=0.5	Z_{ai}=0.75	Z_{ai}=1
C_i	6.72	7.97	7.33	8.18	7.57
D_i (µm)	129.98	131.6	130.11	133.3	126.4
T_i (°C)	25.2	27	25.8	26.5	27
V (m/s)	*-0,24*•t+*8,54* t (ms)	*-0,29*•t+*10,07* t (ms)	*-0,330*•t+*9,91* t (ms)	*-0,4299*•t +*9,79* t (ms)	*-0,284*•t+*9,91* t (ms)

Tableau 5.5 : Série III, gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration I).

	Z_{ai}=0	Z_{ai}=0.25	Z_{ai}=0.5	Z_{ai}=0.75	Z_{ai}=1
C_i	3.97	3.7	3.82	3.54	3.53
D_i (µm)	237.24	236	227.2	226.85	232.38
T_i (°C)	21	21.5	21	21	21
V (m/s)	*-0.095•t+9.07* t (ms)	*-0.07•t+8.83* t (ms)	*-0.042•t+8.9* t (ms)	*-0,04*•t+*8,7922* t (ms)	*-0.056•t+8.576* t (ms)

Tableau 5.6 : Série IV, gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration I).

Les résultats expérimentaux et les résultats numériques associés sont présentés sur la figure 5.16 pour la série III (D_i=130 µm) et figure 5.17 pour la série IV (D_i=230 µm).

Pour les deux séries de mesures, l'évolution de la température présente deux phases : une première phase d'échauffement, où la température des gouttes augmente : lors de cette phase, le flux de chaleur échangé par convection forcée avec la phase gazeuse domine le flux prélevé par l'évaporation. Cette phase d'échauffement est suivie par un maximum de température, puis d'une phase de refroidissement plus ou moins marquée. Dans cette deuxième phase, le flux prélevé par l'évaporation des gouttes prédomine, ce qui explique le refroidissement.
De plus, on peut noter que les différences de température sont plus marquées pour les gouttes de plus petit diamètre (D_i=130 µm) possédant une inertie thermique plus faible.
On peut également remarquer que l'accroissement de la fraction du composé le moins volatil (éthanol) conduit à des phases d'échauffement plus prononcées, alors que celles-ci sont quasiment inexistantes pour l'acétone pure.
Pour les gouttes de petit diamètre, l'accord entre la simulation et l'expérience est correct pour l'acétone pure et la compostion Z_{ai}=0.5. L'écart observé pour la composition Z_{ai}=0.75 est quant à lui assez difficile à expliquer, puisque cette composition est intermédiaire entre Z_{ai}=1 et Z_{ai}=0.5 pour lesquelles l'accord entre la simulation et l'expérience est bon. Dans le cas de l'éthanol pur, la simulation numérique surestime nettement l'expérience.
Dans le cas des gouttes de plus gros diamètre, les différences de température sont nettement moins marquées, notamment dans la phase d'échauffement. On note néanmoins un accord correct entre la simulation et l'expérience pour les compositions Z_{ai}=1, Z_{ai}=0.75, Z_{ai}=0.25 et Z_{ai}=0, le désaccord assez flagrant pour la composition Z_{ai}=0.5 restant difficile à expliquer. Notons toutefois que les écarts constatés sont de l'ordre de l'incertitude expérimentale.

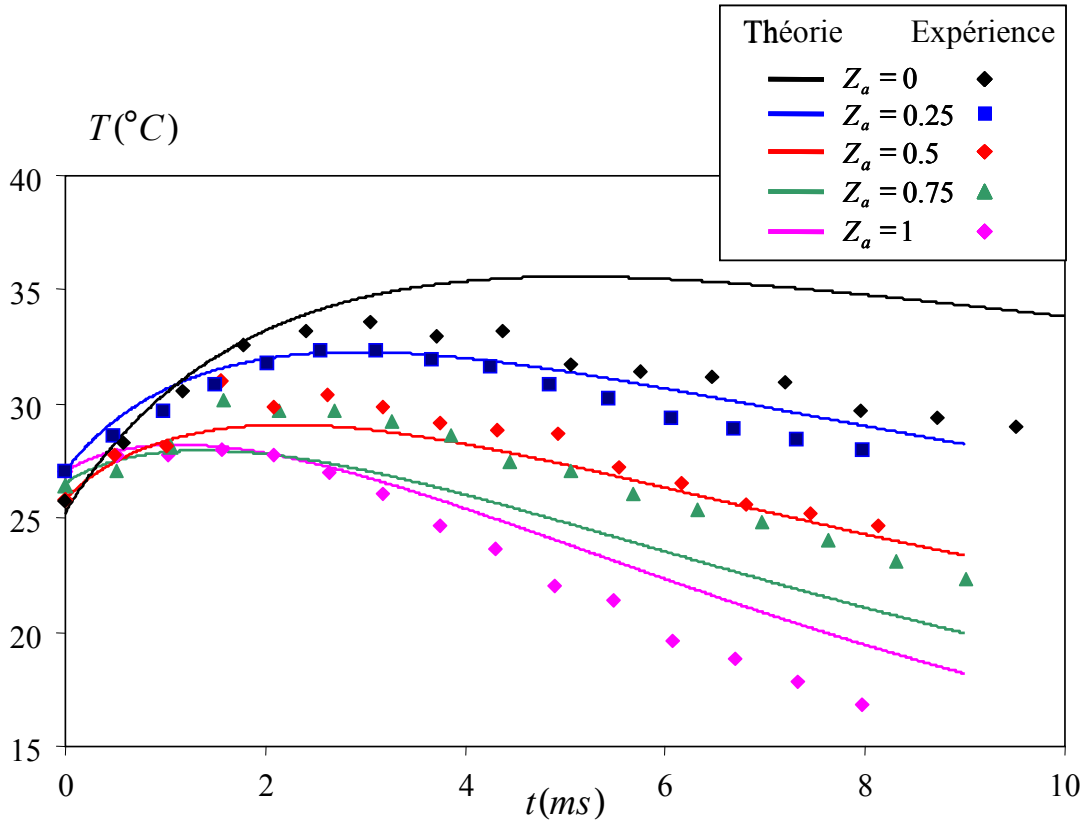


Figure 5.16 : Evolution de la température pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 1), pour les gouttes de la série III.

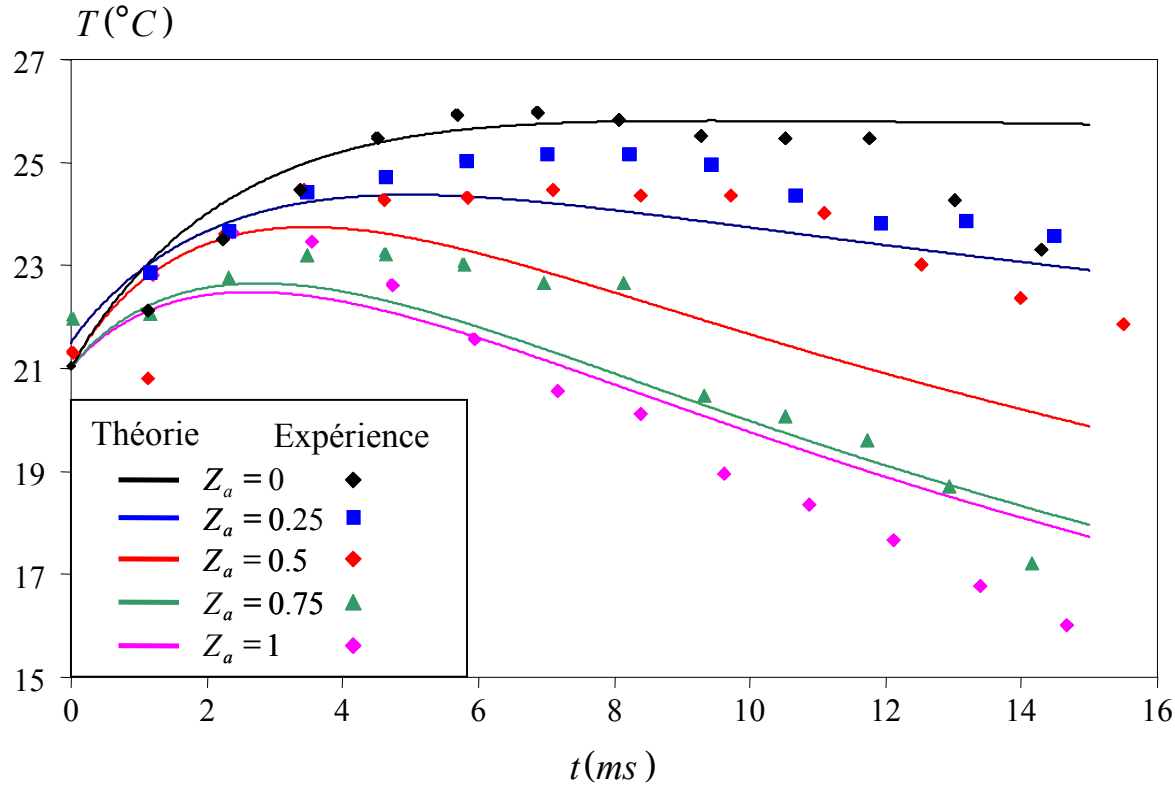


Figure 5.17 Evolution de la température pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 1), pour les gouttes de la série IV.

Evaporation dans le panache d'air chaud : configuration 2

Rappelons que cette deuxième configuration du panache d'air chaud offre des températures élevées sur une plus grande distance. Comme dans le cas de figure précédent, deux séries d'expériences correspondant à deux diamètres de gouttes bien différenciées ont été réalisées dans le panache d'air chaud (configuration 2). Les propriétés aérothermiques du panache d'air chaud (configuration 2 sont récapitulées au chapitre 2, §2.2.

Les conditions d'injection correspondant à ces séries de mesure sont résumées dans les tableaux 5.7 et 5.8.

	Z_{ai}=0	Z_{ai}=0.25	Z_{ai}=0.5	Z_{ai}=0.75	Z_{ai}=1
C_i	4.88	4.68	4.77	4.94	5.17
D_i (µm)	120	118.60	117.19	116.05	117.48
T_i (°C)	29.2	27.9	28.6	28.6	28.3
V (m/s)	*-0,227*•t+*9,1* t (ms)	*-0,24*•t+*9,08* t (ms)	*-0,23*•t+*9,43* t (ms)	*-0,24*•t+*9,34* t (ms)	*-0,24*•t+*9,86* t (ms)

Tableau 5.7 : Série V, gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration II).

	Z_{ai}=0	Z_{ai}=0.25	Z_{ai}=0.5	Z_{ai}=0.75	Z_{ai}=1
C_i	2	1.96	1.93	191.79	20398.
D_i (µm)	198.31	191.46	197.79	2.05	1.94
T_i (°C)	24	22.2	22.8	22.3	22.4
V (m/s)	*-0,064*•t+*7,54* t (ms)	*-0.053*•*t*+*7.3* t (ms)	*-0,06*•t+*6,9* t (ms)	*-0,05*•t+*7,6* t (ms)	*-0,04*•t+*7,78* t (ms)

Tableau 5.8 : Série VI, gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration II).

Dans le cas des gouttes de plus petit diamètre (D_i=120 µm), la simulation (figure 5.18) semble sous estimer les expériences de quelques degrés : un écart maximal de 3°C est observé dans le cas de l'acétone pure et pour la composition Z_a=0.75. Toutefois, la simulation prédit des comportements très proches pour ces deux compositions, tendance bien capturée expérimentalement. On peut noter également que la simulation numérique sous-prédit la température des gouttes pour la composition Z_a=0.5 avec un désaccord pouvant atteindre 3°C, alors que l'accord avec la composition Z_a=0.75 est correct. En revanche la simulation sous prédit l'évolution constatée, expérimentalement pour l'éthanol pur, ce qui semble être une tendance générale pour les gouttes d'éthanol pur.

L'adéquation entre l'expérience et la simulation semble meilleure pour les gouttes de plus gros diamètre (figure 5.19). Comme dans les cas précédents, la dynamique des températures est moins marquée pour les gouttes de plus gros diamètre. L'adéquation est excellente pour l'éthanol pur et les tendances générales correspondant aux autres compositions sont assez bien capturées.

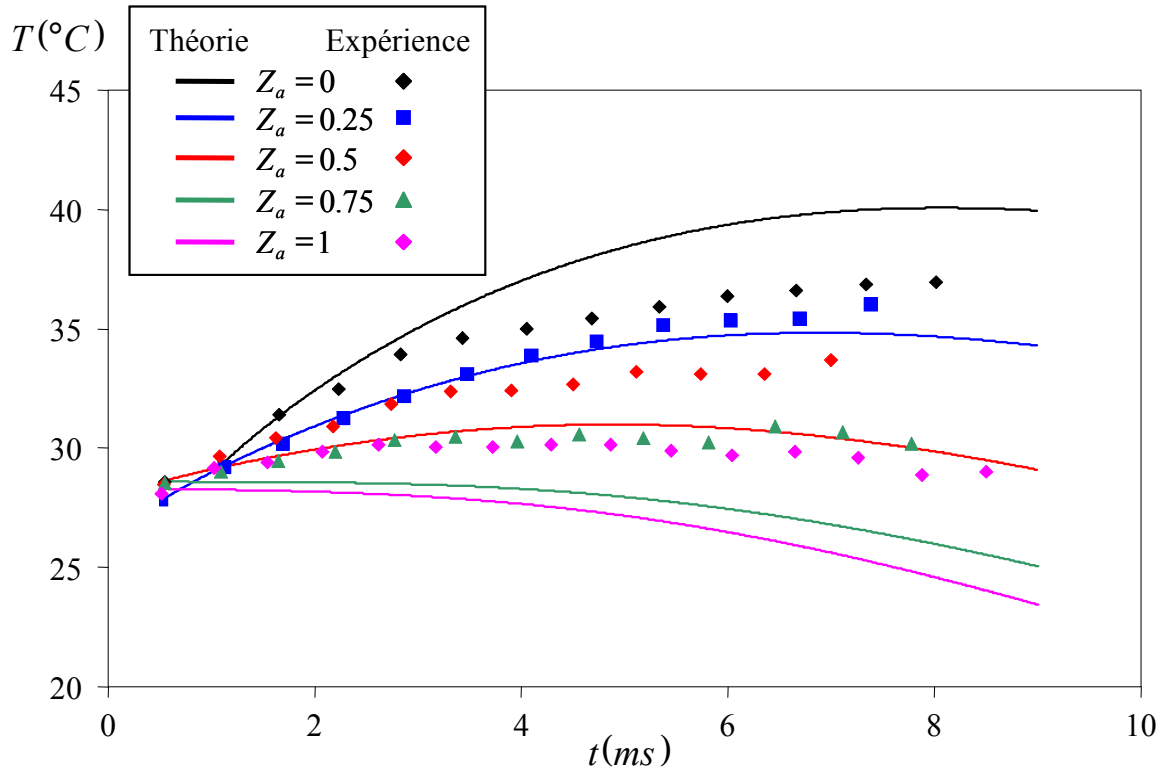


Figure 5.18 : Evolution de la température pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 2), pour les gouttes de la série V.

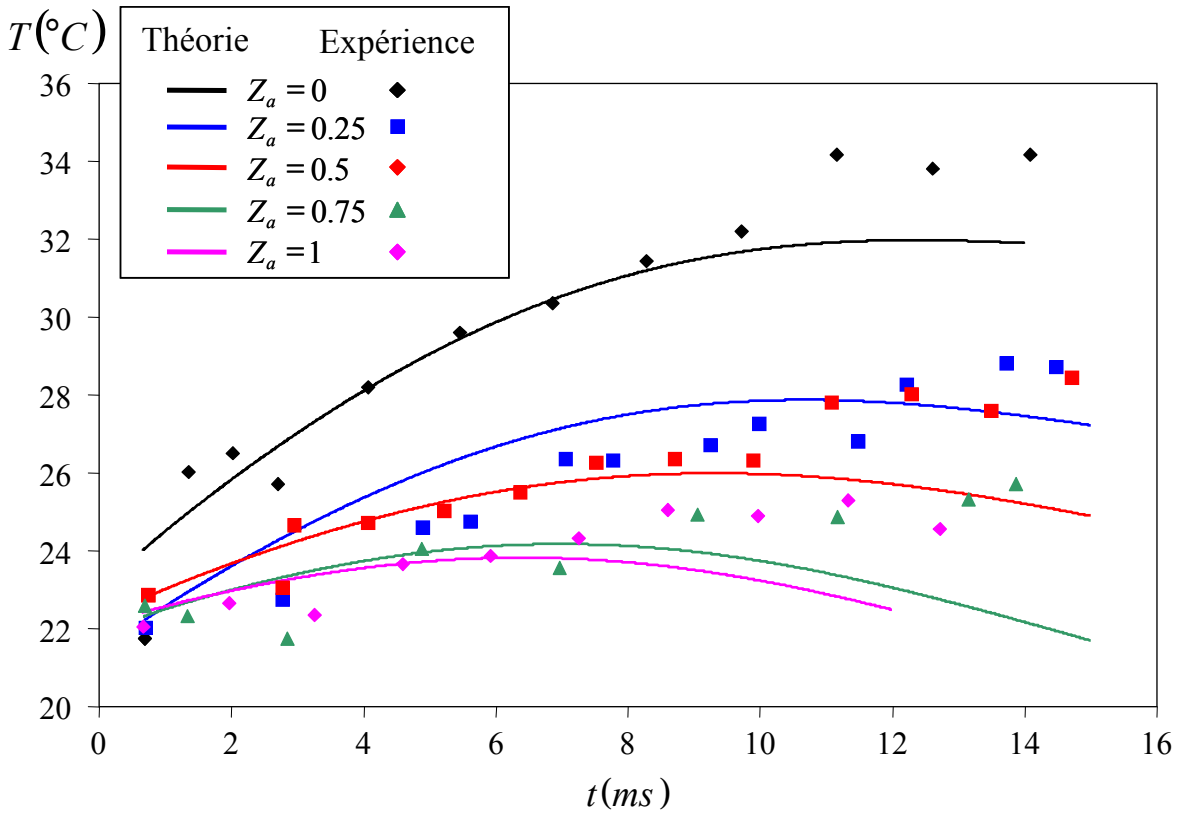


Figure 5.19 : Evolution de la température pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 2), pour les gouttes de la série VI.

5.4.3 Evolution de la température et de la composition de gouttes en forte évaporation dans le panache d'air chaud

La température et la composition des gouttes ont été mesurées sur cette configuration. Rappelons que la technique de mesure de la composition par fluorescence induite par laser de l'acétone nécessite l'utilisation de diamètres de gouttes modérés (de l'ordre de 100 µm) et des concentrations en acétone relativement faibles, typiquement inférieures à $Z_{ai}=0.3$. Des mesures d'évolution du diamètre des gouttes, nécessaires à la mesure de composition ont également été réalisées. Enfin la température des gouttes a été mesurée par fluorescence induite par laser à trois couleurs. Une série d'expériences a donc été effectuée sur le panache d'air chaud (configuration 2) dont les propriétés aérothermiques sont récapitulées au chapitre 2, §2.2. Les mesures ont été réalisées pour trois compositions différentes et des diamètres de goutte de l'ordre de 120 µm. Le tableau 5.9 résume les conditions d'injection.

	Z_{ai}=0.1	Z_{ai}=0.2	Z_{ai}=0.3
C_i	3.8	3.19	3.48
D_i (µm)	118	116	119.5
T_i (°C)	36.9	34.8	36.1
V (m/s)	-0,12•t+4,9 t (ms)	-0,11•t+4,6 t (ms)	-0,11•t+4,9 t (ms)

Tableau 5.9 : Série VII, gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration II)

Le diamètre des gouttes (figure 5.20), quelque soit la composition envisagée (Z_{ai}=0.1, Z_{ai}=0.2 et Z_{ai}=0.3), présente une évolution relativement modérée, de l'ordre de 2.5 µm sur 10 ms. La simulation numérique est initiée au premier point de mesure en utilisant les conditions aérothermiques mesurées en ce point. L'origine des temps est prise au point d'injection des gouttes dans le panache d'air chaud. En dépit de la dispersion des mesures, de l'ordre de ±0.5 µm, la simulation numérique semble bien rendre compte des données expérimentales.
L'évolution de la composition (figure 5.21) mesurée est très faible pour les différentes compositions initiales envisagées. Cette variation est de l'ordre de 3% pour le mélange de composition initiale $Z_{ai}=0.3$, de l'ordre de 2% pour le mélange de composition initiale $Z_{ai}=0.2$ et de l'ordre de 1% pour le mélange de composition initiale $Z_{ai}=0.1$. La simulation numérique est en bon accord avec les tendances observées expérimentalement. L'évolution de la température mesurée est mal restituée par la simulation numérique (figure 5.22), puisque l'échauffement observé expérimentalement est notablement supérieur au calcul pour les compositions initiales $Z_{ai}=0.1$, $Z_{ai}=0.2$ et $Z_{ai}=0.3$. Toutefois les échauffements calculés pour les compostions $Z_{ai}=0.1$ et $Z_{ai}=0.2$ sont relativement similaires ce qui est également observé expérimentalement. Pour la composition $Z_{ai}=0.3$, la tendance calculée s'écarte de manière importante de la tendance expérimentale.
Les différences constatées sur l'évolution de la T° des gouttes sont en général assez difficiles à interpréter. Afin de mieux cerner l'interprétation de ces résultats, les simulations correspondant au mélange idéal en phase liquide ont également été reportées sur la figure 5.22. Mais il demeure difficile de remettre en question les corrections introduites. Néanmoins, nous pouvons noter que les hypothèses d'idéalité nous rapprochent d'avantage des tendances constatées expérimentalement. Nous écarterons donc l'hypothèse selon laquelle la correction de la non-idéalité n'est pas valable pour la gamme de température de la phase liquide ainsi testée. La prise en compte de la non-idéalité induit une différence notable pour le cas $Z_{ai}=0.3$. Notons que ces expériences ont été menées à des températures d'injection assez élevée, (>35°C). Pour cette gamme de température, la simulation montre une tendance à l'établissement rapide d'un équilibre thermique, ce qui n'est pas correctement restitué par l'expérience. Au voisinage d'un tel équilibre, la simulation devient très sensible à l'évaluation des flux de chaleur liés à la convection forcée et à l'évaporation, ce qui peut conduire à des erreurs importantes.

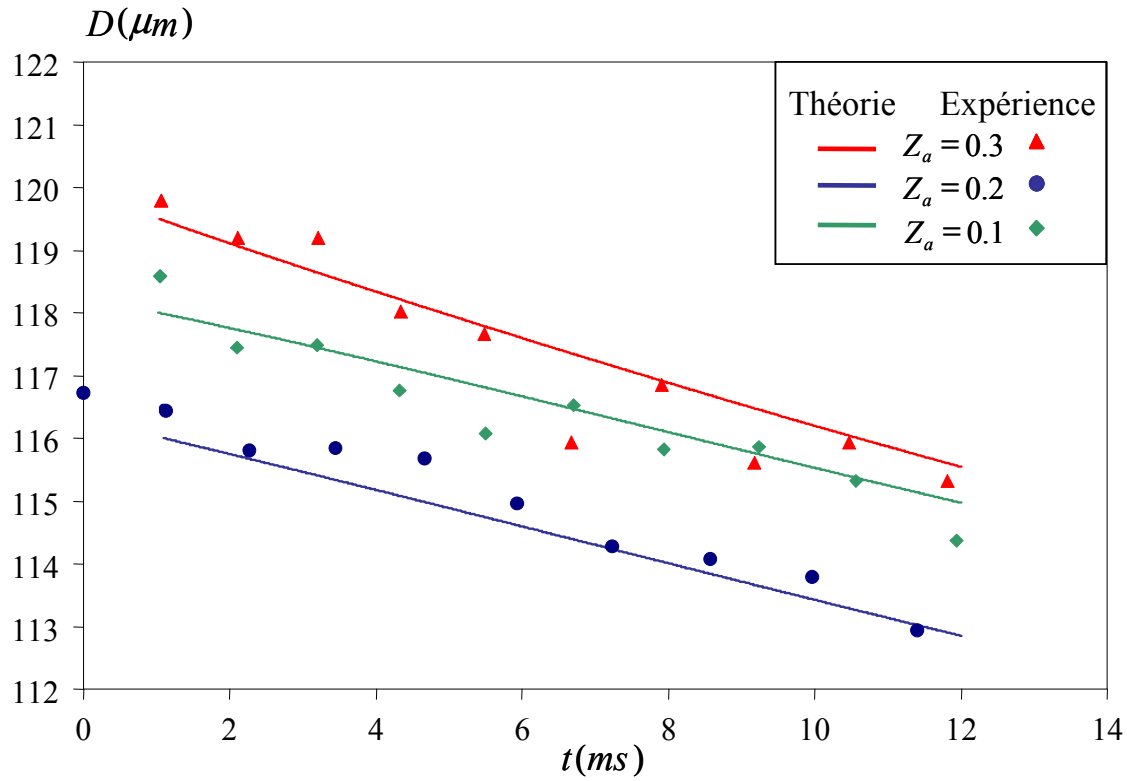


Figure 5.20 : Evolution du diamètre pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 2 – série VII).

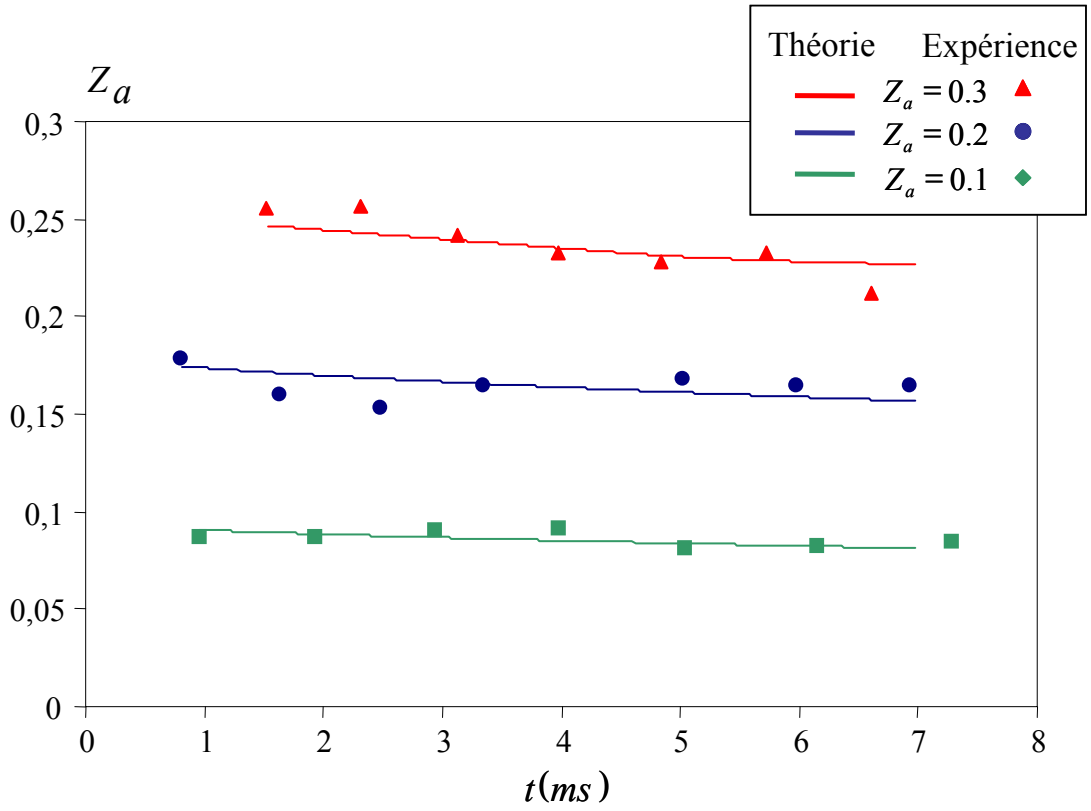


Figure 5.21 : Evolution de la fraction volumique d'acétone pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 2 – série VII).

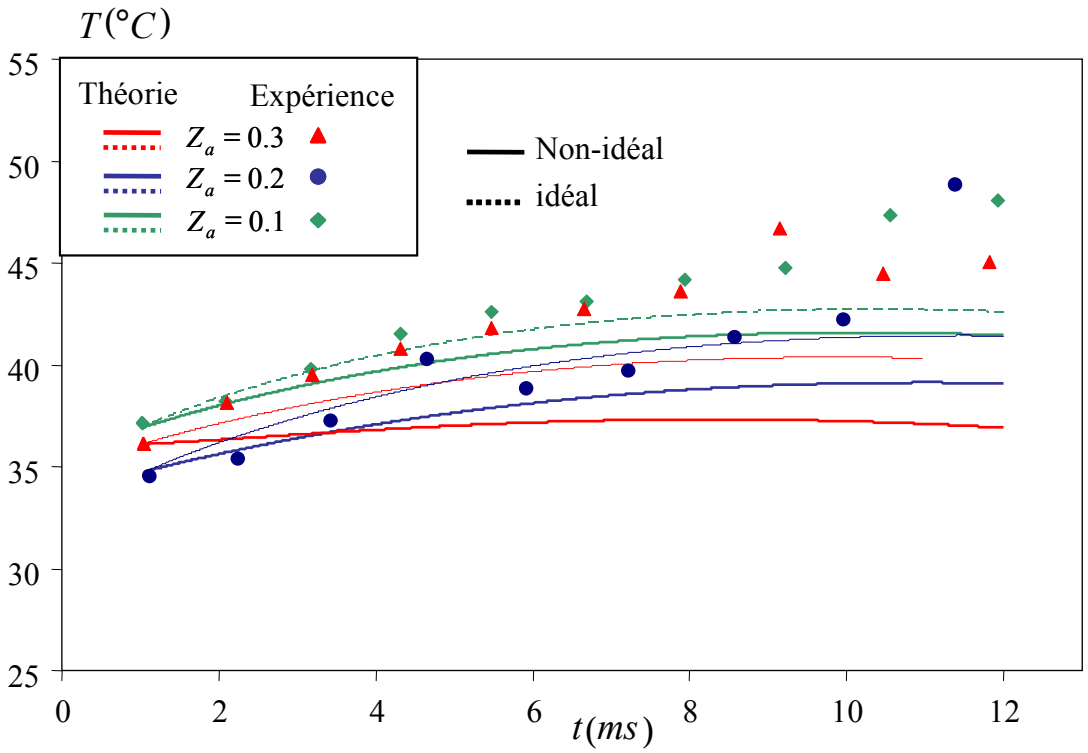


Figure 5.22 : Evolution de la température pour des gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud (configuration 2 – série VII).

5.5 Discussion des résultats et conclusion

La comparaison entre les résultats expérimentaux et les calculs numériques basés sur le modèle à composants discrets conduit à constater une bonne adéquation pour des gouttes en évaporation dans l'air à la température ambiante, pour des gouttes pouvant atteindre un diamètre de 230 µm et pour des gouttes d'un diamètre voisin de 200 µm en évaporation dans l'air à haute température (≈700K). Pour ces différents cas, les écarts constatés entre la modélisation et les expériences restent compatibles avec les incertitudes expérimentales. En revanche, des différences notables peuvent être observées pour des gouttes de plus petit diamètre, de l'ordre de 100 µm, en forte évaporation. Nous orienterons donc cette discussion en mettant l'accent sur trois configurations représentatives dont nous effectuerons la simulation numérique afin d'évaluer les différents flux thermiques liés à l'échauffement, aux échanges convectifs et à l'évaporation. Les paramètres des simulations seront identiques à l'exception du diamètre des gouttes et de la température ambiante. Ces configurations de simulations sont résumées sur le tableau 5.10. La configuration 1 traite le cas de petites gouttes (D_i=100 µm) en évaporation dans l'air à la température ambiante. Les configurations 2 et 3 traitent les cas de gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud avec des diamètres respectifs de goutte de 100 µm et 230 µm.

	Configuration 1	Configuration 2	Configuration 3
C_i	4	4	4
D_i (µm)	100	100	230
T_i (°C)	22.8	22.8	22.8
V (m/s)	-0.219t+6.96 t (ms)	-0.219t+6.96 t (ms)	-0.219t+6.96 t (ms)
T_∞ (°C)	20	Champ de T° du panache d'air chaud	Champ de T° du panache d'air chaud

Tableau 5.10 : Cas test envisagés

Le rapport entre les flux thermiques convectif et d'évaporation ϕ_{conv}/ϕ_{vap} est très différent d'une configuration à l'autre comme le montre la figure 5.23. Pour des gouttes en évaporation dans de l'air ambiant, le flux d'évaporation est nettement supérieur au flux convectif, alors que dans le cas de gouttes en évaporation dans le panache d'air chaud, le flux convectif est le double du flux d'évaporation. Ainsi, une mauvaise évaluation du flux convectif peut être suspectée. Cependant, pour des gouttes de diamètre plus important, les simulations numériques sont en accord correct avec les expériences. En effet, ces gouttes ont une inertie thermique plus importante du fait de leur masse douze fois plus élevée, alors que le flux de chaleur apporté (ou prélevé) n'est que trois fois supérieur pour ces gouttes. Les variations de température résultantes sont donc quatre fois moins marquées pour des gouttes de 230 µm.

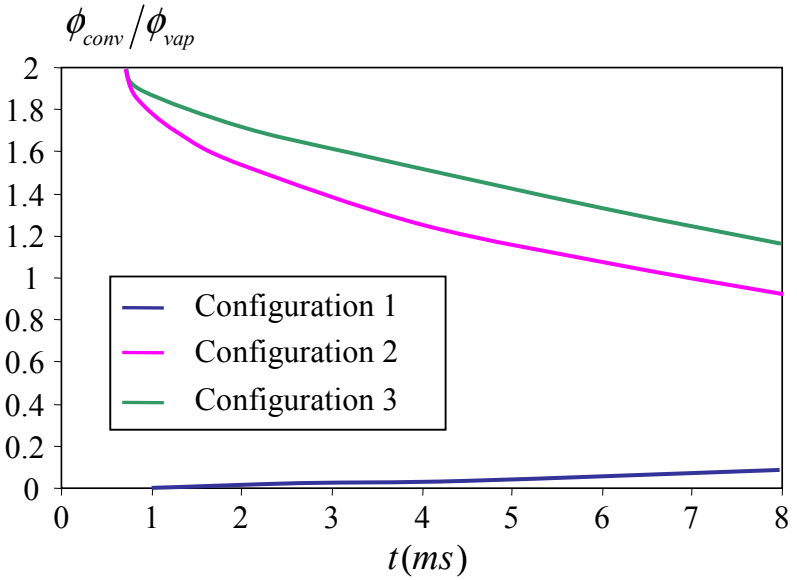


Figure 5.23 : Rapport des flux convectif et d'évaporation dans les trois configurations du tableau 5.10

A des températures ambiantes élevées et pour des gouttes de petit diamètre et donc de faible inertie thermique, l'évaluation des flux liés aux échanges convectif et à l'évaporation est donc critique. L'évaluation de ces flux est directement liée à celle des nombres de Nusselt et de

Sherwood. Afin d'illustrer cette sensibilité, la figure 5.24 présente pour trois configurations expérimentales, la différence de température ΔT obtenue en appliquant au nombre de Nusselt une perturbation de +10%. Ces simulations perturbées sont réalisées dans le cadre du modèle de diffusion effective, pour un mélange non-idéal en phase liquide, en utilisant la corrélation d'Athassit et pour les conditions aérothermiques résumées dans le tableau 5.10. Pour des gouttes en évaporation à la température ambiante (figure 5.24), une perturbation de 10% sur l'évaluation du nombre de Nusselt a peu d'influence, puisque la différence maximale observée sur la température calculée est de l'ordre de 0.1°C. Pour des gouttes de 200 µm de diamètre en évaporation dans le panache d'air chaud, des écarts de l'ordre de 0.7°C peuvent être observés ; toutefois ceux-ci restent inférieurs à l'incertitude expérimentale. En revanche, des différences notables pouvant atteindre 1.8°C apparaissent pour des gouttes de 100 µm en évaporation dans le panache d'air chaud. Ces écarts, relativement importants, sont significatifs par rapport à l'incertitude de la technique de mesure de la température. La même étude a été réalisée en appliquant une perturbation de +10% sur le nombre de Sherwood (figure 5.25). D'une manière générale, une perturbation de +10 % sur le nombre de Sherwood a moins d'influence qu'une perturbation de +10 % sur le nombre de Nusselt, sauf dans le cas des petites gouttes (D_l=100 µm) en évaporation à la température ambiante (configuration 1), ce qui peut être attribué au fait que le flux lié à l'évaporation est dominant.

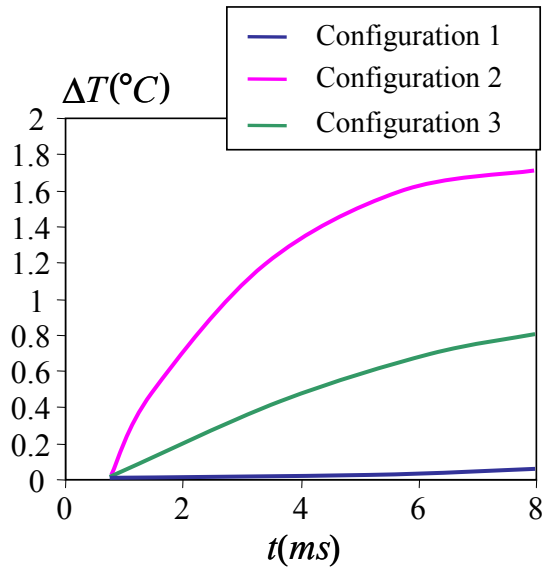


Figure 5.24 : Estimation de l'erreur commise sur le calcul de la température dans trois configurations par une perturbation sur le nombre de Nusselt de +10%.

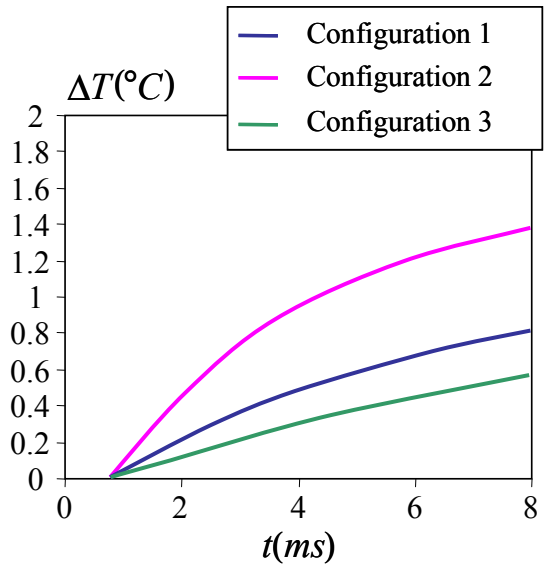


Figure 5.25 : Estimation de l'erreur commise sur le calcul de la température dans trois configurations par une perturbation sur le nombre de Sherwood de +10%.

Ainsi il serait possible de conclure que l'un des points faibles de la modélisation repose sur l'évaluation des nombres de Sherwood et de Nusselt. En particulier, ces nombres sont corrigés par un facteur $\eta(C)$ dépendant uniquement du paramétre de distance C :

$$Sh = \eta(C) Sh_{iso} \tag{5.7}$$

$$Nu = \eta(C) Nu_{iso} \tag{5.8}$$

Cette hypothèse consistant à corriger les nombres de Nusselt et de Sherwood de manière identique, demeure valable tant que le nombre de Lewis est voisin de l'unité, c'est-à-dire que les épaisseurs des couches limites thermique et massique sont du même ordre de grandeur. Dans le cas présent, le nombre de Lewis s'écarte de manière assez significative de l'unité. Ce nombre est de l'ordre de 1.5 pour l'éthanol et de l'ordre de 1.3 pour l'acétone en évaporation dans le panache d'air chaud. Cela signifie qu'une correction différenciée des nombres de Sherwood et de Nusselt est nécessaire.

Notons que la correction du nombre de Sherwood par le facteur $\eta(C)$ semble correcte, puisque lorsque le flux lié à l'évaporation est dominant (cas de l'évaporation dans l'air à température ambiante), la simulation numérique et l'expérience semblent en bonne adéquation. Il apparaît donc nécessaire d'introduire des corrections différentes pour les nombres de Nusselt et de Sherwood, qui pourraient faire intervenir respectivement les épaisseurs des couches limites thermique et massique.

Conclusions

Conclusions

Les principaux acquis de ce travail de thèse concernent le développement de techniques fondées sur la fluorescence induite par laser (FIL), appliquée à la mesure de température et de composition de gouttes bicomposant en évaporation. D'autre part, les premières mesures effectuées en exploitant ces techniques ont été confrontées à la modélisation, ce qui a permis de mettre en évidence un certain nombre de faiblesses des approches fondées sur les modèles à composants discrets.

La Fluorescence induite par laser à trois couleurs

Il s'agit d'une extension de la technique de fluorescence à deux couleurs développée au LEMTA. L'ajout d'une troisième bande spectrale de détection a permis de déterminer une température moyenne de goutte composée d'un mélange d'éthanol et d'acétone en tenant compte des variations de la composition du mélange liquide. Cette technique de mesure permet d'obtenir une température de goutte voisine de la température moyenne calculée au sens arithmétique du terme avec une incertitude absolue de l'ordre de ±1°C. Des résultats ont été obtenus pour des gouttes en évaporation à des températures voisines de la température ambiante et à des températures élevées en forte évaporation pour différentes compositions initiales. Cependant, l'utilisation de trois bandes spectrales reste assez contraignante, du fait de l'alourdissement du dispositif expérimental. D'autre part, l'utilisation de trois informations conduit à une dégradation de la précision de la mesure. Des recherches ont été entreprises au LEMTA, sur de nouveaux traceurs fluorescents comme le pyrrométhene. Ce traceur a été testé avec un mélange d'éthanol et de 3-pentanone et présente une sensibilité très faible à la composition. Il pourrait donc être un excellent candidat pour les mesures de température de gouttes multicomposant par F.I.L. à deux couleurs.

La Fluorescence induite par laser de l'acétone en phase liquide

La fluorescence induite par laser de l'acétone permet une mesure de composition dans le cadre d'un mélange éthanol/acétone. Le principe de cette technique repose sur l'utilisation d'un mélange dans lequel seule une des espèces est fluorescente. La mesure du signal de fluorescence permet de quantifier le nombre de molécules fluorescentes (d'acétone dans le cas présent) et la connaissance précise du diamètre de la goutte par une technique indépendante permet de déterminer la concentration en acétone. Des résultats ont été obtenus avec une précision relative de l'ordre de 12% sur la fraction molaire, sur des gouttes bicomposant en forte évaporation et en combustion.
Cette technique peut raisonnablement être transposée à d'autres cétones ou d'autres espèces fluorescentes telles les composés benzéniques (toluène, Trymethyl-benzène), qui pourront être naturellement présents dans les combustibles. La principale faiblesse de cette méthode réside dans le fait que des mesures d'intensités absolues sont réalisées. Le signal obtenu

dépend alors du volume de mesure et est sensible au profil d'intensité du faisceau laser. De plus, l'énergie laser incidente doit être mesurée par un dispositif indépendant, ce qui dégrade la précision de mesure. Pour pallier à ces difficultés, il est envisagé d'utiliser une mesure additionnelle du signal lié à la diffusion de Mie de la composante résiduelle à 532 nm présente dans le rayonnement incident. Ainsi l'exploitation du rapport entre le signal de fluorescence et celui lié à la diffusion de Mie permettrait d'obtenir une indépendance à l'éclairement laser et au volume de mesure.

Modélisation

Les résultats obtenus expérimentalement ont été comparé aux simulations numériques fondées sur l'approche à composants discrets pour différentes configurations :

- Evaporation faible au voisinage de la température ambiante
- Evaporation forte, pour les températures ambiantes élevées, de l'ordre de 700 K.

Tout d'abord, en évaporation faible à la température ambiante, les écarts entre l'expérience et la simulation constatés sont de l'ordre de l'incertitude expérimentale. Il en est de même pour le cas de gouttes en forte évaporation dont le diamètre est de l'ordre de 200 µm. En revanche, pour des gouttes d'un diamètre de l'ordre de 100 µm en forte évaporation, les écarts sont plus prononcés. Il est possible de suspecter une correction inadéquate des phénomènes d'interactions sur les nombres de Nusselt et de Sherwood. En particulier, un paramètre η dépendant uniquement du paramètre de distance a été introduit et corrige de manière identique les nombres de Nusselt et de Sherwood suivant :

$$Nu = Nu_{iso}\eta(C)$$
$$Sh = Shu_{iso}\eta(C)$$

Cette approche implique une similitude des échanges thermiques et massiques de la goutte avec la phase gazeuse, hypothèse bien vérifiée pour des nombres de Lewis unitaire. Cependant, cette hypothèse est mise en défaut pour des nombres de Lewis différant notablement de 1. Ainsi, il apparaît nécessaire de différencier les facteurs correctifs des nombres de Nusselt et de Sherwood en ajoutant en plus de la dépendance au paramètre de distance et une dépendance à l'épaisseur de couche limite thermique dans le cas du nombre de Nusselt et à l'épaisseur de couche limite massique dans le cas du nombre de Sherwood.
Cette correction pourrait être établie de manière expérimentale en mesurant l'évolution de la température et de diamètre des gouttes de différents combustibles de volatilité différentes, injectés dans de l'air surchauffé. Ainsi une évolution des flux liés à l'échauffement de la goutte, aux échanges convectifs et à l'évaporation pourrait être déterminée. Ces flux permettraient alors d'accéder aux nombres de Sherwood et de Nusselt et par comparaison à ces mêmes quantités correspondant à la goutte isolée, il serait possible d'établir des facteurs correctifs nouveaux.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

Abdel-Qader Z. et Hallett W.L.H. The Role of Liquid Mixing in Evaporation of Complex Multicomponent Mixtures : Modeling using, communication internet : http://by.genie.uottawa.ca/profs/hallett/hallettld.pdf.

Abramzon B. and Sirignano W. A. (1989) Droplet vaporization model for spray combustion calculations, International Journal of heat and mass transfer : vol. 32, pp. 1605.

Atthasit A. (2003) Etude expérimentale des phénomènes d'interaction dans les jets diphasiques denses au moyen de jets rectilignes monodispersés, Toulouse: école nationale supérieure de l'aéronautique et de l'espace.

Bazile R. et Stepowski D. (1995) Measurements of vaporized and liquid fuel concentration fields in a burning spray of acetone using planar laser induced fluorescence, Experiments in Fluids 20 1-9.

Béard P. (1994) Modélisation Lagrangienne de la dispersion et de l'évaporation de gouttes dans un écoulement turbulent instationnaire, Thèse de l'école nationale supérieure de l'aéronautique et de l'espace.

Bird R. B., Stewart W. E. et Lightfood E. N. (1960) Transport phenomena, Wiley international edition ed. New York

Blanc A. (1908) J. Phys., vol. 7, pp. 825.

Borghi R. et Champion M. (2000) Modélisation et théorie des Flammes, éd. Technip Paris.

Burger M., Schmehl R., Prommerberger K., Schäfer O., Koch R. et Wittig S. (2003) Droplet evaporation modelling by the distillation curve model: accounting for kerozene fuel at elevated pressures, Int. J. Heat and Mass Transfer 46:4403-4412.

Brzustowski A., Twardus E.M., Wojcicki S. et Sobiesiak A. (1979) Interaction of Two Burning Fuel Droplets of Arbitrary Size, AIAA journal, vol. 17, pp. 1234-1242.

Castanet G., Lavieille P., Lebouché M. et Lemoine F. (2003) Measurement of the temperature distribution within monodisperse combusting droplets in linear stream using two colors laser-induced fluorescence, Exp. in Fluids 35: 563-571.

Castanet G. (2004) Etude aérothermique d'un jet de gouttes monodispérsé en évaporation et en combustion à l'aide de méthodes optiques, thèse de l'U.H.P Nancy 1.

Castanet G., Lebouché M. et Lemoine F. (2005) Heat and mass transfer of combusting monodisperse droplets in a linear stream, International Journal of Heat and Mass Transfer Volume 48, Issue 16, Pages 3261-3275.

Chauveau, C., Halter, F. et Gökalp, I (2006) Vaporization in Three-Dimensional Droplet Arrays: Effects of the Fuel Vapor Saturation, ICLASS (Kyoto).

Chen C., Aggarwal S.K., Jackson T.A. et Switzer G.L (1997) Experimental study of pure and multicomponent fuel droplet evaporation in a heated air flow, Atomization and Sprays 7, 317-337.

Clift R., Grace J. R. et Weber M. E. (1978) Bubbles, drops and particles, New York: Academic.

Daïf A., Bouaziz M., Chesneau X. et Ali Cherif A. (1999) Comparison of multicomponent fuel droplet vaporization experiments in forced convection with the Sirignano model, Experimental Thermal and Fluid Science 18 282-290.

Devarakonda V. and Ray A. K. (2000) Determination of Thermodynamic Parameters from Evaporationof Binary Microdroplets of Volatile Constituents, Journal of Colloid and Interface Science 221, 104–113.

Doué N. (2005) Modélisation de l'évaporation de gouttes multi-composants, Thèse de l'école nationale supérieure de l'aéronautique et de l'espace.

Ferrand V., Bazile R. et Borée J. (2001) Measurements of concentration per size class in a dense polydispersed jet using planar laser induced fluoresence and phase Doppler techniques, Experiments in Fluids 31 597-607.

Glovacki J. (1964) Further investigation into the fluorescence quenching of dyes by neutral salts, acta Physica Plonica, vol 15, pp 767-780,1964.

Grundberg L. et Nissan A.H. (1948) Trans. Faraday Soc., vol. 44, pp. 1013.

Grundberg L. et Nissan A.H. (1950) Ind. Eng. Chem., vol. 42, pp. 885.

Hallett W.L.H. et Grimwood C. A Simple Continuous Mixture Evaporation Model with Multiple Distribution Functions, communication internet :
http://www.genie.uottawa.ca/profs/hallett/hallettqs.pdf.

Hallet W.L.H. (2000) A simple model for the Vaporization of Droplets with Large Number of Components, Combustion and flame 121:334-344 .

Han D. et Steeper R. R. (2002) An lif equivalence ratio imaging for multicomponent fuels in an ic engine, Proceedings of the combustion Institute, Volume 29, 2002/pp. 727-734.

Homann S. et Renz U. (2003) Numerical simulation of fuel sprays at high ambient pressure: the influence of real gas effects and gas solubility on droplet vaporisation, Int. J. Heat and Mass Transfer 46: 3017-3028.

Hopkins R. J., Symes R., Sayer R. M. et Reid J. P. (2003) Determination of the size and composition of multicomponent ethanol/water droplets by cavity-enhanced Raman scattering, Chemical Physics Letters 380 (2003) 665–672.

Hubbard G. L., Denny V. E. et Mills A. F. (1975) Droplet evaporation: effects of transients and variable properties, International Journal of Heat and Mass Transfer., vol. 18, pp. 1003-8.

Kastner O., Brenn G., Rensik D., Tropea C. et Yarin A.L. (2000) Investigation of the drying behavior of suspension droplets in an acoustic levitator, 16th Annual Conference on Liquid Atomization and Sprays, Darmstadt, Germany.

König G., Anders K. et Frohn A. (1986) A new light scattering technique to measure droplet diameter of periodically generated moving droplets, J. Aerosol Sci. 17, pp 157-167.

Klingsporn M. et Renz U. (1994) Vaporization of binary unsteady spray at high temperature and high pressure, Int. J. Heat and Mass Transfer 37: 265-272.

Kneer R., Scneider M., Noll B. et Wittig S. (1993) Diffusion controlled evaporation of a multicomponent droplet: theoretical studies on the importance of variable liquid properties, Int. J. Heat and Mass Transfer 36: 2403-2415.

Labowsky M. (1980) Calculation of the burning rates of interacting fuel droplets, Combustion science and technology, vol. 22, pp. 217-226.

Landis R.B. et Mills A.F. (1974) Effect of internal resistance on the vaporization of binary droplets, Fifth Int. Heat Transfer Conf., Tokyo, Japan, Paper B7-9.

Lavielle P. (2001) Etude expérimentale du comportement aérothermique de gouttes en écoulement, réactif ou non, par utilisation de la fluorescence induite par laser à deux couleurs, thèse de l'U.H.P, Nancy 1.

Lavieille P., Lemoine F., Lebouché M. et Lavergne G. (2001) Evaporating and combusting droplet temperature measurement using two colors laser induced fluorescence, Experiments in Fluids 31 45-55.

Le Clercq P. et Bellan J. (2004) Direct numerical simulation of a transitional temporal mixing layer laden with multicomponent-fuel evaporating drop using continuous thermodynmics, Phys. Fluids, pp. 1884-1907.

Lemoine F. et Leporcq B. (1995) An efficient optical pressure measurement in compressible flows by laser-induced iodine fluorescence, Experiments in Fluids 19, 150 158.

Li C.C. (1976) AIChE J., in press.

Lozano A., Yip B. et Hanson R.K. (1992) Acetone: a tracer for concentration measurements in gaseous flows by planar laser-induced fluorescence, Exp. in Fluids 13: 369-376.

Lu Q.Z. et Melton L.A. (2000) Measurement of transient temperature field within a falling droplet, AIAA Journal 38, No1: 95-101

Majumder C., Jayakumar O.D., Vatsa R.K., Kulshreshtha S.K. et Mittal J.P. (1999) Multiphoton ionisation of acetone at 355 nm: a time-of-flight, mass spectrometry study, Chemical Physics Letters 304 1999 51–59.

Marberry M., Ray A. K. et Leung K. (1984) Effect of multiple particle interactions on burning droplets, Combustion and Flame, vol. 57, pp. 237-45.

Massoli P. (1997) Temperature and size of droplets inferred by light scattering methods : a theoretical analysis of the influence of internal inhomogeneities, Thirteen annual conference on liquid atomization and spray systems ILASS-Europe.

McDaniel J.C. (1983) Non-intrusive pressure measurements with laser-induced fluorescence, AIAA 18th Thermophysics Conference, Montreal, Canada.

Mulholland J.A, Srivastava R.K. et J.O.L. Wendt (1988) Influence of droplet spacing on drag coefficient in nonevaporating, monodisperse stream, AIAA Journal 26, No. 10: 1231-1237.

Orain M., Mercier X. et Grisch F. (2005) Plif imaging of fuel-vapor spatial distribution around a monodisperse stream of acetone droplets: comparison with modelling, Combust. Sci. and Tech., 177: 249–278.

Poling B. E., Prausnitz J. M. et O' Connell J (2000) The Properties of Gases and Liquids, McGraw-Hill Professional Publishing.

Prakash S. et Sirignano. W.A. (1978) Liquid fuel droplet heating with internal circulation, Int. J. Heat and Mass Transfer 21:885-895.

Prakash S. et Sirignano. W.A. (1980) Theory of convective fuel droplet vaporization with unsteady heat transfer in the circulating liquid phase, Int. J. Heat and Mass Transfer 23:253-268.

Ranz W. E. et Marshall W. R. (1952) Evaporation from drops, chemical engineering progress, vol. 48, pp. 141-180.

Renksizbulut M. et Yuen M. C. (1983) Experimental study of droplet evaporation in a high-temperature air stream, Transactions of the ASME. Journal of Heat Transfer, vol. 105, pp. 384-8.

Reichenberg D. (1974) The Viscosities of Gas Mixtures at Moderate Pressures, NPL Rep. Chem. 29, National Physical Laboratory, Teddington, England.

Ritchie B. D. et Seitzman J. M (2001) Quantitative acetone plif in two-phase flows, Published by the American Institute of Aeronautics and Astronautics, Inc. with permission.

Scheibel E.G. (1954) Ind. Eng. Chem., vol. 46, pp. 2007.

Silverman M.A. et Dunn-Rankin D. (1994) Experimental investigation of a rectilinear droplet stream flame, Comb. Sci. Tech. 100: 57-73.

Sirignano W.A. (1983) Fuel droplets vaporization and spray combustion theory, Prog Energy Combust Sci 9: 291-322.

Sirignano W.A (1999) Fluid Dynamics and Transport of Droplets and Sprays, Cambridge University Press.

Scott W. Campbell, Richard A. Wilseak, et George Thodos (1987) Vapor-liquid Equilibrium measurements for the ethanol-acetone system at 372.7, 397.7 and 422.6 K, J. Chem. Eng. Data, 32, 357-362.

Thurber M., Grisch F., Kirby B., Votsmeier M. et Hanson R.K. (1998) Measurements and modeling of acetone laser-induced fluorescence with implications for temperature-imaging diagnostics, Appl. Opt. 37 4963.

Tong A.Y. et Sirignano W.A. (1986) Multicomponent droplet vaporization in high temperature gas, Combust. Flame 66, 221-235.

Tran T., Kochar Y. et Seitzman J. (2005) Measurements of Liquid Acetone Fluorescence and Phosphorescence for Two-Phase Fuel Imaging, 43rd Aerospace Sciences Meeting and Exhibit.

Valeur B. (2004) Invitation à la fluorescence moléculaire, Édition De Boeck Université

Van Beeck J. et Riethmuller M. (1995) Non-intrusive measurements of temperature and size of single falling raindrops, Apllied Optics 34: 1633-1639.

Van Beeck J. et Riethmuller M. (1997) Rainbow interferometry with wire diffraction for simultaneous measurement of droplet temperature, size and velocity, Part. Syst. Charact. 14: 186-192.

Virepinte J. F. (1999) Etude expérimentale du comportement des gouttes d'interaction, Toulouse: école nationale supérieure de l'aéronautique et de l'espace.

Virepinte J.F., Biscos, Y. Lavergne G., Magre P. et Collin G. (2000) A rectilinear droplet stream in combustion : droplet and gas phase properties, Comb. Sci. Tech. 150: 143-159.

Walker J.D. (1976) Rainbow from single drops of water and other liquids, Am. J. Phys. 44: 421-433.

Wassiljewa A. (1904) Physik. Z., vol. 5, pp. 737.

Weisstein E., communication internet : http://mathworld.wolfram.com/about/author.html

Wilke C.R. (1950) J. Chem. Phys., vol. 18, pp. 517.

Wilms J., N. Roth N., Arndt S. et Weigand B. (2004) Determination of the composition of multicomponent droplets by rainbow refractometry, 12th Symposium on Application of Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon, Portugal.

Yuen C. et Chen L. W. (1976) On drag of evaporating liquid droplets, Combustion science and technology, vol. 14, pp. 147-154.

Zhao Y. et Qiu H.H. (2004) Measurements of Multicomponent Microdroplet Evaporation by Using Novel Optical Techniques, 12th Symposium on Application of Laser Techniques to Fluid Mechanics, Lisbon, Portugal.

Annexes

Annexe A : Polynômes de Legendre

L'hypothèse de symétrie axiale du problème autorise l'utilisation de la base des polynômes orthogonaux de Legendre. La température et la composition sont décomposées séries dont les propriétés vont permettre de simplifier la résolution des équations. La discrétisation du champ de température ne portera plus sur le rayon et l'angle, mais sur le rayon et le nombre de mode. Une solution précise peut ainsi être obtenue en ne considérant qu'une vingtaine de modes, puisque la série a convergé.

$$X(r,\theta,t)=\sum_{n=0}^{+\infty} f_n(r,t)P_n(\cos(\theta)) \tag{A. 1}$$

où P_n désigne le nième polynôme de la série de Legendre, f_n la fonction harmonique qui lui est associée et X représente la température ou la composition. Les harmoniques f_n vont être déterminées en utilisant les équations de la chaleur ou de la masse et en utilisant les propriétés des polynômes de Legendre.

♦ Produit scalaire

Les polynômes de Legendre sont orthogonaux pour le produit scalaire défini par :

$$\begin{cases} \int_{x=-1}^{n} P_m(x)P_n(x)dx &= 0 \; si \; m \neq n \\ &= C_m \; si \; m = n \end{cases} \tag{A. 2}$$

$$C_m = \frac{1}{m+\frac{1}{2}} \tag{A. 3}$$

♦ Propriétés de récurrence

Les différentes propriétés de récurrence des polynômes sont recensées sur le site d'Eric Weisstein. Les propriétés utilisées dans notre cas lient les polynômes de Legendre par une relation de récurrence portant sur les ordres de dérivées ou les ordres des Polynômes :

$$(1-x^2)P_n''(x)-2xP_n'(x)+n(n+1)P_n(x)=0 \tag{A. 4}$$

$$(1-x^2)P_n'(x)=-xnP_n(x)+nP_{n-1}(x) \tag{A. 5}$$

$$(n+1)P_{n+1}(x)-(2n+1)xP_n(x)+nP_{n-1}(x)=0 \tag{A. 6}$$

♦ Simplification des équations

Les équations de la masse (1.39) et de la température (1.38) peuvent s'écrire, en tenant compte de l'expression du champ de vitesse interne :

$$\frac{R}{U_s}\frac{\partial X}{\partial t}-\frac{r^*}{U_s}\frac{dR}{dt}\frac{\partial X}{\partial r^*}+\frac{\cos(\theta)}{r^{2*}}\frac{\partial\left(r^{*2}\left(1-r^{*2}\right)X\right)}{\partial r^*}+\frac{1}{r^*\sin(\theta)}\frac{\partial\left(\sin^2(\theta)X\left(1-2r^{*2}\right)\right)}{\partial\theta}= \frac{1}{Pe}\left(\frac{\partial X^2}{\partial r^{*2}}+\frac{2}{r^*}\frac{\partial X}{\partial r^*}+\frac{1}{r^{*2}}\frac{\partial^2 X}{\partial\theta^2}+\frac{1}{r^{*2}}\frac{\cos(\theta)}{\sin(\theta)}\frac{\partial^2 X}{\partial\theta^2}\right) \quad \text{(A. 7)}$$

L'injection de la décomposition de X, du changement de variable $x=\cos(\theta)$ et de la relation de récurrence (A.4) permet d'écrire la fonction sous la forme :

$$\sum_{n=0}^{+\infty}\left[\left(\frac{R}{U_s}\frac{\partial f_n}{\partial t}+\left(1-r^{*2}\right)x\frac{\partial f_n}{\partial r^*}-\frac{r^*}{U_s}\frac{dR}{dt}\frac{\partial f_n}{\partial r^*}\right)P_n(x)+\frac{1-2r^{*2}}{r^*}\left(1-x^2\right)f_n P_n'(x)\right]= \frac{1}{Pe}\sum_{n=0}^{+\infty}\left[\frac{\partial^2 f_n}{\partial r^{*2}}+\frac{2}{r^*}\frac{\partial f_n}{\partial r^*}-\frac{n(n+1)}{r^{*2}}f_n\right]P_n(x) \quad \text{(A. 8)}$$

La multiplication des membres de gauches et de droite de l'équation (A.8) par P_m, puis l'intégration de l'équation entre -1 et 1 selon x permettent de simplifier l'équation en utilisant le produit scalaire (A.2)

$$\frac{R}{U_s}\frac{\partial f_m}{\partial t}-\frac{r^*}{U_s}\frac{dR}{dt}\frac{\partial f_m}{\partial r^*}+\frac{1}{C_m}\sum_{n=m-1}^{m+1}\left[A_{nm}\left(1-r^{*2}\right)\frac{\partial f_n}{\partial r^*}+B_{nm}\frac{1-2r^{*2}}{r^*}f_n\right]= \frac{1}{Pe}\left[\frac{\partial^2 f_m}{\partial r^{*2}}+\frac{2}{r^*}\frac{\partial f_m}{\partial r^*}-\frac{m(m+1)}{r^{*2}}f_m\right] \quad \text{(A. 9)}$$

Avec

$$A_{nm}=\int_{x=-1}^{1}xP_n(x)P_m(x)dx \quad \text{(A. 10)}$$

$$B_{nm}=\int_{x=-1}^{1}\left(1-x^2\right)P_n'(x)P_m(x)dx \quad \text{(A. 11)}$$

Les grandeurs A_{nm} et B_{nm} se calculent très simplement en utilisant respectivement les propriétés de récurrence (A.6) et (A.5). Leurs expressions analytiques sont données en (1.42).

Annexe B : Propriétés physiques et règles de mélange

♦ **Propriétés physiques de l'éthanol en phase liquide**

L'ensemble des propriétés physiques de l'éthanol est référencé dans les travaux de Béart (1994).

Capacité calorifique : $c\left(\text{J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}\right) = 15039 + .41431\,T^2 - .39583e-3\,T^3 - 130.53\,T$

Conductivité thermique : $\lambda\left(Wm^{-1}K^{-1}\right) = 0.61572 + 0.31333e-5T^2 - 0.24127e-2T$

Viscosité dynamique : $\mu\left(Pa.s\right) = 10^{\left(\frac{686.64}{T} - 5.282\right)}$

Densité volumique : $\rho\left(\text{Kg.m}^{-3}\right) = 1053.6 - .925\,T$

Chaleur latente de vaporisation : $L(J.Kg^{-1}) = 120910.00\,(516.2 - T)^{.38}$

♦ **Propriétés physiques de l'éthanol en phase gazeuse**

L'ensemble des propriétés physiques de l'éthanol est référencé dans les travaux de Béart (1994).

Capacité calorifique : $c\left(\text{J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}\right) = 469.67 + 4.2301\,T - .15571e-2\,T^2$

Conductivité thermique : $\lambda\left(Wm^{-1}K^{-1}\right) = 0.18037e-2 + 0.7419e-5T + 0.11536e-6T$

Viscosité dynamique : $\mu\left(Pa.s\right) = .29211e-7\,T - .19757e-6$

Densité volumique : $\rho\left(\text{Kg.m}^{-3}\right) = .5541\text{e-}2\dfrac{P}{T}$, P: Pression atmosphérique en Pa

Diffusivité molaire dans l'air : $D\left(\text{m}^2.\text{s}^{-1}\right) = .58516\text{e-}4\dfrac{T^{1.75}}{P}$, P: : Pression atmosphérique en Pa

Pression de vapeur saturante : $P_v\left(\text{Pa}\right) = 133.32\,e^{\left(18.9119 - \frac{3803.98}{T - 41.68}\right)}$

♦ **Propriétés physiques de l'acétone en phase liquide**

Capacité calorifique : $c\left(\text{J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}\right) = .1000e-1\,T^2 - 2.963\,T + 2165.234225$

Conductivité thermique : $\lambda\left(Wm^{-1}K^{-1}\right) = 0.1e-5T^2 - 0.8163e-3T + 0.3133614225$

Viscosité dynamique : $\mu\left(Pa.s\right) = .223333e-7\,T^2 - .1629735179e-4\,T + .3183313525e-2$

Densité volumique : $\rho\left(\text{Kg.m}^{-3}\right) = 986.5303588 - .6014966034\,T - .2754046133e-3T^2$

Pression de vapeur saturante : $L(J.Kg^{-1}) = 489000\,(2.843312815 - .5595970901e-2\,T)^{.38}$

♦ **Propriété physique de l'acétone en phase gazeuse**

Capacité calorifique :

$c\left(\text{J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}\right)$=7.0473444e-06 T^3 - 9.9229425e-03 T^2 + 8.211229 T - 458.00814

Conductivité thermique : $\lambda\left(Wm^{-1}K^{-1}\right) = 0.1143468e-1\left(\frac{T}{273}\right)^{\left(2-0.3428433659e-6T^2\right)}$

Viscosité dynamique : $\mu\left(Pa.s\right)$ = -.449329e-11 T^2 + .3090958433e-7 T - .1579884447e-5

Densité volumique : $\rho\left(\text{Kg.m}^{-3}\right) = \frac{707.7943354}{T}$

Diffusivité molaire dans l'air : $D\left(\text{m}^2.\text{s}^{-1}\right)$ = -.5321e-5 + .32888e-7 T + .67556e-10 T^2

Pression de vapeur saturante :

$P_v\left(\text{Pa}\right)$=$P$ e$^{\left(.6985386976\text{e-}2\,L\left(.3035822708\text{e-}2-\frac{1}{T}\right)\right)}$, P: Pression atmosphérique Pa, L : Chaleur latente

♦ **Règles de mélange en phase liquide**

Capacité calorifique : $Cp_m\left(J.Kg^{-1}.K^{-1}\right) = \sum_i y_i Cp_i$, y_i : fraction massique gazeuse.

Masse volumique : $\rho_m\left(Kg.m^{-3}\right) = \left(\sum_i \frac{y_i}{\rho_i}\right)^{-1}$, y_i : fraction massique gazeuse.

Conductivité thermique (Li, 1976) : $\lambda_m\left(Wm^{-1}K^{-1}\right) = \sum_i \sum_j \phi_i \phi_j \lambda_{ij}$, $\lambda_{ij} = 2\left(\lambda_i^{-1} + \lambda_j^{-1}\right)^{-1}$ et

$\phi_i = \frac{x_i V_i}{\sum_j x_j V_j}$

Viscosité dynamique (Grundberg et Nissan, 1948 et 1950): $\mu_m\left(Pa.s\right) = e^{\sum_i x_i \ln(\mu_i)}$, x_i : fraction molaire gazeuse.

Coefficient de diffusion (Scheibel, 1954) : $D_{AB}\left(cm^2 s^{-1}\right) = \frac{\left(\mu_B D_{AB}^0\right)^{x_B}\left(\mu_A D_{BA}^0\right)^{x_A}}{\mu_m}$,

$D_{AB}^0 = \frac{K'T}{\mu_B V_{bA}^{1/3}}$, $K' = 8.2 * 10^{-8}\left(1 + \left(3\frac{V_{bB}}{V_{bA}}\right)^{2/3}\right)$ si $V_{bA} < 2.5 V_{bB}$, $K' = 17.5 * 10^{-8}$ sinon .

♦ **Règles de mélange en phase gazeuse**

Capacité calorifique : $Cp_m = \sum_i y_i Cp_i$, y_i : fraction massique.

Masse volumique : $\rho_m\left(Kg.m^{-3}\right) = \left(\sum_i \frac{y_i}{\rho_i}\right)^{-1}$

Conductivité thermique (Wassiljewa, 1904) :

$$\lambda_m\left(Wm^{-1}K^{-1}\right) = \sum_i \frac{x_i \lambda_i}{\sum_j x_i A_{ij}}, A_{ij} = \frac{\left(1+\left(M_i\mu_i/\left(M_j\mu_j\right)\right)^{1/2}\left(M_i/M_j\right)^{1/4}\right)^2}{\left(8\left(1+M_i/M_j\right)\right)^{1/2}}$$

Viscosité dynamique (Wilke, 1950) :

$$\mu_m\left(Pa.s\right) = \sum_i \frac{x_i \mu_i}{\sum_j x_i A_{ij}}, \; A_{ij} = \frac{\left(1+\left(M_i\mu_i/\left(M_j\mu_j\right)\right)^{1/2}\left(M_i/M_j\right)^{1/4}\right)^2}{\left(8\left(1+M_i/M_j\right)\right)^{1/2}}$$

Diffusivité molaire dans l'air (Blanc, 1908 et Reichenberg, 1974):

$$D_{i,g}\left(m^2 s^{-1}\right) = \left(\sum_{j\neq i} \frac{x_j}{D_{ij}}\right)^{-1},$$

$$D_{ij} = 1.43 * 10^{-7} T^{1.75} \frac{\left[2/\left(M_i^{-1}+M_j^{-1}\right)\right]^{1/2}}{P/P_A\left[\left(\sum v\right)_i^{1/3}+\left(\sum v\right)_j^{1/3}\right]^2}$$

INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :
Monsieur Sergei SAZHIN, Professeur, School of Engineering, University of Brighton, United Kingdom

Monsieur Cameron TROPEA, Professeur, Fachgebiet Strömungslehre und Aerodynamik, TUD, Darmstadt, Germany

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur MAQUA Christophe

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Contribution à la compréhension de l'évaporation de gouttes de combustible bi-composant à l'aide de méthodes optiques"

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : **« Mécanique et énergétique »**

Fait à Vandoeuvre, le 16 octobre 2007
Le Président de l'I.N.P.L.,
F. LAURENT

TEL. 33/03.83.59.59.59
FAX. 33/03.83.59.59.55

Résumé

Des diagnostics optiques non-intrusifs sont développés afin d'améliorer la compréhension des phénomènes d'évaporation de gouttes de combustible multicomposant. La configuration simplifiée retenue est un jet linéaire de gouttes monodispersées. L'évaporation est réalisée soit à la température ambiante, soit à des températures plus élevées de l'ordre de 500°C. Le combustible utilisé est composé d'éthanol et d'acétone, dont les volatilités sont très différentes. Deux nouvelles techniques de mesures fondées sur la Fluorescence Induite par Laser (LIF) ont été développées au cours des ces travaux. La première, la LIF à trois couleurs permet de mesurer la température moyenne de gouttes binaires. La deuxième exploite la fluorescence émise par l'acétone excitée par un rayonnement laser à 266 nm afin de déterminer la composition instantanée du mélange. Les résultats expérimentaux ont été comparés à un modèle à composants discrets utilisant une approche 1D quasi-stationnaire.

Title

Contributin to the understanding of bi-component fuel droplets evaporation using optical diagnostics.

Abstract

Non intrusive optical diagnostics are developed to investigate the mechanisms governing multicomponent droplets evaporation. The case of periodically and linearly arranged monodisperse droplets is considered in these experiments. Droplets are injected either at ambient temperature or into a hot air plume at about 500°C. The fuel mixture is made of ethanol and acetone, which exhibit very different volatilities. Two techniques based on Laser Induced Fluorescence (LIF) have been developed to investigate heat and mass transfers. The first one, the three colours LIF allows obtaining the average temperature of binary droplets. The second one used the fluorescence of acetone excited by an UV laser (266 nm) in order to quantify the acetone molar fraction. Finally, measurements are compared with a numerical model that is derived from a discreet component approach and the assumption of 1D quasi-steady evolution of the gas phase.

Discipline

Mécanique et Energétique

Mots clés

Multicomposant, température, composition, fluorescence induite par laser, gouttes, diagnostics optiques, évaporation.

Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée
CNRS UMR 7563
2, avenue de la Forêt de Haye BP 160
54504 Vandoeuvre-Les-Nancy