



HAL
open science

Modélisation multiphysique de différentes phases de l'électro-aérospray : de la génération à l'atomisation

Victorien Mamet

► **To cite this version:**

Victorien Mamet. Modélisation multiphysique de différentes phases de l'électro-aérospray : de la génération à l'atomisation. Autre. Université Grenoble Alpes, 2019. Français. NNT : 2019GREAI002 . tel-03231437v1

HAL Id: tel-03231437

<https://theses.hal.science/tel-03231437v1>

Submitted on 20 May 2021 (v1), last revised 20 May 2021 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour obtenir le grade de
DOCTEUR DE LA COMMUNAUTÉ UNIVERSITÉ
GRENOBLE ALPES

Spécialité : **MEP** : Mécanique des fluides Energétique,
Procédés

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par
Victorien MAMET

Thèse dirigée par **Jean-Marc DEDULLE**
et co-dirigée par **Patrick NAMY**

préparée au sein du **Laboratoire des matériaux et du génie**
physique

et de l'école doctorale **I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Méca-**
nique, Environnement, Energétique, Procédés, Production

Modélisation multiphysique des **différentes phases de l'électro-aérospray :** **de la génération à l'atomisation**

Thèse soutenue le 10 Janvier 2019 devant le jury composé de :

Alexandre ERN

Professeur des Universités, CERMICS, *Président*

Abdel Moumen DARCHERIF

Directeur Général d'ECAM-EPMI, *Rapporteur*

Gérard VIGNOLES

Professeur de l'Université de Bordeaux, *Rapporteur*

Raphaël BOICHOT

Enseignant-chercheur à Grenoble INP - SIMAP, *Examineur*

Pascale PHAM

Ingénieur R&D, *Examineur*

Jean-Marc DEDULLE

Professeur des Universités à Grenoble INP, *Directeur de thèse*

Patrick NAMY

Directeur R&D, Simtec, *Co-directeur de thèse*

Stéphane GASSER

Directeur R&D, DBV Technologies, *Invité*

Bertrand DUPONT

CTO, DBV Technologies, *Invité*



Remerciements

Ce manuscrit est le fruit de trois années de recherches au sein de la société DBV Technologies, en partenariat CIFRE avec le Laboratoire des Matériaux et du Génie Physique (LMGP).

Je tiens à remercier Jean-Marc Dedulle pour avoir accepté de diriger ces travaux de thèse et Patrick Namy de les avoir co-dirigés. Merci pour leurs conseils, remarques et corrections pendant ces trois ans.

Merci à Gérard Vignoles et Moumen Darcherif d'avoir accepté de relire ce manuscrit, à Alexandre Ern d'avoir présidé le jury de thèse, ainsi qu'à Raphaël Boichot d'avoir accepté à la fois d'être examinateur du jury, et de m'avoir suivi pendant les deux dernières années de doctorat en tant que membre du CSI avec Thierry Duffar, que je remercie également.

Je souhaite également remercier mes différents collègues à DBV Technologies, qui m'ont accompagné pendant ces plusieurs années : dans l'équipe de la RDIT, Bertrand Dupont, Stéphane Gasser, Sarah Darwiche, Vivian Aubert, Maxime Huet et Lucas Sanchez, dans l'équipe indus, Ludovic, Pascale, Rémi, Aude, Pascal, Lydie, Ferial, Christopher, Élodie, Isaura, et bien d'autres que j'oublie certainement !

Sans oublier ma famille et mes amis, sans qui ces dernières années d'études auraient été plus insipides ! Évidemment, merci à ma chérie pour sa patience et son soutien au quotidien.

Table des matières

Table des figures	viii
Nomenclature	xiii
1 Introduction : Intérêt de l'électro-aérospray	1
1.1 Contexte	1
1.1.1 Travaux de thèse	1
1.1.2 Importance des allergies alimentaires	1
1.1.3 Techniques pour lutter contre les allergies alimentaires	2
1.1.4 Production de médicaments	4
1.1.5 Patch Viaskin®	5
1.1.6 Utilisation de l'électrospray	6
1.1.7 Introduction de l'électro-aérospray	7
1.2 Sprays	8
1.2.1 Applications	8
1.2.2 Enjeu de la modélisation	8
1.3 Plan du manuscrit	10
2 Revue de bibliographie	11
2.1 Présentation des procédés	12
2.1.1 Électrospray	12
2.1.2 Aérospray	12
2.1.3 Électro-aérospray	13
2.1.4 Organisation de la revue de littérature	14
2.2 Cône de liquide	14
2.2.1 Électrospray	14
2.2.2 Aérospray	17
2.3 Jet liquide	20
2.3.1 Analyse de stabilité linéaire axisymétrique	20
2.3.2 Électrospray	20
2.3.3 Aérospray	22
2.3.4 Électro-aérospray	23
2.4 Spray	23
2.4.1 Électrospray	23
2.4.2 Aérospray	24
2.4.3 Électro-aérospray	24
2.5 Synthèse	25

3	Méthodologie expérimentale et numérique	27
3.1	Expérimental	28
3.1.1	Matériel	28
3.1.1.1	Objectifs & Moyens	28
3.1.1.2	Chambre	29
3.1.1.3	Circuit liquide	30
3.1.1.4	Circuit gaz	31
3.1.1.5	Imagerie rapide	31
3.1.2	Méthodes	33
3.1.2.1	Protocole d'initialisation	33
3.1.2.2	Prise de vue	35
3.1.2.3	Traitement d'image	36
3.2	Modélisation	38
3.2.1	Nombres adimensionnels	38
3.2.1.1	Paramètres du système	38
3.2.1.2	Indicateurs de régime d'écoulement du cône	40
3.2.2	Modèle du cône	41
3.2.2.1	Mise en équations	41
3.2.2.2	Aspect électrique	43
3.2.2.3	Méthode numérique	46
3.2.3	Modèle du jet	51
3.2.3.1	Étapes de développement	51
3.2.3.2	Domaine étudié	51
3.2.3.3	Méthode et mise en équations	55
3.2.3.4	Indicateurs	57
3.2.4	Implémentation physique	59
3.2.4.1	Logiciel	59
3.2.4.2	Système	59
4	Simulations du cône de liquide	61
4.1	Comportement binaire du cône	61
4.1.1	Dualité Stationnaire Dynamique (SD) / Transitoire (T)	61
4.1.2	Indicateurs choisis	62
4.2	Préliminaires : Validation des paramètres numériques retenus	63
4.2.1	Taille de maille	63
4.2.2	Pas de temps de l'étude	63
4.2.2.1	Utilisation de deux études temporelles	64
4.2.3	Nombre de cœurs de calcul	64
4.3	Régime Stationnaire Dynamique	66
4.3.1	Géométrie du domaine	66
4.3.1.1	Diamètre de la buse D'_i	66
4.3.1.2	Distance buse/éjecteur H'	69
4.3.2	Débit liquide Q_l	71
4.3.2.1	Origine de la recirculation	73
4.3.2.2	Phénomène physique de recirculation	73
4.3.2.3	Relation entre Q_{\min} et Q_r	74
4.3.3	Pression de gaz ΔP_g	74
4.3.4	Champ électrique ΔV	76
4.3.5	Viscosité du liquide μ_l	78

4.3.6	Synthèse	80
4.4	Régime transitoire	81
4.4.1	Description des oscillations capillaires	81
4.4.2	Influence de la géométrie	83
4.4.2.1	Diamètre intérieur de la buse D'_i	83
4.4.2.2	Hauteur buse/éjecteur H'	84
4.4.3	Influence du débit liquide	85
4.4.3.1	Étude de $\tau = f(Q_l)$	85
4.4.4	Caractérisation de la période liquide	89
4.4.4.1	Décomposition du mouvement	89
4.4.4.2	Pulsation	89
4.4.5	Influence de la pression ΔP_g	91
4.4.6	Influence des propriétés liquides	91
4.4.7	Synthèse	93
4.5	Résultats généraux	94
4.5.1	Propriétés géométriques	94
4.5.1.1	Distance buse/éjecteur	94
4.5.1.2	Analyse et encadrement de (D'_i, H')	97
4.5.2	Diagramme de modes	98
4.5.3	Propriétés fluides	98
4.5.4	Incidence du gaz autour de la buse	100
4.5.5	Influence de D'_i sur les régimes SD/T	100
4.5.6	Conclusion	101
5	Modélisation de la rupture du jet liquide	103
5.1	Cas 1 : Sans contrainte	104
5.1.1	Repère fixe	104
5.1.2	Repère local	107
5.2	Cas 2 : Avec pression de gaz	110
5.2.1	Description de la contrainte	110
5.2.2	Repère fixe	111
5.2.3	Repère local	111
5.2.3.1	Pression constante à la surface du jet	112
5.2.3.2	Pression convectée	113
5.2.4	Conclusion	113
5.3	Cas 3 : Avec potentiel électrique	115
5.3.1	Contexte	115
5.3.2	Application à l'électro-aérospray	116
5.3.3	Modèles développés	116
5.3.3.1	Pression analytique	116
5.3.3.2	Champ électrique calculé	117
5.4	Synthèse	118
6	Conclusion	119
6.1	Discussion générale	119
6.1.1	Complémentarité avec les expériences de Berri (2018)	119
6.1.2	Modèles électriques	121
6.2	Perspectives	123
6.2.1	Traitement des données PDA	123
6.2.2	Courant du spray	125

6.2.3	Trajectoires des gouttelettes	125
6.2.3.1	Motivation	125
6.2.3.2	Pistes d'études	126
6.3	Synthèse des travaux	128
Annexes		131
A Outils de traitement d'image		133
A.1	Démonstration de la mesure de hauteur utilisée	133
A.2	Correction gamma	134
A.3	Présentation de la fonction <i>Reslice</i>	136
B Études préliminaires aux expériences		137
B.1	Équivalence débit-pression de gaz dans le dispositif expérimental	137
B.2	Influence du positionnement de l'arrivée de gaz	139
B.3	Analyse sonore du spray	141
C Champ de phase		143
C.1	Équation de Cahn-Hilliard	143
C.2	Paramétrage numérique du champ de phase	145
D Études diverses sur le jet de liquide		149
D.1	Analyse de stabilité linéaire du jet	149
D.2	Champ électrique au voisinage du jet	154
D.3	Traitement des données de simulation du jet	155
D.3.1	Modèles à repère « local »	155
D.3.2	Modèles à repère « fixe »	155
E Traitement des données obtenues en PDA		157
E.1	Période d'oscillation du cône	157
E.2	Influence de la tension sur la population de taille des gouttes	161

Table des figures

1.1	Différentes formes des produits utilisés pour le traitement de l'allergie.	4
1.2	Schéma illustrant les composants du patch Viaskin®.	5
2.1	Schéma de fonctionnement de l'électrospray.	12
2.2	Schéma de fonctionnement de l'aérospray.	13
2.3	Schéma de fonctionnement de l'électro-aérospray.	14
2.4	Cliché du cône de Taylor en électrospray.	15
2.5	Recirculation expérimentales en électrospray.	16
2.6	Simulations numériques du cône de liquide en électrospray.	17
2.7	Illustration du régime transitoire.	18
2.8	Exemples de géométries en flow focusing.	18
2.9	Montages spécifiques d'étude du cône de liquide en aérospray.	19
2.10	Différents modes de rupture du jet liquide.	21
2.11	Schéma de principe de l'impression en jet d'encre continu.	22
2.12	Géométries spécifiques du flow focusing pour des applications biomédicales	25
2.13	Schéma de montage pour l'ionisation par électro-flow focusing (EFF)	25
3.1	Coupe et photo de la chambre d'aérospray.	29
3.2	Vue inférieure des buses utilisées.	29
3.3	Vue en coupe de la buse.	30
3.4	Montage caméra-objectif.	32
3.5	Orifice bouché d'une buse	33
3.6	Ordre de grandeur attendu de la période d'oscillation du cône.	34
3.7	Exemple de prise de vue du cône de liquide.	36
3.8	Algorithme utilisé dans le traitement des images expérimental.	37
3.9	Domaine du résolution du modèle.	41
3.10	Fonctionnelle ϕ du champ de phase.	42
3.11	Maillage utilisé dans la simulation du cône d'aérospray et d'électro-aérospray. . .	47
3.12	Solveurs et méthodes utilisés dans la résolution du modèle numérique.	48
3.13	Ensembles de paramètres pour le développement d'un modèle de jet.	51
3.14	Deux types de référentiels utilisés.	52
3.15	Modes de fragmentation du jet en fonction de We_G	54
3.16	Mode de fragmentation du jet en fonction du We_{RL}	54
3.17	Photos des différents jets en fonction du débit liquide.	55
3.18	Géométrie et conditions limites pour le modèle du jet.	56
4.1	Indicateurs des régimes.	62
4.2	Vitesse maximale du gaz en fonction du maillage.	63
4.3	Période T obtenue en fonction du pas de temps maximal du solveur δt	64
4.4	Benchmark effectué sur le nombre de cœurs de calcul.	65

4.5	Photographie d'une bulle d'air dans le cône de liquide en régime stationnaire.	66
4.6	Taille de la recirculation en fonction du diamètre intérieur de la buse.	67
4.7	Morphologies de l'écoulement obtenues par simulation numérique.	67
4.8	Configuration usuelle et modifiée en flow focusing.	68
4.9	Influence de H' sur la taille de recirculation s_R	69
4.10	Résultats des simulations pour plusieurs H'	69
4.11	Effet du décentrage de la buse.	70
4.12	Visualisation du cône de liquide.	70
4.13	Désaxage de la buse et de l'éjecteur.	71
4.14	Diamètre du jet adimensionné en fonction du débit liquide.	72
4.15	Taille de la cellule de recirculation en fonction du débit liquide.	72
4.16	Origine de la recirculation.	73
4.17	Taille de la recirculation en fonction de la pression de gaz.	75
4.18	Clichés du cône pour deux valeurs extrêmes de pression appliquée.	75
4.19	Influence de la pression ΔP_g sur le diamètre du jet d_j (résultats numériques).	76
4.20	Rayon du cône stable en fonction de la différence de potentiel.	77
4.21	Influence de l'électricité sur la taille de recirculation.	77
4.22	Influence de la viscosité liquide μ_l sur la taille s_R de la recirculation.	78
4.23	Visualisation expérimentale de la recirculation.	79
4.24	Schéma de modes de principe de la taille de recirculation.	79
4.25	Évolution de la hauteur de la goutte.	81
4.26	Effet du nombre d'oscillations capillaires sur la hauteur du cône.	82
4.27	Influence de D'_i sur la période d'oscillation du cône τ	83
4.28	Schéma de deux configurations géométriques de H'	84
4.29	Écoulement simulé pour deux valeurs de H'	85
4.30	Effet de la rugosité sur la hauteur du cône.	85
4.31	Période d'oscillation en fonction du débit liquide (numérique).	86
4.32	Période d'oscillation en fonction du débit liquide (expérimental).	87
4.33	Nombre d'oscillations capillaires en fonction du nombre de Reynolds.	87
4.34	Confrontation expérimentale et numérique de $n_o = f(\text{Re}_l)$	88
4.35	Illustration de l'oscillation du cône.	89
4.36	Illustration des fonctions T_1 et T_2 en fonction de Q_l	90
4.37	Effet de la pression de gaz sur la courbe en paliers.	91
4.38	Effet du nombre de Weber sur la période d'oscillation.	92
4.39	Influence de la tension de surface sur la période d'oscillation.	92
4.40	Effet de la viscosité du liquide sur la période d'oscillation.	93
4.41	Diagramme de stabilité d'écoulement du cône de liquide.	94
4.42	Influence de H sur le débit seuil entre les deux régimes.	95
4.43	Configuration géométriques du flow focusing et du flow blurring.	96
4.44	Domaines de mode dans un plan (D'_i, H')	98
4.45	Diagramme de régime d'écoulement du liquide dans un plan $(\text{Re}_l, \text{We}_g)$	99
4.46	Influence de la viscosité du gaz sur le cône d'aérospray.	99
4.47	Paramètres géométriques de la buse D_n et α	100
4.48	Influence de D'_i sur la ligne de transition entre les régimes d'écoulement.	101
5.1	Rayon du jet (repère fixe).	104
5.2	Allure de ϵ_q (repère fixe).	105
5.3	Temps d'arrêt t_a (repère fixe).	106
5.4	Coefficient r_g/r_j en fonction du temps (repère fixe).	106
5.5	Rayon du jet (repère local).	107

5.6	Temps d'arrêt (repère local).	108
5.7	Allure de ϵ_q (repère local).	109
5.8	Allure de la pression à la surface du jet (contraint).	110
5.9	Rayons des gouttes produites en fonction du temps (repère fixe).	112
5.10	Coefficient r_g/r_j en fonction de la pression appliquée à l'interface.	112
5.11	Valeur du coefficient r_g/r_j en fonction de la pression appliquée ΔP_g .	113
5.12	Valeur du coefficient r_g/r_j en fonction de la pression appliquée ΔP_g .	114
5.13	Influence du potentiel électrique sur les instabilités de surface.	115
5.14	Schéma représentant le domaine d'étude dans le modèle de jet électrisé.	117
5.15	Contraintes électriques et pneumatiques	117
6.1	Simulations et expériences en électro-aérospray.	119
6.2	Période d'oscillation (ordre de grandeur) en fonction de H .	120
6.3	Profils différents de vitesse des gouttes pour une même configuration.	124
6.4	Spray et dépôt simulés à l'aide d'un premier modèle.	126
A.1	Illustration de la mesure de hauteur.	133
A.2	Illustration de la correction gamma.	134
A.3	Exemple de corrections gamma.	134
A.4	Illustration de la fonction <i>Reslice</i> utilisée.	136
B.1	Calibration en débit/pression de gaz expérimentale.	137
B.2	Géométries étudiées en fonction du type d'entrée de gaz.	139
B.3	Résultats des simulations numériques.	139
B.4	Profil de la vitesse axiale adimensionnée dans les deux cas étudiés.	140
B.5	Spectre sonore enregistré en plaçant le micro au niveau du spray.	141
C.1	Fonction initialisée avec trois valeurs du paramètre ϵ différentes ($\chi = 1$).	145
C.2	Influence de ϵ sur le transport de ϕ .	147
C.3	Influence de χ sur le transport de ϕ .	147
D.1	Taux de développement de l'instabilité.	152
D.2	Tracé du champ électrique normé.	154
D.3	Exemple de donnée spatiale obtenue avec le modèle simulé.	155
D.4	Exemple de donnée temporelle générée avec le modèle simulé.	156
E.1	Tracé de δt en fonction du temps.	158
E.2	Tracé de δt en fonction du temps.	158
E.3	Densité de δt .	159
E.4	Densité de δt .	159
E.5	Période d'oscillation en fonction de H .	160
E.6	Pourcentage de gouttes autour de la taille médiane.	161
E.7	Coefficient de variation en fonction de la taille moyenne.	162

Nomenclature

Nombres adimensionnels

τ	Période d'oscillation
s_R	Taille de la cellule de recirculation
Re	Nombre de Reynolds
We	Nombre de Weber

Constantes

ϵ_0	Permittivité du vide
P_{atm}	Pression atmosphérique

Propriétés fluides

ϵ_g	Permittivité du gaz
ϵ_l	Permittivité du liquide
γ	Coefficient de tension de surface
μ_g	Viscosité du gaz
μ_l	Viscosité du liquide
ρ_g	Densité du gaz
ρ_l	Densité du liquide
σ_l	Conductivité du liquide

Grandeurs physiques

ω_0	Taux de développement des instabilités
τ_e	Temps de relaxation de la charge
τ_h	Temps hydrodynamique
τ_s	Temps capillaire
τ_v	Temps de convection
\vec{E}	Champ électrique
\vec{u}	Vitesse du fluide considéré
p_e	Pression électrostatique
q_s	Charge électrique surfacique
q_v	Charge électrique volumique
r_j	Rayon du jet liquide
t	Temps
V	Potentiel électrique

Paramètres numériques

χ	Réglage de la mobilité
ϵ	Épaisseur capillaire
λ	Coefficient d'énergie de mixage

ϕ Fonction de champ de phase

Paramètres du procédé

ΔP_g Pression appliquée de gaz

ΔV Tension appliquée

D_i Diamètre intérieur de la buse

D_o Diamètres de l'orifice de l'éjecteur

H Distance buse-éjecteur

Q_g Débit de gaz

Q_l Débit liquide

Chapitre 1

Introduction : Intérêt de l'électro-aérospray

1.1 Contexte

1.1.1 Travaux de thèse

Ce doctorat a été co-financé par la société biopharmaceutique DBV Technologies, dont le siège social se situe à Montrouge (92, France) et le siège industriel à Bagneux (92, France). DBV Technologies développe une solution innovante pour le traitement des allergies alimentaires, le patch Viaskin®. Cette partie a pour but de présenter le contexte dans lequel ces travaux de thèse ont été réalisés.

1.1.2 Importance des allergies alimentaires

L'allergie alimentaire est un problème de santé publique mondial en pleine expansion, depuis les deux dernières décennies. Peu de traitements à ce phénomène existent à l'heure actuelle, bien que plusieurs soient en voie de développement.

L'allergie alimentaire est définie par l'Assurance Maladie¹ comme les différentes réactions du système immunitaire apparaissant après l'ingestion d'un aliment particulier. Ces réactions peuvent être cutanées (apparitions de rougeurs sur la peau), respiratoires ou digestives (troubles intestinaux).

Lors d'un contact avec un allergène, une substance ou un corps organique *a priori* sans danger pour l'organisme (au contraire des bactéries, virus ou parasites), le système immunitaire peut le considérer à tort comme tel et déclencher une réaction de défense naturelle : la création d'anticorps de classe immunoglobuline E (IgE).

Le mécanisme de réaction allergique le plus commun comporte deux étapes (Dubuisson *et al.*, 2002) :

1. La sensibilisation, au premier contact de l'allergène avec le système immunitaire, qui conduit à la production d'IgE spécifiques. Ces derniers se répartissent dans l'ensemble de l'organisme en se fixant sur des cellules cibles. Aucun signe clinique extérieur ne permet de détecter ce phénomène.
2. La réaction allergique, à partir du second contact. Les allergènes viennent se fixer sur les IgE spécifiques (on parle de pontage), ce qui entraîne des réactions en chaînes des cellules cibles qui libèrent des médiateurs chimiques (par exemple l'histamine) favorisant

1. <https://www.ameli.fr>

les réponses allergiques. Durant cette étape, les différentes parties de l'organisme peuvent réagir avec une amplitude variable : c'est la réaction allergique.

En France, les allergies constituent un phénomène en pleine expansion : depuis une vingtaine d'années, le pourcentage d'allergiques a doublé, et se situe maintenant entre 25 et 30% de la population². De nombreux résultats statistiques différents (parfois contradictoires) existent sur les allergies les plus répandues, avec généralement peu de confirmations officielles. Il est donc difficile d'évaluer avec précision la prévalence de ces allergies, car différentes méthodologies d'études sont employées. De plus, ces maladies évoluent au cours du temps. Cependant, on peut constater des nettes progressions pour certaines allergies, comme pour les allergies respiratoires à la fin du XXème siècle, qui sont devenues très répandues à cause de l'évolution environnementale et notamment de la pollution.

Les allergies alimentaires concerneraient jusqu'à 10% de la population française, notamment les enfants³. Dans le monde, la prévalence des allergies alimentaires a été globalement estimée à environ 1-3% chez l'adulte et 4-6% chez l'enfant (Becker *et al.*, 2004). On peut citer les États-Unis, parmi les pays les plus touchés, où plus de 4.5% des habitants sont sujets à une allergie alimentaire (représentant 15 millions de personnes). Parmi ceux-ci, environ 6 millions sont des enfants (moins de 18 ans), soit 7.6% des enfants⁴.

Tous les différents centres de surveillance des allergies s'accordent sur le fait que les allergies alimentaires sont un phénomène en plein développement⁵. Par exemple, aux États-Unis, la prévalence des allergies alimentaires a augmenté de 50% entre 1997 et 2007 pour les enfants. Plus précisément, parmi ces enfants, la prévalence des allergies à l'arachide ou aux noix a plus que triplé (Gupta *et al.*, 2011). Les réactions immunitaires inhérentes aux allergies alimentaires peuvent se manifester avec différents niveaux de gravité, de la simple démangeaison jusqu'au choc anaphylactique qui peut se révéler mortel.

1.1.3 Techniques pour lutter contre les allergies alimentaires

Pour lutter contre les allergies alimentaires, trois alternatives existent, du préventif au curatif : soit éviter l'exposition aux allergènes, soit traiter les différents symptômes apparaissant lors du déclenchement de la réaction allergique (rougeurs cutanées, difficultés respiratoires, etc.), soit traiter la maladie⁶.

La première solution est possible dans certains cas, surtout lorsque l'allergie est alimentaire ou médicamenteuse. Dans ces cas précis, l'allergène est facilement identifiable, et il est possible de minimiser son risque d'exposition. Toutefois, dans d'autres types d'allergies, l'éviction de l'allergène peut être rarement totale ou difficile à effectuer, comme pour les allergies respiratoires.

La deuxième solution, bien qu'utile pour éviter des désagréments ponctuels, peut se révéler contre-productive. En effet, même si les symptômes sont atténués artificiellement, le système immunitaire reste fragile. Un arrêt du traitement après une prise prolongée des médicaments peut amener à une condition encore plus critique des manifestations de l'allergie (comme des chocs anaphylactiques).

La troisième solution, le traitement médical de l'allergie, fait partie de l'immunothérapie : il s'agit de la désensibilisation. Également appelée hyposensibilisation ou immunothérapie allergénique, son principe est d'apprendre au système immunitaire à supporter l'allergène, en exposant régulièrement l'organisme à des petites quantités d'allergènes, afin de réduire progressivement

2. <https://www.inserm.fr>

3. <http://www.francetvinfo.fr>

4. <https://www.foodallergy.org>

5. <https://www.sciencesetavenir.fr>

6. <https://www.ameli.fr>

la réponse immunitaire vis-à-vis de celui-ci⁷. Il existe plusieurs voies d'administration de ces échantillons dans l'organisme, dont les principales sont détaillées ci-dessous :

Immunothérapie sous-cutanée

Cette solution de traitement de l'allergie consiste à injecter de faibles doses d'allergènes par piqûres (en général sur le bras). Ces doses sont délivrées régulièrement (entre une fois par semaine et une vingtaine de fois par an), pendant au moins trois ans. L'opération est pratiquée par un professionnel de l'allergie : un délai d'attente juste après l'injection est nécessaire pour vérifier l'absence de risques de chocs anaphylactiques du patient. Il s'agit donc d'une thérapie longue, peu pratique et non exempte de réactions systémiques.

Immunothérapie sublinguale

L'hyposensibilisation par voie sublinguale (SLIT, SubLingual ImmunoTherapy) est une des formes préférées de l'immunothérapie pour les médecins et les patients⁸. Le principe est de mettre des gouttes ou un comprimé d'allergènes sous la langue et d'attendre sa diffusion dans l'organisme. Le principal avantage de cette méthode est la possibilité d'effectuer cette prise du médicament à domicile, sans avoir besoin de la supervision d'un allergologue. On peut cependant lui reprocher une efficacité légèrement moindre que la méthode précédente, et son coût supérieur (Vandezande, 2007).

Immunothérapie orale

L'immunothérapie orale (OIT, Oral ImmunoTherapy) est une autre manière de délivrer l'allergène dans le corps. Il s'agit de l'administration de pilules de doses croissantes de produit allergisant, quotidiennement pendant plusieurs mois ou années. Il n'existe pas encore de protocoles précis, dans la mesure où cette technologie est encore en développement. Même si cette technologie est prometteuse (Land *et al.*, 2011), elle n'est pas encore prête, pour des raisons de sécurité, à être utilisée pour un traitement généralisé (Sampson, 2013). La société AImmune⁹ est actuellement en phase de développement de ce traitement, qui se révèle efficace mais risqué pour la santé des patients.

Immunothérapie épicutanée

Toutes les méthodes présentées précédemment utilisent le sang comme véhicule de l'allergène dans l'organisme. Le principal avantage de l'immunothérapie épicutanée (EPIT, EPicutaneous ImmunoTherapy) est de ne délivrer l'allergène que dans la partie supérieure de la peau, l'épiderme. Le principe est simple : un patch est appliqué sur la peau du patient, et diffuse l'allergène de manière régulière et continue. Des études cliniques ont prouvé son efficacité avec un risque de réactions systémiques plus faible. De plus, elle est utilisable pour traiter les enfants qui représentent une partie importante de la population touchées par les allergies alimentaires (Jones *et al.*, 2017; Dioszeghy *et al.*, 2011).

Les différentes formes des médicaments utilisés dans le traitement de l'allergie sont présentées Figure 1.1 (de gauche à droite : seringue¹⁰ pour l'immunothérapie sous-cutanée, goutte sublin-

7. <https://www.attitude-prevention.fr>

8. <https://acaai.org>

9. <https://www.aimmune.com>

10. <https://www.ld-medical.fr>



FIGURE 1.1 – Différentes formes des produits utilisés pour le traitement de l'allergie. De gauche à droite : seringue, goutte sublinguale, cachet, patch.

gale ¹¹ pour l'immunothérapie sublinguale, cachet ¹² pour l'immunothérapie orale, patch ¹³ pour l'immunothérapie épicutanée).

Dans le paragraphe suivant, nous abordons la problématique de la production de ces médicaments, de différentes tailles et formes, qui est soumise à des normes strictes.

1.1.4 Production de médicaments

Dans le domaine de l'industrie pharmaceutique, la production des médicaments est soumise à des normes de qualité très strictes : les BPF (**B**onnes **P**ratiques de **F**abrication, ou GMP, **G**ood **M**anufacturing **P**ractices). Ces normes imposent notamment une production finement contrôlée, avec un procédé parfaitement maîtrisé, dans un environnement de type salle blanche, avec des opérateurs qualifiés. C'est pour cette raison que la production de médicaments est souvent confiée à des façonniers (en anglais CMO, **C**ontract **M**anufacturing **O**rganization) qui sont spécialisés dans ce domaine, et ont les équipements nécessaires pour répondre aux demandes commerciales du client.

Malgré la grande diversité des médicaments présents sur le marché de l'industrie pharmaceutique, plusieurs types généraux peuvent être caractérisés :

- ◊ Type « Forme solide » : Les médicaments dont le principe actif est solide, comme les comprimés, cachets, gélules, pastilles, poudre
- ◊ Type « Forme semi-liquide » : Les gels, pommades, crèmes ou différentes pâtes
- ◊ Type « Forme liquide » : Les sirops, lotions, mousses, gouttes optiques.
- ◊ Type « Forme souple » : Groupement des systèmes transdermiques, comme le patch épicutané.

Depuis la croissance rapide du nombre de médicaments, les procédés industriels permettant la fabrication des trois premiers types sont relativement classiques. Les machines de production des façonniers sont donc globalement similaires pour deux produits de même type.

Le médicament, en tant que produit, est une forme galénique : c'est la forme sous laquelle sont présentés les principes actifs (dans le cas du patch, les protéines). Ceux-ci doivent être manipulés avec précaution afin de pouvoir garder leur potentiel d'activité. En outre, le procédé de fabrication est un évènement critique, qui doit préserver la substance active. Dans les risques inhérents à la production du médicament, on peut citer la dénaturation (ou désactivation) des protéines, via une exposition à un environnement hostile (température, pression, voisinage chimique).

11. <http://azsneeze.com>

12. <https://www.indiamart.com>

13. <https://www.dbv-technologies.com>

Nous avons présenté dans les deux paragraphes précédents les différentes formes des médicaments associés à plusieurs types de traitements. Dans les parties suivantes, nous développons le contexte du traitement produit par DBV Technologies, la plateforme Viaskin®.

1.1.5 Patch Viaskin®

La société pharmaceutique DBV Technologies¹⁴ développe le patch Viaskin®, une plateforme technologique brevetée avec de nombreuses applications potentielles en immunothérapie. L'immunothérapie épicutanée, ou EPIT®, utilise le Viaskin® pour administrer des composés biologiquement actifs au système immunitaire sur une peau intacte.

Contenant l'antigène sous forme sèche, le patch Viaskin® permet une très bonne conservation des propriétés immunologiques. Lorsqu'il est appliqué sur la peau, il forme avec elle une chambre de condensation (voir Figure 1.2). L'accumulation d'eau due à la perspiration naturelle de la peau permet la solubilisation de l'antigène, qui pénètre dans les couches supérieures de l'épiderme. Le principe de fonctionnement simplifié du patch, est le suivant :

- a) Le patch, qui contient une couche sèche d'allergènes en son centre, est positionné sur la peau intacte, sans préparation préalable.
- b) La chambre de condensation formée entre la peau et le patch entraîne, grâce à la perspiration naturelle, une hyperhydratation de la peau et une accumulation d'eau.
- c) L'eau accumulée solubilise l'allergène. Sous l'effet de l'hydratation de la peau, l'épiderme devient plus perméable, ce qui permet à l'allergène d'y pénétrer.
- d) Une fois dans l'épiderme, l'allergène est capturé par une population de cellules hautement spécialisées : les cellules de Langerhans. Ces cellules peuvent capter la protéine à la surface de la peau, la traiter et présenter ses épitopes aux lymphocytes présents dans les ganglions lymphatiques.

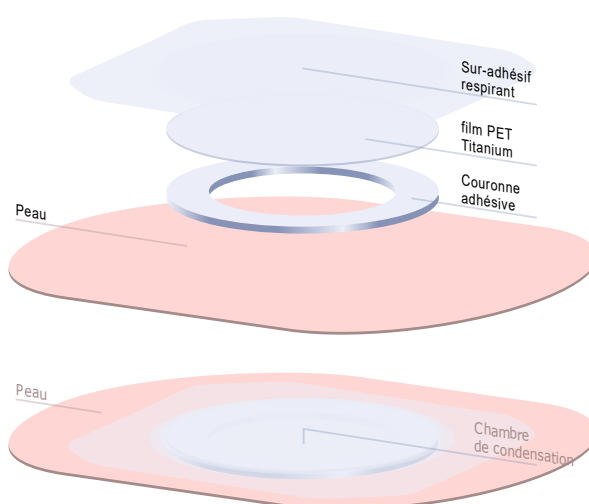


FIGURE 1.2 – Schéma illustrant les composants du patch Viaskin® (DBV Technologies, 2017, Document de référence)

Un schéma du patch illustrant son fonctionnement est visible Figure 1.2.

14. www.dbv-technologies.com

Fabrication du patch

Comme présenté précédemment, le principe actif peut être présenté sous forme solide, notamment poudreuse : pour la fabrication des patchs transdermiques, certains industriels ont fait le choix de recourir au poudrage des protéines sur un support, découpé ensuite (Haralambopoulos et Ryan, 1999; Rabbani et Seville, 2005). Cette méthode a l'avantage de manipuler un lyophilisat de protéines (une des formes permettant un transport plus simple et une plus longue conservation) mais la poudre a l'inconvénient de se fixer difficilement à une surface. Dans plusieurs cas, c'est une adhésivité électrostatique qui est utilisée (par exemple *via* un poudrage par dessous, pour que les petites particules restent fixées mais que les plus grosses tombent), mais la dose délivrée est beaucoup plus difficile à mesurer, ce qui est souvent rédhibitoire dans la production d'un produit pharmaceutique.

Pour le choix du procédé de fabrication du patch de traitement épicutané à l'allergie à l'arachide, le procédé industriel doit être :

- Capable de délivrer une dose fixée de principe actif sur le patch (avec des tolérances massiques déterminées).
- Inoffensif vis-à-vis des protéines afin d'éviter toute altération d'efficacité du produit.
- Adaptable à une cadence industrielle, avec rendement suffisamment élevé pour assurer une production répondant à la demande sur le marché pharmaceutique.
- Reproductible, afin que tous les patchs produits répondent aux spécifications définies.
- Apte à produire des patchs de forme désirée, visuellement acceptable pour le patient allergique.

La solution retenue par DBV Technologies a été le dépôt des protéines sur un patch en partant d'un principe actif sous forme liquide. En effet, il s'agit d'un procédé efficace, correspondant aux contraintes de production ci-dessus.

1.1.6 Utilisation de l'électrospray

Il y a une dizaine d'années, le procédé d'électrospray a été choisi pour assurer la production des patchs Viaskin®. Le principe de ce procédé est de soumettre un liquide à un fort champ électrique afin de former un nébulisat de fines gouttelettes. En pratique, le liquide s'écoule d'une buse métallique, portée à un haut potentiel, et fait face à une surface cible mise à la masse. Les forces électriques en présence contraignent le liquide à prendre la forme d'un cône, qui accélère donc le liquide en un jet, suivi par un spray de gouttelettes de taille caractéristique $\sim 5 \mu\text{m}$. Les gouttelettes sont ensuite guidées par le champ électrique en direction de la cible, et sont ensuite collées par un effet électrostatique sur la surface. Afin de produire les patchs Viaskin®, le principe actif est sous forme liquide. Il est ensuite sprayé sur une surface plane, en l'occurrence un film plastique PET (Polytéréphthalate d'éthylène) recouvert d'une couche nanométrique de titane conducteur.

Les avantages de l'électrospray sont multiples : en effet, le nébulisat formé a des gouttes très petites, et qui s'évaporent en un temps très court (soit pendant le vol, soit au contact du film plastique, qui peut être chauffé). Cette propriété permet d'obtenir un dépôt de protéines sèches, qui adhèrent au substrat grâce à des forces d'adhésion de type van der Waals.

Cependant, l'électrospray possède certains inconvénients, comme la dépendance forte du spray aux propriétés fluides de la formulation (viscosité et conductivité électrique). Les protéines contenues dans ce liquide, soumises à une forte tension, peuvent être dénaturées (c'est-à-dire perdre leur fonction biologique). De plus, la présence constante d'un fort champ électrique peut conduire à des claquages (au-delà d'un seuil appelé *tension disruptive*, ou de *claquage*).

L'électrospray est donc une technique riche et pratique, mais il faut adapter les paramètres du procédé pour l'utilisation d'un liquide précis, parfois au détriment du rendement industriel.

Ainsi, la technique d'électrospray est concluante, mais semble devoir être optimisée pour la rendre plus robuste et moins dépendante de la conductivité du liquide.

1.1.7 Introduction de l'électro-aérospray

Dans ce contexte, il peut être judicieux de chercher à modifier le procédé de fabrication des patches. Le sprayage par moyens électrohydrodynamiques est très utile dans le sens où c'est une des techniques qui permet la production de gouttelettes les plus fines, et qu'il permet un contrôle directionnel de ces dernières.

La problématique industrielle est donc de trouver une technique gardant les différents avantages de l'électrospray (ES) tout en évitant ses inconvénients. Un compromis réside dans la technique d'électro-aérospray (EAS), qui provient d'une technique hydrodynamique formant un jet fin, utilisée notamment dans le domaine pharmaceutique ou microfluidique (l'aérospray, AS). En pratique, il est possible de considérer ce procédé selon deux approches distinctes (Gañán-Calvo *et al.*, 2006; Berri, 2018) :

1. L'EAS est une adaptation du procédé d'ES auquel on substitue une partie de l'énergie nécessaire à la formation du spray, électrique initialement, en aéraulique, ce qui permet de diminuer les différents risques liés à la trop haute tension.
2. L'EAS est une extension du procédé d'AS auquel on ajoute une énergie électrique permettant un contrôle plus précis du spray.

Une des problématiques que cette thèse se propose d'étudier est la détermination de l'approche la plus pertinente convenant à l'étude de l'EAS.

1.2 Sprays

1.2.1 Applications

Les travaux présentés dans ce manuscrit sur l'électro-aérospray se placent dans un contexte global d'étude des sprays et aérosols. Il est possible de trouver ceux-ci en abondance, dans des domaines allant de la santé à l'industrie automobile, en passant par des dispositifs de la vie courante, utilisés quotidiennement.

Santé

Dans le domaine médical, plusieurs types de sprays sont utilisés. Une des applications les plus connues est le dispositif d'inhalation pour l'asthme¹⁵. Il permet de délivrer les bouffées d'un médicament directement dans les bronches, et peut être utilisé soit lors d'un traitement de crise (en dilatant rapidement les bronches), soit pour un traitement de fond (prise quotidienne agissant sur une inflammation chronique). Dans ces traitements, les effets secondaires sont limités et l'action est rapide, ce qui en fait un dispositif médical souvent préconisé par les médecins.

Moteur à combustion

Dans l'industrie automobile, mais également aérospatiale, les moteurs modernes, à combustion et explosion, fonctionnent grâce aux techniques d'injection. Le Diesel, par exemple, est un composé moins volatil que l'essence. Le développement de moteurs spécifiques à ce carburant a amené à la création et à l'optimisation d'injecteurs spéciaux, permettant une atomisation fine (et donc une évaporation suffisante dans la chambre de combustion).

Impression

Une application quotidienne des sprays regroupe toutes les techniques d'impression. Ces sprays peuvent être confinés et précis, comme dans le cas de l'impression par jet d'encre, ou bien plus grossiers et ouverts, par exemple pour la peinture en carrosserie ou les graffitis en art.

Extincteurs

Dans le domaine de la sécurité anti-incendies, les atomiseurs sont représentés par les extincteurs (notamment automatiques à eau, ou *sprinklers*), qui permettent de couvrir une large surface de gouttelettes d'eau, à partir d'un jet liquide à forte pression.

Agriculture

En agriculture, la diffusion dans les champs de produits destinés à améliorer la résistance des récoltes (pesticides) est souvent effectuée par une application de spray. La technique consistant à déposer un brouillard de gouttelettes s'appelle l'épandage, et peut permettre de délivrer également des engrais ou des boues d'épurations, par exemple dans les champs de culture.

1.2.2 Enjeu de la modélisation

Les sprays appartiennent à un type spécifique d'écoulement diphasique, caractérisé par un mouvement dans une direction principale, et qui suppose la phase liquide présente dans une forme

15. <https://www.ameli.fr>

discrète de gouttelettes ou ligaments, tandis que le gaz est dans une forme continue (Sirignano, 1999). L'étude physique des sprays est souvent complexe, et doit être simplifiée par des hypothèses tirées de l'expérience (distribution des tailles et vitesses des gouttes, angle du spray, etc). Cependant, le matériel expérimental pour une caractérisation la plus complète possible du spray peut être coûteux. De plus, l'expérience ne permet parfois pas d'aller au-delà d'un certain niveau de détail (notamment l'étude de la fragmentation d'un jet en gouttes en fonction des conditions environnantes). Pour cette raison, la modélisation a une place importante dans l'étude de ces procédés : elle permet d'améliorer la compréhension physique des phénomènes observés.

Le principe de la modélisation est d'établir un modèle numérique représentant les différents phénomènes physiques du procédé industriel, pour le décrire, et de prédire les influences des différents paramètres sur le résultat.

1.3 Plan du manuscrit

Dans cette introduction, nous avons vu que le développement d'un procédé industriel robuste et optimal est nécessaire pour produire des patches dans une démarche industrielle de qualité. Dans ces travaux de thèse, nous nous proposons d'étudier et de développer un tel procédé *via* la modélisation et la simulation numérique, avec une validation expérimentale.

Dans le chapitre 2, nous effectuons une revue de littérature, qui a trois objectifs majeurs : i) présenter le principe des deux principales techniques de spray (aérospray et électrospray) afin d'introduire le procédé d'électro-aérospray dans le contexte de la thèse, ii) mettre en évidence les résultats des travaux expérimentaux et numériques sur l'aspect physique des procédés, puis iii) d'étudier les différents moyens utilisés dans la littérature pour modéliser, analytiquement ou numériquement, les différents phénomènes inhérents aux procédés.

Le chapitre 3 est consacré à présenter la méthodologie utilisée dans ces travaux de thèse. Premièrement, nous abordons le montage et le protocole expérimental utilisés. Ensuite, le problème est mis en équations, en mettant l'accent sur les décisions portant sur le choix des modèles pour l'aspect diphasique, et nous présentons les algorithmes (méthodes numériques) utilisés.

Nous avons décidé de séparer les différents domaines d'études (selon une logique présentée dans le chapitre 2) , et de construire au fur et à mesure un modèle complet. Par conséquent, nous présentons au chapitre 4 les résultats obtenus (numériquement et expérimentalement) sur le comportement du cône de liquide, tandis que le chapitre 5 porte sur l'étude du jet liquide et de sa fragmentation en gouttelettes micrométriques.

Enfin, le chapitre de Conclusion fait l'objet d'une synthèse générale sur l'état actuel des résultats obtenus, puis expose les différentes perspectives ouvertes par ces travaux de thèse dans le contexte de sa réalisation.

Chapitre 2

Revue de bibliographie

Nous avons vu dans la partie précédente le besoin industriel d'un procédé stable et robuste pour le sprayage de principes actifs pharmaceutiques afin de produire des patchs anti-allergies. Le procédé d'électro-aérospray (EAS) peut être une solution satisfaisant ces critères. Développée depuis plusieurs années (Gañán-Calvo *et al.*, 2006), cette technique d'atomisation reste jeune avec de nombreuses compréhensions et optimisations à effectuer. Le procédé d'EAS peut être décomposé comme la combinaison de l'électrospray (ES) et de l'aérospray (AS).

L'électrospray (ES) est un procédé connu depuis le début du XX^{ème} siècle. Il a de nombreuses applications telle la spectrométrie de masse par ionisation (Fenn *et al.*, 1990) ou pour effectuer des dépôts (Jayasinghe et Suter, 2006) de cellules. Toutefois, il doit encore être optimisé et amélioré pour produire des patchs anti-allergies. En effet, les formulations de principes actifs, composés de protéines, sont des liquides dont la conductivité électrique est élevée (Chong *et al.*, 2016). Cette propriété physico-chimique, qui influe sur la charge électrique portée par le liquide, est une variable critique dans les modes de l'électrospray (Rosell-Llompart et Fernandez de La Mora, 1994; Gañán-Calvo *et al.*, 1997; Fernandez de La Mora, 2007). En effet, pour sprayer un liquide plus conducteur, une augmentation du courant électrique est nécessaire, risquant de dénaturer les protéines dans la formulation liquide.

Pour contourner cette difficulté, plusieurs travaux sont réalisés sur le flow focusing, une technique de sprayage qui n'utilise pas d'électricité. Elle a l'avantage de produire également des gouttelettes micrométriques, avec régularité et robustesse (Gañán-Calvo et Barrero, 1999). L'aérospray (AS) est l'utilisation de cette technique afin de générer un spray permettant un dépôt.

Avant de présenter les méthodes utilisées et les résultats obtenus, un l'état de l'art sur les différentes connaissances physiques propres aux phases principales des procédés d'ES, AS et EAS est effectué. Après la présentation de ces trois procédés et le rappel de la décomposition spatiale des zones d'écoulement (§ 2.1), nous explicitons les principales études numériques portant sur le cône de liquide dans chacun des cas (§ 2.2). Les recherches expérimentales de Zeleny (1914, 1917) et analytiques de Taylor (1964, 1969) montrent l'importance de la compréhension des dynamiques d'écoulement du liquide dans les procédés de type cône-jet.

Nous présentons ensuite les problématiques de fragmentation du jet, menant à la création des gouttelettes (§ 2.3). L'analyse de stabilité linéaire de Rayleigh (1879) a motivé le développement de modèles analytiques plus complexes, adaptés à l'ES (Hartman, 1998) et à l'AS (Gordillo *et al.*, 2001).

Le nébulisat formé et les différentes applications des procédés de spray sont étudiés ensuite (§ 2.4). Plusieurs moyens d'étude et de caractérisation des gouttes sont présentés, ainsi que différentes extensions possibles de ces procédés.

2.1 Présentation des procédés

Les procédés de spray étudiés dans cette thèse sont schématisés Figures 2.1, 2.2 et 2.3. L'objectif de cette partie est de les présenter brièvement.

2.1.1 Électrospray

L'électrospray est un procédé de pulvérisation électrohydrodynamique (PEHD) (Ehouarn, 2001). Le principe de cette technologie est de soumettre un liquide, sortant d'une buse, à un fort champ électrique (voir Figure 2.1) afin de le sprayer. Cette buse, portée à haute tension, est placée à quelques centimètres d'un support, mis à la masse. En fonction du champ électrique ainsi créé, du débit liquide, des dimensions de la buse et des propriétés physico-chimiques du liquide (densité, viscosité, conductivité, tension de surface), le volume de liquide forme un cône convergeant vers un jet micrométrique (Taylor, 1964). Celui-ci se fragmente, produisant un chapelet de gouttes chargées, qui sont dirigées vers le support en suivant les lignes du champ électrique (Grifoll et Rosell-Llompart, 2012).

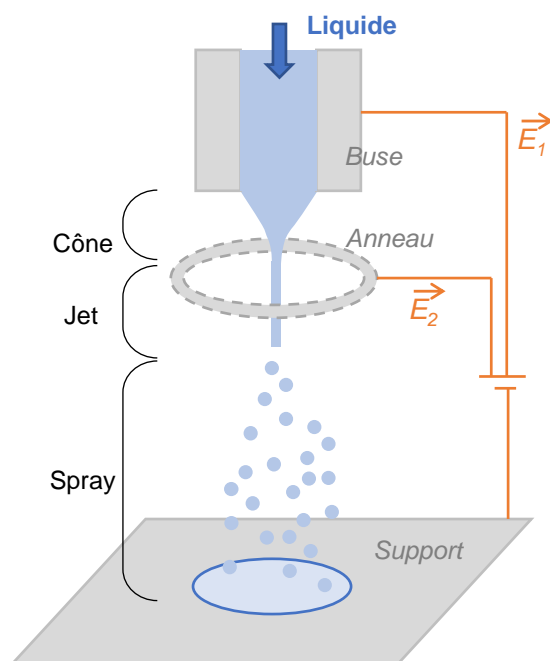


FIGURE 2.1 – Schéma de fonctionnement de l'électrospray.

Il est possible de modifier le champ électrique pour un meilleur contrôle de la trajectoire des gouttelettes, en ajoutant un anneau chargé. Une modulation du potentiel et de la géométrie de cet anneau permet une variabilité du dépôt des gouttes sur le support (taille, épaisseur) (Gasser, 2016; Agostinho, 2013).

2.1.2 Aérospray

L'aérospray est un procédé pneumatique de génération de gouttelettes, fondé sur une technique originalement en deux dimensions, appelée *flow focusing* (Anna *et al.*, 2003). Le but de

cette dernière est la production de gouttes ou bulles en utilisant uniquement des moyens hydrodynamiques pour le sprayage. L'appellation « aérospray » est propre à nos travaux. Dans la littérature cette technique est plus communément appelée « flow focusing 3D » (Gañán-Calvo, 1998) ou tout simplement « flow focusing ».

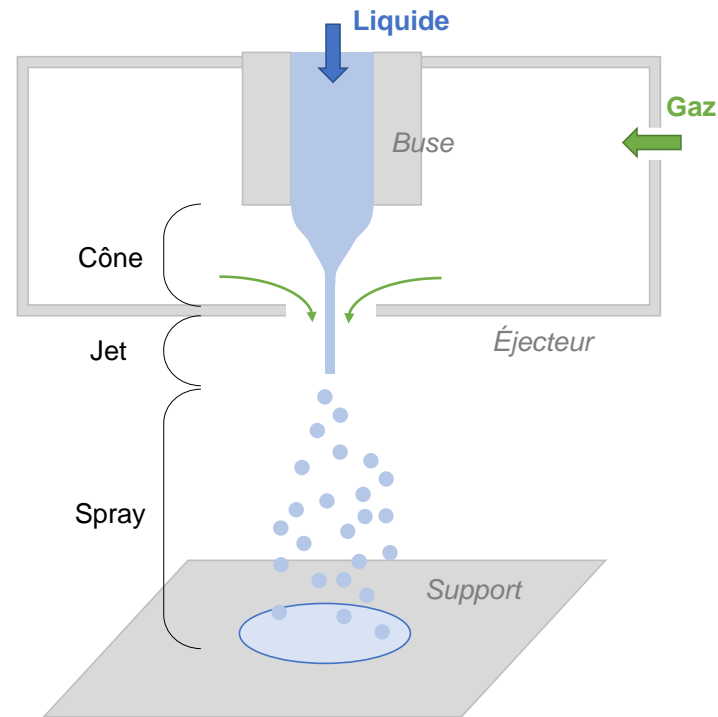


FIGURE 2.2 – Schéma de fonctionnement de l'aérospray.

Deux fluides sont considérés : la phase dispersée, et la phase continue. L'écoulement du premier est modifié par l'interaction avec le second, qui réduit son diamètre et permet la formation d'un jet. Ce jet se fragmente ensuite en gouttelettes de propriétés (tailles, vitesses) variables en fonction de la configuration du système (Gordillo *et al.*, 2001; Gañán-Calvo et Montanero, 2009).

Dans le procédé d'aérospray, le fluide dispersé est liquide et le fluide continu est gazeux (Berri, 2018). Le dispositif se compose principalement de deux pièces : i) la *buse*, et ii) la *chambre pressurisée* percée, dont la partie inférieure est appelée *éjecteur*. La buse est insérée dans la chambre et le liquide s'écoule par son centre. L'éjecteur de la chambre sous pression comporte un orifice de sortie. La différence de pression de gaz entre l'intérieur de la chambre et l'extérieur (pression atmosphérique) crée un écoulement de gaz rapide à l'endroit de l'orifice de sortie (voir Figure 2.2).

2.1.3 Électro-aérospray

Le concept de l'électro-aérospray est de combiner les physiques des deux procédés précédents (Gañán-Calvo *et al.*, 2006). Ainsi, la buse par laquelle est injecté le liquide est placée dans une chambre pressurisée. De plus, un premier champ électrique est appliquée entre la buse et l'éjecteur, et un second entre l'éjecteur et la surface de dépôt. Expérimentalement, il est prouvé que ce procédé possède de nombreuses similitudes avec l'aérospray, en optimisant le spray formé (tailles et vitesses des gouttes) Berri (2018); Forbes *et al.* (2013). Gañán-Calvo *et al.* (2006) montrent que, pour une certaine gamme de débit liquide, l'ajout d'électricité à l'aérospray permettait de

diminuer le diamètre des gouttelettes, et de rendre le spray plus stable qu'en l'électrospray.

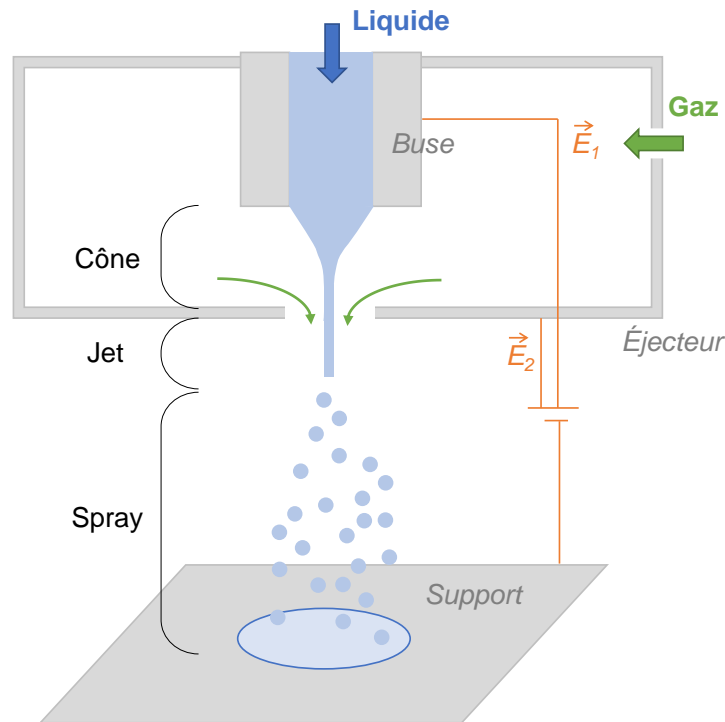


FIGURE 2.3 – Schéma de fonctionnement de l'électro-aérospray.

2.1.4 Organisation de la revue de littérature

Pour chacun de ces trois procédés de spray, il est possible de décomposer l'étude de l'écoulement en trois parties (Gañán-Calvo et Montanero, 2009; Gañán-Calvo et Barrero, 1996).

- le liquide en sortie de buse, qui peut être assimilé en première approche à un cône tronqué (**cône**, § 2.2);
- le cylindre liquide formé à l'extrémité de ce cône (**jet**, § 2.3);
- et les gouttelettes produites par la rupture de ce dernier en vol (**spray**, § 2.4).

L'étude bibliographique suivante reprend l'organisation spatiale de ces parties.

2.2 Cône de liquide

2.2.1 Électrospray

Le cône de liquide en électrospray a été la première partie étudiée du spray : Taylor (1964) présente en premier un modèle de la forme du cône. Il prédit un angle théorique pour le cône de liquide d'environ 98.6° sous plusieurs approximations, en résolvant l'équation différentielle gouvernant le champ électrique. En effet, en faisant les hypothèses que le cône est infini, que la surface est équipotentielle et en appliquant une condition sur le gradient du potentiel, il trouve que le cône théorique sans jet a un angle légèrement plus grand qu'un angle droit.

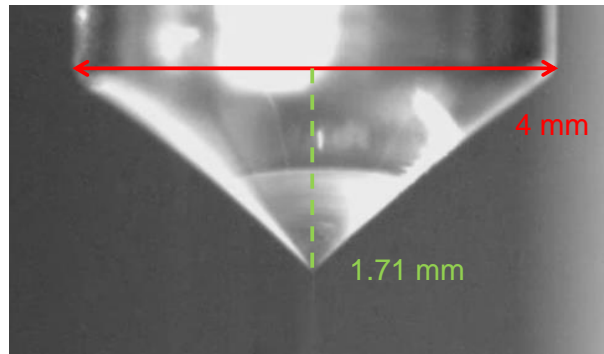


FIGURE 2.4 – Cliché du cône de Taylor en électrospray (Gasser, 2016). Le diamètre de la buse est 4 mm, et la hauteur du cône est environ 1.71 mm.

Une application de ce calcul est proposée dans (Gasser, 2016) : pour une buse de diamètre extérieur de $d = 4$ mm, la hauteur h attendue du cône (d'angle α) est :

$$h = \frac{d}{2} \cotan\left(\frac{\alpha}{2}\right) \approx 2 \cotan(49.3^\circ) \approx 1.72 \text{ mm} \quad (2.1)$$

Cette valeur est très proche de la valeur expérimentale. L'écoulement liquide en sortie de buse, appelé *cône de Taylor* (Fenn *et al.*, 1990), désigne donc spécifiquement la forme quasi-conique que prend un liquide conducteur soumis à un champ électrique.

Il est connu depuis le XVIII^{ème} siècle que la dynamique de fluides électrifés est un domaine complexe en physique. Le premier à avoir expérimenté l'effet d'un champ électrique sur un liquide est Nollet (1749). Il affirme que « les fluides s'écoulent toujours avec plus de rapidité quand on les électrifie », par exemple dans le cas du « sang qui s'élanche de la veine ouverte d'un homme électrifé ». Rayleigh (1882) montre l'influence du champ électrique sur l'écoulement du fluide, en expliquant que des instabilités se développent à la surface d'une goutte chargée. La goutte, initialement sphérique, devient pointue avec une ou plusieurs extrémités, et la charge électrique accélère le liquide au niveau de ces pointes, libérant un chapelet de gouttelettes.

Même si l'effet de la charge électrique sur un liquide est connue, l'électrospray est caractérisé scientifiquement au début du XX^{ème} siècle. Zeleny (1914) publie l'un des premiers diagrammes de modes de l'électrospray, ainsi qu'une description détaillée des décharges. Il présente les différents états de la goutte attachée à une buse, soumise à une tension. Mais c'est en 1917, utilisant la technologie de photographie moderne, qu'il arrive à avoir des images nettes du procédé (Zeleny, 1917).

En marge des découvertes de diverses applications en électrospray (Fenn *et al.*, 1990), plusieurs revues expérimentales extensives sont ainsi effectuées (Cloupeau et Prunet-Foch, 1989; Fernandez de La Mora et Loscertales, 1994) sur le comportement du cône de liquide (en investiguant différents modes), mais aussi sur le jet de liquide et sa fragmentation en gouttelettes. Dès ces premières études, le mode cône-jet est présenté comme un régime robuste, reproductible et produisant un spray fin.

Le cône de Taylor fait l'objet d'avancées ponctuelles depuis 1990. En 1986, en effectuant des expériences sur l'électrospray, Hayati *et al.* (1986) découvrent les recirculations dans le cône de liquide (voir Figure 2.5 gauche) et les expliquent de la façon suivante :

1. Le flux rapide de gaz autour du liquide a un effet de cisaillement à sa surface,
2. Le liquide dans la couche limite du cône est accéléré,
3. Par conservation du débit liquide, le jet, ne pouvant pas se dilater (étant compressé par l'air), éjecte le liquide au débit Q_l ,

4. Si le débit entraîné par le gaz Q_D est plus élevé que Q_l , alors il y a un débit de reflux $Q_D - Q_l$ dans le cône.

Hayati *et al.* (1987) caractérisent cette cellule de recirculation comme très dépendante de la conductivité du liquide, à l'aide d'un modèle.

C'est en étudiant ces mouvements particuliers de fluide en électrospray que Shtern et Barrero (1994) découvrent une recirculation d'un autre type : le *swirl*, ou tourbillon. En effet, il peut exister dans certaines configurations choisies (propriétés du liquide/champ appliqué) une composante azimutale du même ordre de grandeur que les autres composantes de la vitesse, formant un vortex asymétrique (Figure 2.5 droite). En outre, ils affirment qu'il existe un couplage direct entre les propriétés (taille, charge) des gouttelettes et les mouvements de convection/conduction électrique à l'intérieur du ménisque. Pour cette raison, plusieurs études diverses se portent sur ces recirculations, par exemple en variant les propriétés du liquide (viscosité, conductivité électrique (Barrero *et al.*, 1999)) ou encore celles de l'écoulement (débit liquide, tension (Barrero *et al.*, 1998)).

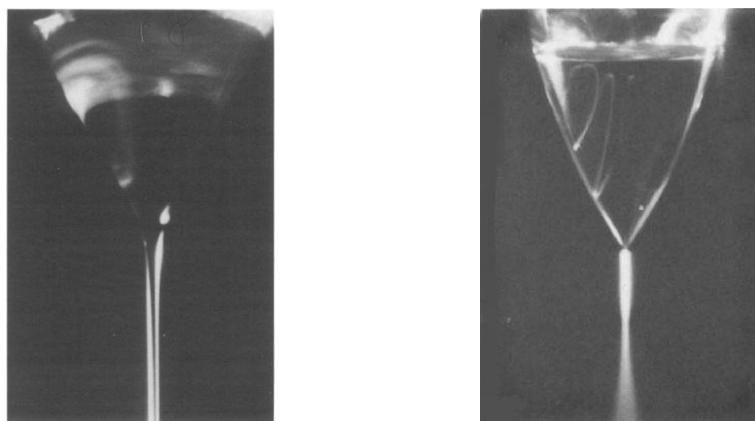


FIGURE 2.5 – (Gauche) Recirculation en électrospray (Hayati *et al.*, 1986) ; (Droite) En tourbillon (Shtern et Barrero, 1994).

La modélisation et la simulation numérique permettent également d'améliorer les connaissances sur le mode cône-jet en électrospray. Dans sa thèse, Hartman (1998) propose un modèle permettant de calculer la fonction représentant l'interface liquide/gaz en mode cône-jet (voir Figure 2.6 gauche).

Au début des années 2000, les outils de calcul devenant de plus en plus performants, il devient possible de simuler non pas uniquement la surface libre du liquide mais l'écoulement général avec notamment le champ de vitesse instantané dans le volume du liquide (*bulk*). Lastow et Balachandran (2006) publient les résultats de leurs simulations (voir la Figure 2.6 droite). Ils effectuent une confrontation de leur modèle numérique avec les résultats expérimentaux, et ils caractérisent le domaine du mode cône-jet, identique aux résultats expérimentaux de Gañán-Calvo *et al.* (1997) lors de leur étude du courant en électrospray. De plus, ils prédisent avec succès la taille des gouttes, validée expérimentalement.

Fernandez de La Mora (2007) effectue une revue des connaissances sur le cône de Taylor, et propose un modèle analytique de sa surface d'un ordre supérieur à celui, où le cône est triangulaire, de Taylor. Il montre que la forme de l'interface peut être courbée, en fonction de propriétés comme la conductivité du liquide. Ce résultat est ensuite utilisé dans la détermination de la fragmentation des gouttelettes et dans l'angle du spray formé, variable en fonction du cône.

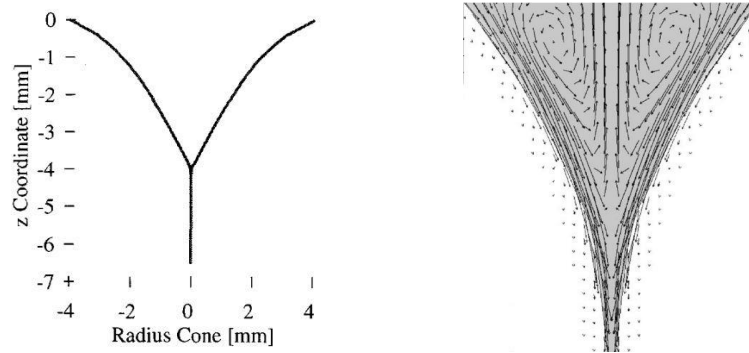


FIGURE 2.6 – (Gauche) Résultat d’une simulation sur les contours du cône d’électrospray (Hartman, 1998) (Diamètre de la base du cône $D_i = 8$ mm, Tension appliquée $V_b = 20$ kV); (Droite) Champ de vitesse de l’écoulement à l’intérieur du cône d’électrospray (Lastow et Balachandran, 2006) ($D_i = 1$ mm, $V_b = 4$ kV).

2.2.2 Aérospray

L’aérospray dérive d’une technique mettant en jeu deux fluides (*flow focusing*), inventée pour répondre à des besoins de production de gouttelettes en microfluidique. Le flow focusing en deux dimensions était originellement utilisé sur des micropuces, notamment pour produire des microsystèmes électromécaniques (MEMS). Anna *et al.* (2003) publie en 2003 les résultats d’une étude expérimentale caractérisant les différents modes de production de gouttelettes ou « dispersions » (voir Figure 2.8 (gauche)). Ils montrent qu’il était possible de choisir la taille et le motif des gouttelettes produites en réglant finement les débits des deux fluides (eau/huile).

Un des inventeurs de la technologie tridimensionnelle du flow focusing est Gañán-Calvo (1998). Le principe du flow focusing 3D est d’extruder le procédé bidimensionnel en trois dimensions, à l’aide d’un capillaire liquide pour servir d’entrée de liquide et permettre la création d’un écoulement de gaz autour du liquide. Dans cet article, ses expériences montrent la réduction drastique du rayon du jet, la stabilité et surtout la robustesse du procédé.

La forme du liquide dans le dispositif lors de son écoulement est assimilable à un cône; pour cette raison, le flow focusing est répertorié dans les techniques de *cône-jet*. L’étude de l’écoulement liquide à la sortie de la buse met en évidence deux régimes principaux (Si *et al.*, 2009) :

- ◊ Le régime *stationnaire* « dynamique » (SD), où la forme que prend l’écoulement de liquide est stable et constante : l’interface liquide/gaz est à l’équilibre. Il s’agit d’une stabilité globale.
- ◊ Le régime *transitoire* (T), où l’écoulement du liquide est périodique entre la buse et l’éjecteur (voir Figure 2.7). Si *et al.* (2009) décrivent ce mouvement en étapes : d’abord, une goutte se forme et grandit. Sa taille augmente ensuite jusqu’à ce qu’un jet fin soit créé et sorte par l’orifice de sortie. Enfin, le ménisque recule vers la buse après avoir libéré un chapelet de gouttelettes.

Gañán-Calvo (1998) présente également les résultats de ses expériences ainsi qu’une comparaison avec une étude adimensionnelle du diamètre de jet théorique, effectuée avec l’équilibre des forces inertielles du liquide et du gaz lors de la formation du jet. Il approxime analytiquement le diamètre d_j du jet en flow focusing en fonction notamment du débit liquide Q et de la différence de pression de gaz dans la chambre ΔP (voir Équation (2.2)). Ils obtiennent une indépendance au premier ordre de d_j aux dimensions géométriques du procédé (diamètres de la buse et l’éjecteur,

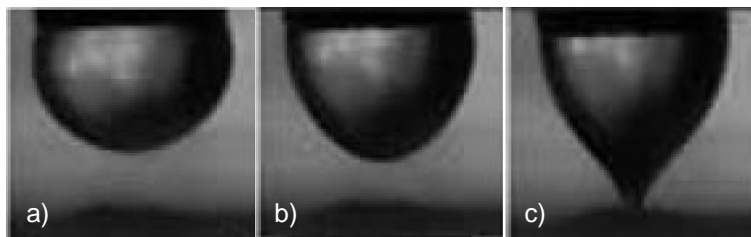


FIGURE 2.7 – Illustration du régime transitoire avec trois photos prises lors de l’oscillation du cône (Si *et al.*, 2009). (a) La goutte, accrochée à la buse, grandit progressivement, (b) est soumise à l’action du gaz et (c) émet un jet par l’orifice de sortie, avant de reculer (a). L’oscillation du liquide, périodique, est une succession de ces trois étapes.

hauteur entre les deux pièces). Dans cette expression, ρ est la densité volumique du liquide.

$$d_j \simeq \left(\frac{8\rho}{\pi^2 \Delta P} \right)^{1/4} Q^{1/2} \quad (2.2)$$

De l’industrie pharmaceutique à l’industrie automobile, la production d’aérosols à une échelle microscopique est une thématique en plein développement, et cette technique alors nouvelle correspond aux spécifications attendues. On peut citer le besoin d’optimisation dans le domaine d’odorisation des gaz naturels (ASME, 1992) ou dans le procédé de combustion de carburant (Williams, 1958).

Gañán-Calvo (2005) caractérise en 2005 un nouveau mode : l’atteinte d’un régime marginal turbulent, le flow blurring, avec les mêmes paramètres physiques qu’en flow focusing, mais en modifiant la géométrie pour satisfaire un critère (seuil du LCP, Lateral Cylindrical Passageway) :

$$\psi = \frac{H}{D_o} \leq 0.25 \quad (2.3)$$

où H est la distance entre la buse et l’éjecteur et D_o le diamètre de l’orifice de l’éjecteur. En effet, si ce seuil est atteint, à débit gazeux fixé, l’endroit où l’air atteint sa vitesse maximale n’est plus dans l’éjecteur mais entre la buse et l’éjecteur. L’avantage de cette technique est la production de gouttes de plus petites tailles. En effet, une région de mixage se crée dans la zone d’arrivée du liquide, formant des micro-bulles de gaz dans le cône de liquide, et éjectant non pas un jet mais plusieurs ligaments de liquide, améliorant l’efficacité énergétique du spray. Il est vu par la suite qu’un régime de production des gouttelettes, turbulent, mais avec un cône

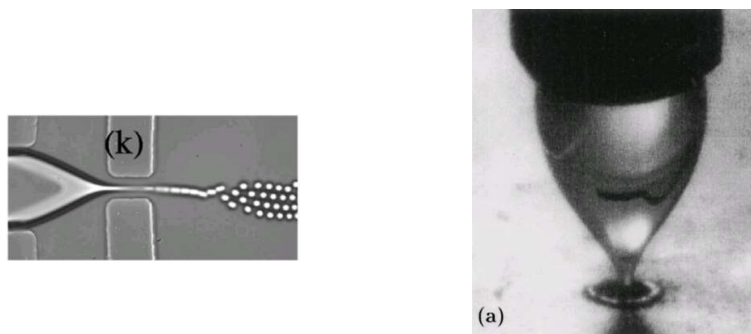


FIGURE 2.8 – (Gauche) Géométrie bidimensionnelle du flow focusing sur une puce Anna *et al.* (2003) ; (Droite) Géométrie tridimensionnelle du flow focusing Gañán-Calvo (1998).

de liquide dans le mode stable, est également possible : Rosell-Llompart et Gañán-Calvo (2008) proposent une classification simplifiée du mode stable en flow focusing en fonction du nombre de Weber de l'écoulement (rapport entre les forces inertielles et les forces capillaires, voir chapitre II - Moyens et méthodes) et du ratio $\psi = H/D_o$. Ils présentent les régimes CFF (Capillary Flow Focusing, dans lesquels les gouttelettes sont produites de manière axisymétrique et contrôlée), le TFF (Turbulent Flow Focusing, où le jet se fragmente de manière asymétrique), et le FB (Flow Blurring, qui se démarque par l'absence de jet et la génération d'un nébulisat polydispersé large).

Jusqu'à 2008, les résultats obtenus sur le flow focusing découlent surtout d'études expérimentales ou purement analytiques. Mais le développement d'un modèle numérique du flow focusing par Herrada *et al.* (2008) conduit à une explication supplémentaire à la physique du procédé : la formation, dans le cône de liquide, d'une cellule de recirculation, selon certaines conditions de débits et pressions fluides. Ainsi, deux expressions analytiques sont confirmées par les simulations : le débit liquide minimum stabilisant le cône Q_{min} , et le maximum Q_R en dessous duquel il y a la présence d'une cellule de recirculation.

La cellule de recirculation à l'intérieur du cône de liquide est par la suite analysée à la fois numériquement, mais aussi expérimentalement, à l'aide de montages utilisant deux capillaires coaxiaux, en injectant de l'encre pour distinguer la cellule dans de l'eau (Gañán-Calvo *et al.*, 2011). En outre, Herrada *et al.* (2008) montrent numériquement que la taille de la boucle de recirculation s_R diminue quand le débit liquide Q_l augmente :

$$s_R \sim A(Q_R - Q_l) \quad (2.4)$$

Nous étudions plus en détail le comportement des cellules de recirculation dans le chapitre consacré au cône de liquide (chapitre III - Cône de liquide).

Les connaissances physiques sur le procédé sont étudiées à l'aide d'outils spécifiques, développés pour observer les différentes zones d'écoulement en flow focusing. Afin de visualiser le cône, Jayasinghe Jayasinghe (2010) utilise une chambre en verre et du liquide coloré dans un environnement lumineux pour avoir la meilleure imagerie possible (voir Figure 2.9 gauche). Gañán-Calvo (1998) propose un autre montage (voir Figure 2.8 (droite)) et place une buse en face d'une boîte percée aspirante, afin d'obtenir une vision plus nette du cône de liquide formé en utilisant une chambre à suction, permettant de s'affranchir d'obstacle pour la prise de vue du cône.

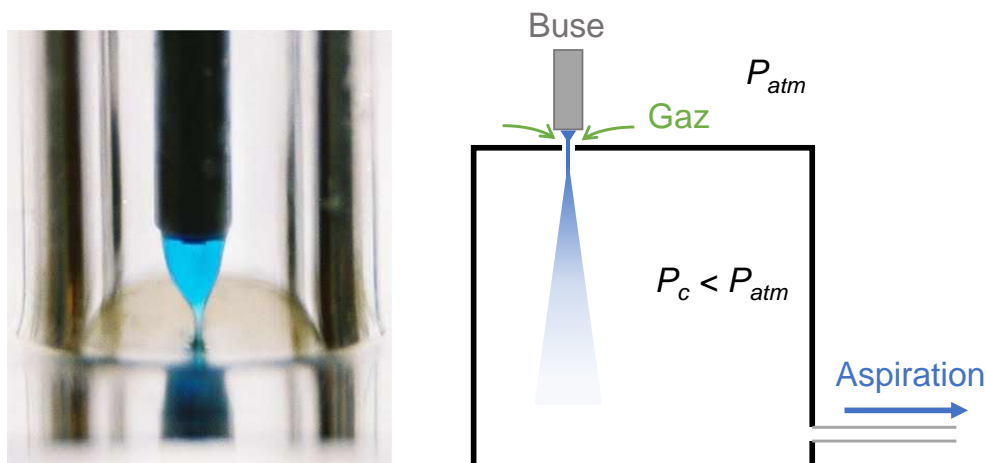


FIGURE 2.9 – (Gauche) Type de montage optimal pour la visualisation du cône (Jayasinghe, 2010); (Droite) Schéma du montage type utilisé par Gañán-Calvo (1998), permettant de s'affranchir d'obstacles pour la visualisation du cône.

La zone du jet est la plus complexe à visualiser. En effet, le jet se forme essentiellement dans l'épaisseur de l'éjecteur, qui est opaque, et se fragmente en sa partie inférieure.

2.3 Jet liquide

Dans cette sous-partie, les différents phénomènes physiques menant à la formation des gouttes *via* la rupture du jet liquide sont abordés. Quelle que soit l'application sous-jacente au procédé d'atomisation, la production des gouttes et le contrôle de leur propriétés (taille, charge) sont primordiaux (Huebner et Chu, 1971) pour la qualité du spray formé. Ainsi, la fragmentation du jet (plus particulièrement dans les modes cône-jet) est une étape clef de l'écoulement électrohydrodynamique (Cloupeau et Prunet-Foch, 1989).

Il existe plusieurs méthodes mathématiques théoriques pour étudier la rupture du jet (Villermaux, 2007; Eggers et Villermaux, 2008). L'une des plus classiques est l'analyse de stabilité linéaire, qui permet de prédire par le calcul la taille des gouttelettes produites. Cette étude analytique, originalement effectuée par Rayleigh (1879), se place ici dans un régime d'écoulement cône-jet, et analyse uniquement le jet. Les perturbations qui se développent à sa surface grandissent jusqu'à la rupture de l'interface.

2.3.1 Analyse de stabilité linéaire axisymétrique

Un volume de liquide isolé dans l'espace n'est soumis qu'aux forces de cohésion (tension de surface) (Weber, 1931). Ces forces sont normales à l'interface liquide/gaz, et dirigent le système vers un état d'énergie minimale. Dans le cas d'une goutte isolée, les effets de tension superficielle cherchent à minimiser la surface de l'interface pour un volume donné. D'après le théorème isopérimétrique, ce minimum est une sphère (Malo et Renault, 2012).

Plateau (1873) étudie la rupture d'un jet liquide en gouttes, et prend des clichés instantanés de jets. Rayleigh (1879), une dizaine d'années plus tard, pose les bases de l'analyse de stabilité linéaire appliquée à ce problème.

Il prédit ainsi, pour un jet liquide inviscide (les effets visqueux sont négligés), les modes privilégiés de fragmentation du jet avec le calcul. Cette analyse, développée en annexe D.1, exprime le rayon théorique des gouttelettes r_d , en fonction du rayon du jet r_j :

$$r_d \simeq 1.89 r_j \quad (2.5)$$

Par la suite, différents termes sont ajoutés afin de gagner en généralités. Dans un premier temps, Tomotika (1935) introduit la notion de viscosité dans son analyse, notamment dans une configuration liquide/liquide.

Cette prise en compte conduit à obtenir des longueurs d'ondes de perturbations plus élevées et des taux de développement plus faibles, ce qui signifie que les gouttes produites sont plus grandes ($r_d > 1.89 r_j$) et mettent plus de temps pour se former.

2.3.2 Électrospray

La partie précédente a présenté une analyse de stabilité classique, celle de Rayleigh (1879) dans un cas simple axisymétrique, lorsque le jet de liquide n'est soumis à aucune force. L'ajout d'une force à travail non nul sur le cylindre de liquide (le jet), *via* un nouveau terme dans l'équation bilan, vient souvent briser la symétrie (Hartman, 1998).

Hartman (1998) décrit plusieurs modes d'indicateur m (dépendant des paramètres), pouvant se développer (voir Figure 2.10 gauche). Dans le premier cas $m = 0$, la rupture du jet est variqueuse, c'est à dire axisymétrique. Pour $m = 1$, c'est le mode « *whipping* » (de l'anglais *whip*,

fouet). Le mode $m = 2$ est celui du jet ramifié : il est caractéristique de la limite du domaine de fonctionnement du mode cône-jet en électrospray, les ramifications provenant directement du surplus de charge électriques à la surface du jet, entraînant des fissions coulombiques locales.

Gañán-Calvo et Montanero (2009) montrent que la principale force agissant sur le paramètre m , en électrospray, provient du fort champ électrique autour du jet. Avec un champ électrique faible ou nul, c'est l'instabilité axisymétrique de Rayleigh-Plateau qui prédomine et conditionne la production de gouttelettes ($m = 0$). Avec un champ plus élevé, des perturbations asymétriques se développent et les gouttes en résultant produisent un spray côneique ($m = 1$ ou 2).

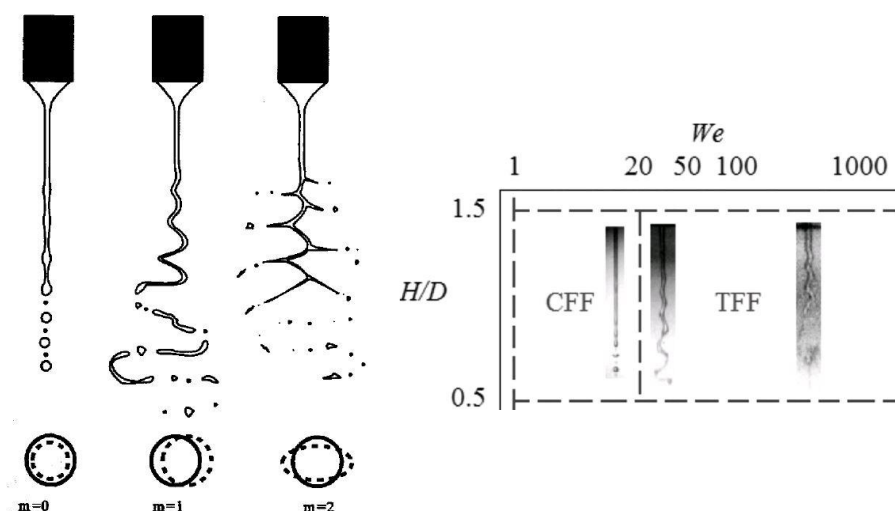


FIGURE 2.10 – Gauche : Description de trois modes présents dans l'électrospray dans la thèse de Hartman (1998). Le premier est la rupture axisymétrique variqueuse, le deuxième la fragmentation plane latérale, et le troisième le mode « jet ramifié ». Droite : Caractérisation des modes en flow focusing, adapté de Rosell-Llompart et Gañán-Calvo (2008), en fonction du nombre de Weber. CFF : Capillary Flow focusing ; TFF : Turbulent Flow Focusing.

L'analyse de stabilité linéaire dans le cas d'un écoulement électrohydrodynamique a été initiée à la fin du XIXème siècle. La charge est considérée dans une analyse de stabilité linéaire avec les travaux de Basset (1888a,b), prolongés par Schneider *et al.* (1967) et corrigés par Taylor (1969). Huebner et Chu (1971) résument alors ces travaux. L'expression obtenue est similaire à celle de Rayleigh (équation (2.5)), mais avec une composante électrique additionnelle dans le terme $(\lambda/2\pi r_j)_{\max \omega}$.

$$r_d = \left(\frac{3\pi}{2} \right)^{1/3} \left(\frac{\lambda}{2\pi r_j} \right)_{\max \omega}^{1/3} r_j \quad (2.6)$$

Où ω et λ sont respectivement le taux de développement et la longueur d'onde de la perturbation. Les auteurs donnent plusieurs valeurs d'exemples en fonction d'un paramètre Γ qu'ils définissent proportionnellement à V_0^2 , où V_0 est le potentiel du jet. Pour $\Gamma = 0$, l'équation (2.5) est retrouvée, et en augmentant cet indicateur du potentiel, le coefficient est réduit : par exemple, pour quelques milliers de Volts, on peut obtenir $r_g \approx 1.12 r_j$ ($\Gamma = 6$). Cet aspect, en d'autres termes, explique qu'un jet chargé électriquement produit des plus petites gouttelettes qu'un jet non chargé.

Application : jet d'encre continu

Il existe un exemple d'application quotidienne utilisant un jet de liquide chargé : l'impression. Les deux grandes familles de techniques d'impression sont le jet d'encre continu (CIJ, Continuous

Ink-Jet (Jeanmaire *et al.*, 2003)) et le goutte à la demande (DOD, Drop on Demand (Fromm, 1984))¹. La seconde consiste globalement à éjecter des gouttes d'un réservoir à l'aide d'impulsions (mécaniques, acoustiques, etc). C'est la première technique (jet d'encre continu) qui est le plus proche de l'étude du jet en électrospray : un jet d'encre est formé à la sortie d'une buse. Il est ensuite possible de choisir quelles gouttes envoyer sur la cible, en soumettant la zone de rupture du jet à un champ électrique (*via* une électrode cylindrique par exemple). Cela a pour effet de charger certaines gouttes, qui vont ensuite pouvoir être dirigées *via* un autre champ électrique à l'aide de la force de Lorentz. La Figure 2.11 présente le principe de fonctionnement de cette impression :

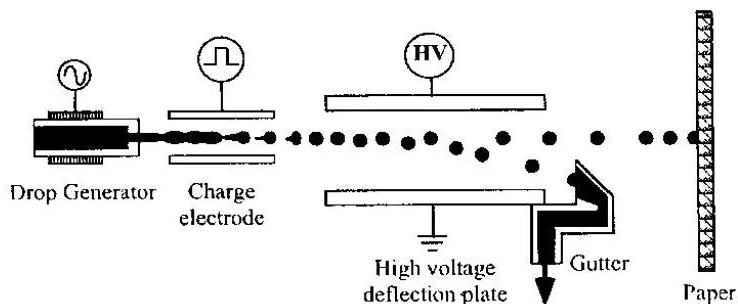


FIGURE 2.11 – Schéma de principe de l'impression en jet d'encre continu (Le, 1998). La première électrode, placée autour de la zone de fragmentation du jet, charge certaines gouttes. La seconde les dévie, soit sur la cible, soit dans une gouttière où elles seront réinjectées plus tard.

Il existe plusieurs variantes à ce système, souvent propres à chaque société qui commercialise ces imprimantes (Kodak, Epson, Canon, Xerox, Hewlett-Packard, etc). On peut citer également le système à déviation multiple (Le, 1998), qui consiste à charger les gouttes à imprimer (et donc placer une gouttière en face de la buse pour récupérer les gouttes neutres), et à modifier le potentiel de l'électrode de déviation (selon plusieurs paliers, à des fréquences de plusieurs mégahertz) pour pouvoir faire varier les trajectoires des gouttes d'encre produites et donc leur endroit d'arrivée sur la cible.

2.3.3 Aérospray

En aérospray, Si *et al.* (2009) montrent expérimentalement que la taille et la vitesse du jet de liquide varient selon les modes de production de gouttelettes.

- ◇ Le mode *dripping* (goutte-à-goutte), où les gouttelettes sont produites directement à la sortie de l'orifice de sortie. La taille de celles-ci est supérieure au diamètre du jet de liquide en amont, mais leur distribution est régulière (de faible écart-type) (Utada *et al.*, 2007).
- ◇ Le mode *jetting*, où la rupture du jet a lieu en-deçà de l'orifice de sortie, et les gouttelettes produites sont sensiblement de même taille que le jet de liquide. En marge de cet écoulement sont présentes des gouttelettes « satellites », de très petites tailles. La distribution générale des gouttelettes est alors irrégulière (Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2008).
- ◇ Le mode *turbulent*, caractérisé par des nombres de Reynolds élevés (supérieurs à 3000). Le jet liquide est perturbé en sortie par les tourbillons, qui modifient la propriété d'axisymétrie du système (Gañán-Calvo et Barrero, 1999; Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2008). Les propriétés des gouttes produites sont plus difficilement contrôlables que dans les autres modes, leurs distributions de tailles étant généralement polydispersées.

1. <http://cerig.pagora.grenoble-inp.fr/memoire/1999/jet-d-encre-1.htm>

Cette caractérisation de Si *et al.* (2009) rejoint les conclusions de Rosell-Llompart et Gañán-Calvo (2008) : la symétrie des instabilités est régie par le niveau de turbulence de l'écoulement de gaz autour du jet liquide, *via* le nombre de Weber du système (Figure 2.10 droite). Ce nombre, caractéristique de l'écoulement, est le rapport entre les forces inertielles et les forces capillaires. Pour des faibles nombres de Weber, le flow focusing est dit « capillaire », et la production des gouttes admet une symétrie axiale. Pour les nombres de Weber élevés, le flow focusing est « turbulent » et les auteurs observent une fragmentation hélicoïdale du jet (Villermaux *et al.*, 2004; Marmottant et Villermaux, 2004).

Plusieurs travaux proposent une extension analytique de l'étude effectuée par Rayleigh (Équation 2.5) dans le cas d'un jet standard (qui ne serait pas entouré d'une « gaine » de gaz). Gordillo *et al.* (2001) publie en 2001 une étude de stabilité analytique du profil de vitesse dans le jet formé par le flow focusing : ici le diamètre caractéristique est d'un diamètre de 30 μm environ, et plusieurs modèles sont développés : A/ le jet liquide de rayon constant et de vitesse uniforme, entouré d'un champ de vitesse d'air calculé, et B/ le profil de vitesse dans le gaz donné analytiquement et la vitesse du jet calculée. Ses résultats montrent une différence faible avec le cas idéal de Rayleigh.

Souvent, la comparaison analytique/expérimentale est effectuée en mesurant le diamètre moyen des gouttelettes dans le spray, et en le comparant avec l'expression $d_g = 1.89d_j$, où d_j est la formule du diamètre du jet (équation (2.2)) (Gañán-Calvo, 1998; Vega *et al.*, 2010). Les résultats sont en bonne corrélation, ce qui étaye l'hypothèse faite de rupture du jet axisymétrique idéale.

2.3.4 Électro-aérospray

Peu de travaux sont publiés sur l'aspect physique de l'électro-aérospray. Gañán-Calvo *et al.* (2006) utilisent l'approximation de Rayleigh $d_R \simeq 1.89 d_j$, où d_R et d_j sont les diamètres moyens des gouttelettes et du jet dans leurs recherches. Ils parviennent à obtenir une corrélation entre les diamètres théoriques des gouttelettes et leurs observations expérimentales.

Gañán-Calvo (2007) développe l'analyse de stabilité linéaire du jet en ajoutant un terme électrique et obtient une relation de dispersion pour les instabilités à la surface du jet, mais en faisant plusieurs approximations (liquides de faible viscosité et forte conductivité).

2.4 Spray

2.4.1 Électrospray

La création d'un spray à l'aide d'électricité fait l'objet de nombreuses recherches depuis plus d'un siècle (Nollet, 1749; Zeleny, 1914, 1917). Mais la décennie 1990-2000 est la plus prolifique pour les études de l'électrospray, notamment grâce à l'invention de la méthode d'ionisation par électronébuliseur pour la spectrométrie de masse par Fenn *et al.* (1990), dont les travaux sont récompensés par le prix Nobel de chimie en 2002. Même si la littérature sur cette technique est vaste (plus de 1500 articles publiés par an en spectrométrie de masse), peu d'articles sont consacrés à la mécanique des fluides inhérente au procédé (Fernandez de La Mora, 2007).

Moyens expérimentaux d'étude

Les différentes techniques de mesures de la distribution des tailles de gouttes sont des méthodes génériques pour la caractérisation des sprays, comme la vélocimétrie doppler (en anglais PDA, Phase Doppler Anemometry) ou l'imagerie rapide. Nous les présentons au chapitre II - Méthodologie.

Dans la plupart des études de l'électrospray appliqué, l'accent est mis sur la compréhension expérimentale ou analytique de la physique dans le spray. Un exemple d'application biomédical est découvert par Tang et Gomez (1994b) : ils caractérisent en 1994 le spray produit en cône-jet et présentent une application pour un inhalateur (Tang et Gomez, 1994a) (*via* une neutralisation des gouttelettes produites). L'objectif est de produire un spray dont les gouttelettes sont les plus petites possibles, puis de les entraîner *via* un flux de gaz afin de les faire respirer au patient (Ijsebaert *et al.*, 2001).

2.4.2 Aérospray

La technique du flow focusing a plusieurs applications, notamment dans le secteur biomédical, à la fois dans sa version bidimensionnelle (Chong *et al.*, 2016; Xi *et al.*, 2017) que tridimensionnelle (Martín-Banderas *et al.*, 2005; Jayasinghe et Suter, 2006; Arumuganathar *et al.*, 2007). Ainsi, elle peut servir à manipuler des nanomatériaux en suspension ou des macromolécules, comme des protéines. Aucun paramètre chimique ou de température ne rentre en jeu dans la physique du procédé (à part *via* les propriétés physiques du liquide comme la densité, la viscosité ou la tension superficielle). Ainsi, le risque de dénaturation des protéines est mineur, critère primordial dans le choix d'un procédé pour une utilisation biomédicale.

Martín-Banderas *et al.* (2005) proposent en 2005 une méthode utilisant deux buses concentriques, permettant la production de gouttelettes encapsulées (voir Figure 2.12). C'est un procédé qui utilise deux liquides : le premier, qui est le principe actif ou autre liquide pharmaceutique, est injecté dans la buse intérieure, et le second, immiscible avec le premier, est injecté dans la buse extérieure. Ainsi, les gouttelettes produites sont principalement des sphères à deux couches, et le second liquide constitue une membrane protectrice autour du principe pharmaceutique. Les résultats de leur étude montrent qu'il s'agit d'une technologie robuste et valable dans une large gamme de viscosités (les résultats sont excellents quel que soit le nombre de Reynolds). Toutefois, il apparaît nécessaire de rester dans une certaine gamme de nombre de Weber afin d'assurer une fragmentation du jet optimale, et ainsi avoir un contrôle sur la taille et la distribution des gouttelettes produites.

Xu *et al.* (2005) étudient cette propriété de contrôle du produit, à la fois en taille, forme et composition : ainsi, ils déposent des particules de plusieurs matières (polymères, bismuth) et plusieurs formes (sphériques, ellipsoïdes, bâtonnets, disques) et les solidifient juste après déposition par polymérisations ou refroidissement.

Arumuganathar *et al.* (2007) et Jayasinghe et Suter (2006) étudient également les dépositions de nanomatériaux biologiques, mais en utilisant la technique du flow focusing de manière empirique. Avec des débits liquides et des pressions de gaz arbitraires, ils parviennent à obtenir un jet qui, composé d'un liquide de très haute viscosité, ne se rompt pas mais produit des fils.

2.4.3 Electro-aérospray

L'optimisation de la production contrôlée de gouttelettes micrométriques, pour différentes applications, conduit à un rapprochement entre les deux techniques vues précédemment : le flow focusing et l'électrospray. Les premiers à effectuer ce rapprochement sont Gañán-Calvo *et al.* (2006), où ils présentent l'électro-flow focusing (EFF).

Les points forts de ce procédé sont de pouvoir sprayer des liquides à une conductivité plus élevée, mais aussi d'être capable de générer des gouttelettes micrométriques, plus petites que celles générées séparément par chacune des technologies (Gañán-Calvo, 2007).

Les applications de l'EFF sont diverses : comme pour le flow focusing, cette méthode apparaît dans la microfluidique, lors d'une configuration liquide/liquide par exemple (He *et al.*, 2010; Kim *et al.*, 2007). Elle a l'avantage de produire une série de gouttelettes fines, avec une possibilité

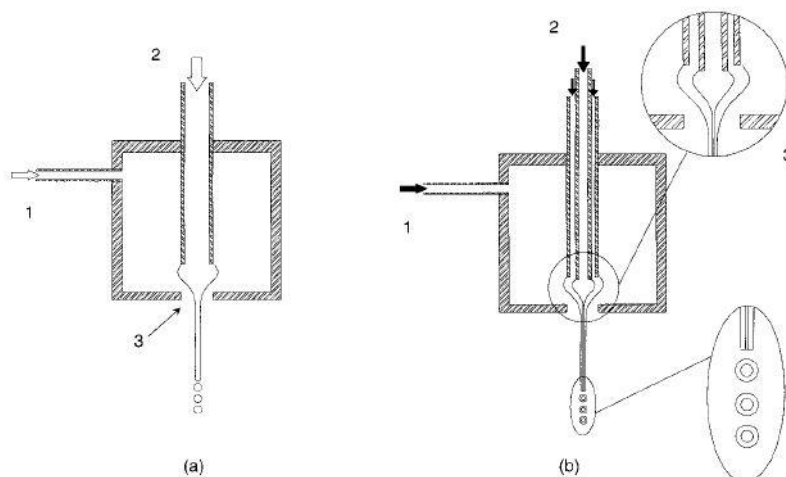


FIGURE 2.12 – Deux types de systèmes de flow focusing utilisés pour les applications biomédicales (Martín-Banderas *et al.*, 2005). (a) Flow focusing simple ; (b) Flow focusing doublé comportant deux buses concentriques, pour la production de gouttelettes encapsulées.

d'encapsulation ou même de tri (Xi *et al.*, 2017). Les études montrent également un nombre plus élevé de régimes atteignables par rapport au flow focusing simple, ce qui donne au procédé une plus grande souplesse et possibilité de personnalisation.

On trouve également une application possible dans la spectrométrie de masse par ionisation (Forbes *et al.*, 2013; Forbes et Sisco, 2014), comme pour l'électrospray simple : voir Figure 2.13 le montage utilisé pour cette application.

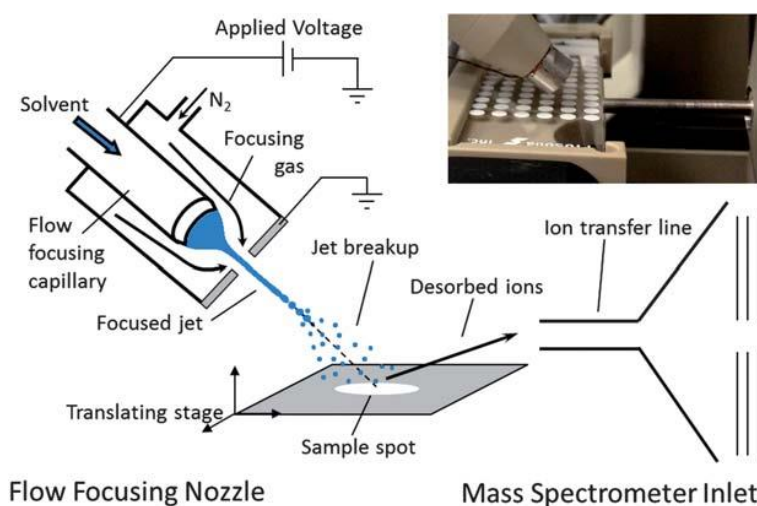


FIGURE 2.13 – Schéma de montage pour l'ionisation par électro-flow focusing (EFF)(Forbes *et al.*, 2013).

2.5 Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons présenté le contexte théorique et expérimental des différents procédés de sprayage dans lequel se placent les travaux de cette thèse.

La technique de l'électrospray est connue depuis plus d'un siècle (Zeleny, 1914, 1917), mais trouve son essor avec l'invention de la spectrométrie de masse par ionisation d'électrospray (Fenn *et al.*, 1990; Fernandez de La Mora, 2007). Globalement, les phénomènes physiques en jeu sont étudiés expérimentalement, numériquement et analytiquement dans plusieurs cas bien distincts (influence des paramètres (Gañán-Calvo, 1997a; Gañán-Calvo *et al.*, 1997; Hartman, 1998; Wilhelm, 2004), modes de spray (Rosell-Llompарт et Fernandez de La Mora, 1994; Jaworek et Krupa, 1999; Agostinho, 2013), liquides aux propriétés variées (Gañán-Calvo, 1997b; Barrero *et al.*, 1998)).

Le procédé d'aérospray, plus récent, est une technique de production de gouttelettes hydrodynamique. Le cône de liquide en sortie de buse est le premier sujet d'étude, et il existe une caractérisation des régimes d'écoulement. Mais certains effets ne sont pas complètement observés, et c'est surtout le régime stationnaire stable qui est étudié dans la littérature. Dans les chapitres suivants, le régime instable en aérospray est étudié plus en détails. Le spray formé est l'objet de mesures expérimentales approfondies. Cependant, il existe encore des phénomènes incompris concernant l'écoulement directement à la sortie de l'éjecteur, tels que la fragmentation du jet. Gañán-Calvo et Montanero (2009) font l'hypothèse d'une fragmentation axisymétrique. De plus, l'effet de turbulence ou de couche de mélange dans l'écoulement pourraient le perturber.

La physique du procédé d'électro-aérospray, récent, est complexe. C'est un aérospray couplé avec un champ électrique, et les phénomènes physiques pouvant intervenir proviennent de ces deux procédés. Pour l'instant, quelques études expérimentales montrent les avantages de cette technique (EAS) par rapport aux deux précédentes (AS/ES) (Gañán-Calvo *et al.*, 2006; Berri, 2018), mais une étude plus complète est nécessaire pour être capable d'utiliser ce procédé hybride dans un contexte industriel.

Dans le chapitre suivant, nous proposons des modèles numériques pour l'étude de chaque phénomène (cône, jet, spray) du procédé. De même, nous présentons le matériel et les protocoles expérimentaux développés.

Chapitre 3

Méthodologie expérimentale et numérique

Ce chapitre a pour objectif de présenter les différents outils, expérimentaux et numériques, nécessaires pour l'étude des procédés d'aérospray et d'électro-aérospray. Premièrement, le montage expérimental utilisé est présenté (§ 3.1.1), ainsi que les différents protocoles expérimentaux (processus) utilisés pour les observations (§ 3.1.2).

L'aspect numérique de l'étude est développé dans un second temps (§ 3.2) : nous effectuons premièrement une revue des nombres sans dimension principaux, nécessaires à l'étude des procédés d'aérospray et d'électro-aérospray.

Afin de mieux comprendre les influences des différents paramètres sur ces procédés, un modèle intégrant le cône et le jet est développé ensuite. Celui-ci est composé de deux parties principales : le premier modèle numérique porte sur le cône de liquide en sortie de buse (§ 3.2.2) et le second sur le jet formé (§ 3.2.3).

Enfin, nous présentons l'implémentation matérielle utilisée pour les simulations numériques (§ 3.2.4).

3.1 Montage et protocoles expérimentaux

Cette partie est consacrée à la présentation des méthodes et protocoles utilisés dans les études expérimentales. Dans un premier temps, le matériel utilisé est présenté (§ 3.1.1). Globalement, les dispositifs expérimentaux sont adaptés de Berri (2018). Les nouveautés expérimentales sont détaillées et expliquées par la suite.

Dans un second temps, les méthodes et protocoles des expériences sont développés (§ 3.1.2). Ces méthodes sont principalement originales, et permettent une étude rigoureuse optimale des phénomènes visés (oscillation du cône). Ce travail a été effectué conjointement avec Michel Matton, stagiaire de Grenoble INP - Phelma en deuxième année d'école d'ingénieurs, entre mai et juillet 2017.

Liste des variables

Les différents paramètres influençant les procédés étudiés sont nombreux. On peut citer :

- Les propriétés liées aux procédés :
 - Le débit liquide Q_l
 - La différence de pression entre la chambre et l'air extérieur ΔP_g
 - La différence de potentiel appliquée entre la buse et l'éjecteur ΔV
- Les propriétés géométriques :
 - Le diamètre intérieur de la buse D_i
 - La distance buse/éjecteur H (en aérospray et électro-aérospray)
- Les propriétés inhérentes aux fluides (les propriétés indicées l et g sont respectivement liées au liquide et au gaz utilisés)
 - Densités ρ_l et ρ_g
 - Viscosités μ_l et μ_g
 - Permittivités ϵ_l et ϵ_g
 - Conductivité σ_l
 - Coefficient de tension superficielle γ pour le couple (l, g)

3.1.1 Matériel

3.1.1.1 Objectifs & Moyens

Pour caractériser le comportement du procédé en fonction des paramètres physiques, le montage expérimental a dû respecter plusieurs contraintes. Le cahier des charges du dispositif était, entre autres :

1. De permettre l'expérimentation de plusieurs configurations avec les principaux paramètres géométriques (D_i et H) ;
2. De contrôler le plus finement possible les entrées fluidiques (liquide/gaz) et de garantir une stabilité dans ces entrées ;
3. De visualiser l'écoulement à l'intérieur de la chambre sous pression (le « cône » de liquide), à une vitesse suffisamment élevée pour détecter le maximum des phénomènes physiques entrant en jeu ;
4. D'être capable de visualiser le jet en sortie d'éjecteur et sa fragmentation.

Nous avons ainsi choisi le montage qui semblait le plus adapté pour ces quatre objectifs, sous la contrainte de coûts de développement maîtrisés.

- a) Compatibilité avec les pièces de la chambre d'électro-aérospray développée par Berri (2018) (en particulier, les buses et cales) ;
- b) Usinage dans des matériaux aux coûts limités, et facilement modifiables.

3.1.1.2 Chambre

Nous avons développé pour cette occasion une chambre spécifique. Adaptée du matériel de (Berri, 2018), elle a été usinée par l'entreprise CIP Pamfou¹. Voir Figure 3.1 des schémas et clichés de celle-ci. La pièce maîtresse est la partie constituant l'armature de la chambre en aluminium. Deux plaques en plexiglas sont vissées sur les côtés de celle-ci (il s'agit des « fenêtres » permettant l'observation de l'écoulement liquide à l'intérieur du dispositif). Il y a en tout quinze vis diverses et quatre joints assurant une étanchéité parfaite.

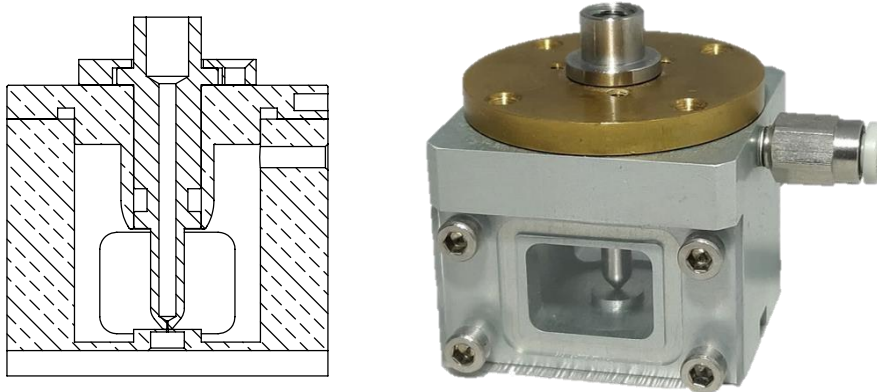


FIGURE 3.1 – (Gauche) Dessin industriel en coupe de la pièce utilisée; (Droite) Photo de la chambre en intégralité, avec ses différents composants.

3.1.1.2.1 Buse

L'effet de la taille de buse sur le phénomène d'oscillation en aérospray a été exploré expérimentalement, avec des buses usinées ayant des diamètres D_i respectifs de 100, 200 et 350 μm (voir Figure 3.2).

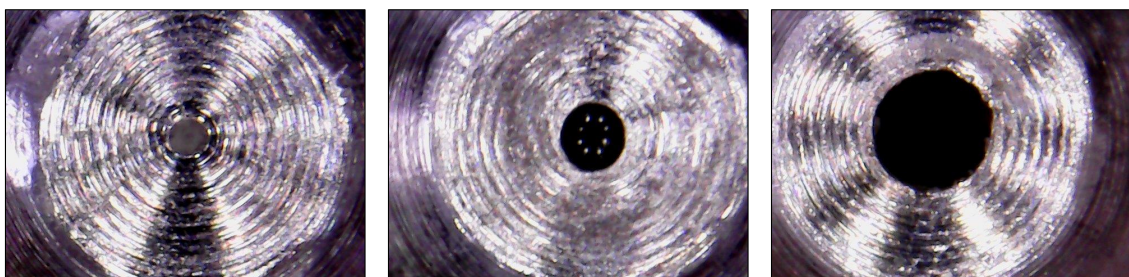


FIGURE 3.2 – Vue de la partie inférieure des buses utilisées dans les expériences. De gauche à droite : $D_i = 100, 200$ et $300 \mu\text{m}$.

1. www.cip-pamfou.fr/

La géométrie de ces buses n'est pas parfaitement droite : en effet, leur surface inférieure présente des microsillons. Ces spirales proviennent du procédé d'usinage (tournage) et donnent une valeur $R_a > 0$ de rugosité à la surface. Celle-ci est définie mathématiquement par :

$$R_a = \frac{1}{L} \int_0^L |Z(x)| dx \quad (3.1)$$

où Z est la hauteur relative de la surface par rapport à la moyenne et L la longueur du segment étudié. Une des contraintes de l'usineur était de respecter la contrainte $R_a < 5 \mu\text{m}$.

Les buses utilisées sont développées dans la thèse expérimentale de Berri (2018), dont les travaux sont eux-même fondés sur les recherches de Groom *et al.* (2005). Le plan de fabrication est présenté Figure 3.3.

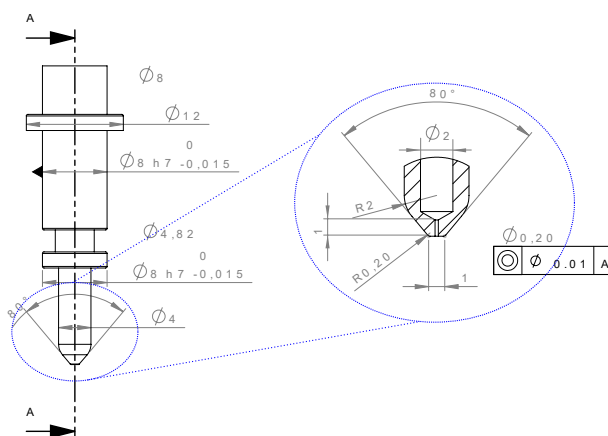


FIGURE 3.3 – (Berri, 2018) Vue en coupe de la buse dessinée. $D_i = 300 \mu\text{m}$.

3.1.1.2.2 Réglage de la distance buse-éjecteur

La distance buse-éjecteur H est un paramètre déterminant dans le procédé d'aérospray, mais la complexité du système rend difficile la mesure exacte de cette distance avec les outils disponibles.

Le réglage de H s'effectue avec un système de cales, insérées entre la buse et la chambre (voir Figure 3.1). Si la buse est mise directement dans la chambre en l'absence de cale, elle est en contact avec l'éjecteur (ce que l'on souhaite éviter), avec un dépassement prévu de $50 \mu\text{m}$. On place alors ces rondelles métalliques pour contrôler la distance H . Cependant, la tolérance sur l'épaisseur et la régularité d'une cale peut atteindre 10% (soit une dizaine de microns pour une cale d'environ 100 à 300 μm d'épaisseur). De plus, le serrage des vis fixant la buse à la chambre introduit un aspect opérateur-dépendant à la définition de H .

Afin de réduire l'incertitude liée à la mesure du H expérimental, une méthode précise, fondée sur un traitement d'image 2D, a été développée, afin d'estimer la valeur de H (après installation des cales et serrage), avec une tolérance plus précise. Cette méthode est présentée en annexe A.1.

3.1.1.3 Circuit liquide

On appelle circuit liquide le chemin parcouru par le liquide entre son réservoir et son dépôt sur un film. Deux cas de figure se sont présentés : dans le premier, un pousse-seringue a été utilisé, dans le second un contrôleur de pression liquide.

Le premier dispositif est un pousse-seringue de type PHD 2000 Infusion, de la marque Harvard Apparatus. C'est un appareil spécialement conçu pour la recherche. Le volume réserve de liquide est stocké dans une seringue à piston. Il faut paramétrer le diamètre de la seringue utilisée la placer dans l'appareil, puis brancher à celle-ci un capillaire muni de connecteurs et férules (pour éviter les fuites). L'autre extrémité de ce capillaire, est à visser dans la buse, déjà montée sur la chambre d'aérospray. Le circuit liquide consistera donc de la seringue, du capillaire et de la buse.

Le second dispositif est un contrôleur de pression liquide de type OB1 MK3 couplé à un débitmètre MFS, tous deux commercialisés par la société Elveflow. Le liquide que l'on souhaite sprayer est placé dans un réservoir pressurisé. On place dans le circuit entre ce réservoir et la buse un débitmètre. L'idée de ce système est d'utiliser une boucle de rétroaction stabilisée par un régulateur PID (Proportionnelle, Intégrale, Dérivée), qui constitue ainsi un asservissement en boucle fermée du système. On peut favoriser manuellement la rapidité d'atteinte de la consigne ou le non-dépassement de celle-ci, par exemple, en réglant les coefficients de pondération du PID.

Nous avons effectué une étude sur l'équivalence de précision entre ces deux appareils. Le signal obtenu par le capteur a été relevé lors d'une utilisation standard avec le dispositif Elveflow, puis sans boucle de rétroaction avec le pousse-seringue. Les deux signaux obtenus sont bruités et ont des valeurs dans un intervalle $[Q_c - 1\%, Q_c + 1\%]$, si on appelle Q_c le débit en consigne. Aucune différence significative n'est remarquée entre les deux signaux. Cependant, le montage constitué de l'appareil Elveflow possède un avantage : l'automatisation de routines, permettant d'effectuer des cycles à plusieurs valeurs de débits liquide en un certain temps. Cette méthode sera donc utilisée majoritairement dans la suite des travaux, mis à part pour l'étude de configurations où le débit liquide Q_l est constant, auquel cas le pousse-seringue sera utilisé.

3.1.1.4 Circuit gaz

Le gaz utilisé dans les différents montages est de l'air comprimé dans des bouteilles (Air Liquide). Après son passage dans un détendeur (afin de convertir la pression à l'intérieur de la bouteille en pression plus basse utilisable dans les appareils), l'écoulement de gaz est maîtrisé à l'aide d'un contrôleur de débit volumique (RM-2000 de la marque Air Liquide). Le débit de gaz entrant dans la chambre est exprimé en litres par minutes. Le gaz passe ensuite dans une jauge de pression (PR-33/80909-10 - Keller) permettant d'observer le couple débit-pression du gaz à chaque instant dans la chambre, ce qui permet de détecter en temps réel toute fuite ou bouchage éventuels.

Dans le dispositif d'aérospray usuel, le contrôle du fluide guidant est primordial. Dans la plupart des études expérimentales effectuées, on fixe la pression dans la chambre où est placée la buse à une valeur $P_g > P_{\text{atm}}$, où P_{atm} est la pression atmosphérique à l'extérieur. La différence entre ces deux pressions $\Delta P_g > 0$ est un des paramètres majeurs dans l'établissement du cône en flow focusing.

Nous faisons en annexe B.1 l'analogie entre les différentes variables p , u_g , Q_g en utilisant le théorème de Bernoulli pour l'écoulement incompressible d'un fluide parfait, et comparons cette équation analytique avec les données expérimentales recueillies.

3.1.1.5 Imagerie rapide

La méthode utilisée pour l'observation du système est l'ombroscopie, qui a l'avantage d'être simple à mettre en place sur la chambre d'aérospray et qui se prête à ce type d'observation (on étudie le mouvement d'un objet, sans chercher à étudier la surface de cet objet particulièrement). La caméra utilisée est la Fastcam Mini UX50 (marque Photron) qui permet de réaliser des vidéos avec des fréquences d'acquisition allant jusqu'à 160 000 images par seconde. La caméra



FIGURE 3.4 – Montage expérimental de l’objectif télescopique Navitar sur la caméra Mini UX50.

est contrôlée *via* un logiciel fourni par le constructeur : Photron Fastcam Viewer. L’objectif utilisé, de la marque Navitar, permet de zoomer douze fois sur le système afin d’obtenir une image optimale. Le montage caméra-objectif est illustré Figure 3.4.

Pour observer des images les plus nettes possibles, il est nécessaire de diminuer au maximum le temps d’exposition de la caméra. Pour ce faire, l’éclairage utilisé est un Effispot ELS-1000, commercialisé par la société Effilux. La puissance de cet éclairage directionnel, sans variations d’intensité lumineuses, est entre 3.5 et 5 millions de lux à 5 cm.

3.1.2 Méthodes

Cette sous-partie a pour objectif de présenter les différentes méthodes expérimentales appliquées, adaptées au fur et à mesure pour s'assurer de la reproductibilité des résultats.

À des fins industrielles, le protocole est détaillé exhaustivement et explicitement au paragraphe § 3.1.2.1. Il s'agit ainsi d'un guide de bonne pratique pour un expérimentateur souhaitant reproduire nos mesures en suivant la même démarche scientifique.

Ensuite, la méthode de prise de vue est détaillée, notamment le paramétrage de la caméra rapide pour l'obtention d'images de qualité optimale.

Enfin, la méthode de traitement d'image est rapidement présentée (le détail des démarches est décrit en annexes A.1, A.2 et A.3).

3.1.2.1 Protocole d'initialisation

3.1.2.1.1 Lavage des composants

Un phénomène est rapidement apparu lors des premières expériences d'aérospray avec de l'eau courante, notamment pour les deux buses $D_i = 100 \mu\text{m}$ et $D_i = 200 \mu\text{m}$: l'encrassement de leur conduit intérieur (voir Figure 3.5). En effet, l'eau courante comporte de fines particules qui sont propices à s'agréger et à former un bouchon empêchant le bon acheminement du liquide dans la chambre (par exemple du calcaire se dépose sur les parois de la buse).

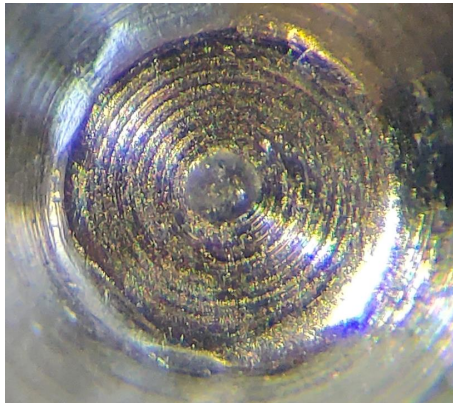


FIGURE 3.5 – Orifice bouché d'une buse de diamètre intérieur $D_i = 200 \mu\text{m}$.

Afin d'éviter ce type de bouchage, de l'eau distillée est utilisée à la place de l'eau courante. De plus, le matériel est lavé régulièrement au bac à ultrasons dans de l'éthanol. Le principe de cet appareil est de créer des ondes ultrasonores dans le liquide, qui vont faire se développer, par cavitation, des microbulles aux alentours des impuretés, créant des turbulences les décrochant de la pièce.

3.1.2.1.2 Mesures géométriques

Afin de caractériser le plus précisément le matériel utilisé, des mesures précises sont effectuées pour déterminer le diamètre D_i chaque buse, le d_o de l'éjecteur, et la distance H entre ces deux pièces.

Pour mesurer D_i et D_o , deux clichés sont pris avec un microscope, à zoom équivalent. Le premier consiste en une photo de l'orifice, et le second d'une grille de calibration (carrés de côtés $100 \mu\text{m}$). Avec cette technique, il est ensuite possible de comparer les deux images (de même échelle).

Pour évaluer avec précision la distance H , une méthodologie précise est développée (voir annexe).

Cette mesure n'est pas triviale, du fait de l'inclinaison de la buse qui ne permet pas d'avoir une visualisation perpendiculaire au cône. Dans la méthode utilisée, c'est la réflexion du cône et de la buse sur l'éjecteur qui permet d'approximer H (voir Annexe A.1).

3.1.2.1.3 Ordre de grandeur de la période

Dans certains cas, la période d'oscillation expérimentale du cône peut présenter des anomalies. En effet, un calcul simple du temps caractéristique de cette période τ est effectué à l'aide d'une approximation du volume de la demi-goutte V_{dg} divisé par le débit liquide Q_l , c'est à dire :

$$\tau \sim \frac{V_{dg}}{Q_l} \quad (3.2)$$

$$\sim \frac{2\pi D_i^2 \tilde{H}}{12Q_l} \quad (3.3)$$

où \tilde{H} est la hauteur de la demi-goutte prise en compte dans le calcul, estimée à environ $H/2$. L'application numérique de ce calcul peut être visualisée Figure 3.6. Lorsque le cône de liquide oscille à une période τ sensiblement supérieure à cet ordre de grandeur (par exemple $\mathcal{O}(100 \text{ ms})$), le dispositif est considéré comme perturbé, et est réinitialisé.

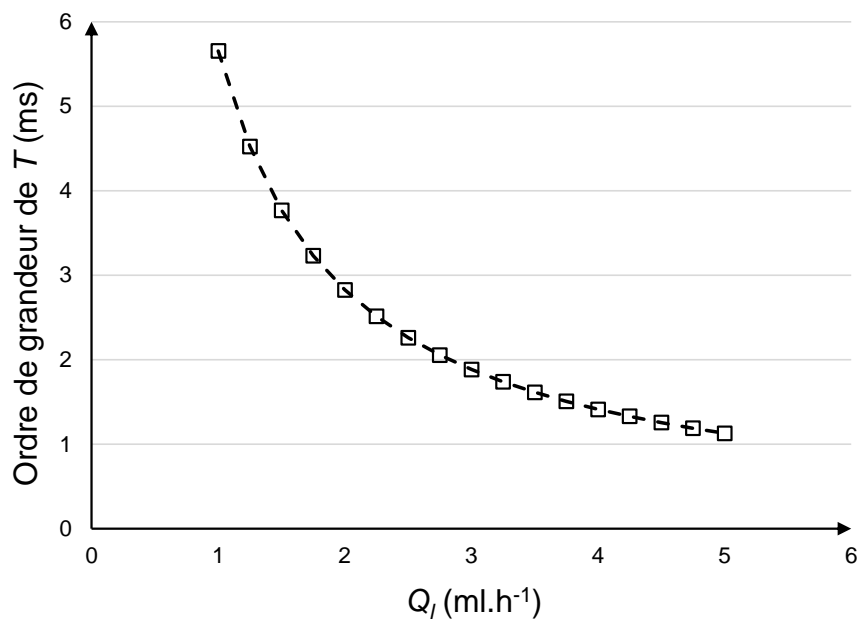


FIGURE 3.6 – Ordre de grandeur attendu de la période d'oscillation du cône.

3.1.2.1.4 Répétabilité de la mesure

Durant les expériences, un effet d'hystérésis peut être observé : dans ce cas, la période d'oscillation ne dépend pas uniquement des conditions actuelles du système, mais également de son évolution antérieure.

En pratique, cet non-répétabilité s'observe quand l'écoulement passe par le régime stable. Une fois stable pour quelques secondes, une variation du système ne permet pas de revenir au même état que précédemment.

3.1.2.1.5 Protocole

Pour cette raison, un protocole d'initialisation précis est développé, qui permet de réaliser des expériences fiables.

1. Laver les pièces aux ultrasons
2. Régler un débit faible ($< 2 \text{ ml.h}^{-1}$) et attendre que le liquide arrive bien en sortie de capillaire
3. Connecter la chambre en alimentation de gaz
4. Régler la caméra rapide pour observer la sortie de la buse
5. Connecter la buse en alimentation de liquide et patienter jusqu'à la sortie du liquide par celle-ci
6. Augmenter progressivement la pression de gaz en évitant de faire refluer le liquide dans la buse
7. Vérifier le couple débit/pression de gaz pour détecter les fuites de gaz éventuelles
8. Vérifier l'absence de fuite liquide aux différents lieu de raccord du système fluidique

Nous avons constaté que la reproductibilité du procédé est optimale lorsque le gaz est branché après le liquide. En effet, dans le cas contraire (si le gaz est sous pression avant que le liquide ne soit sorti de la buse), malgré la vérification plus précise du couple débit/pression de gaz étant donné l'absence du jet, les résultats sont moins précis.

Dans le cas d'une fuite dans le circuit liquide (réservoir/capillaire/buse), il existe plusieurs moyens de réparation. Il est possible de remplacer les férules placées à l'extrémité du capillaire, les jonctions entre les différents composants (étant en plastique, leurs pas de vis est fragile et propice à l'usure). Pour une fuite concernant une pièce visuellement intacte, il est possible d'assurer une étanchéité d'une jonction à l'aide d'un ruban de téflon (placé autour de la connectique).

Le protocole expérimental prévu pour l'initialisation du système a parfois du être revu à cause de l'impact du diamètre intérieur de la buse D_i sur le domaine de stabilité. En effet, l'initialisation du débit liquide avait été programmé à 1.5 ml.h^{-1} , ce qui est tout à fait valable pour l'étude du régime transitoire dans la configuration $D_i = 200 \mu\text{m}$. Cependant, une réduction de ce paramètre à $100 \mu\text{m}$ rend le cône stable (augmentation de la vitesse locale en sortie de buse $U_n = 4Q_l/\pi D_i^2$, § 4.3.1.1). Afin de pouvoir atteindre le régime recherché à l'initialisation, un premier débit liquide de 0.5 ml.h^{-1} a été choisi. À l'inverse, en utilisant une buse de diamètre $350 \mu\text{m}$, le régime de l'écoulement est instable (transitoire T) au débit liquide d'initialisation, et jusqu'au débit maximum atteint avec le matériel 4.5 ml.h^{-1} . L'étude du régime transitoire n'a pas donc pu être effectuée avec cette buse jusqu'à la limite Q_{\min} avec le régime stable (SD).

3.1.2.2 Prise de vue

Les manipulations générales effectuées afin d'obtenir les vidéos se décomposent en plusieurs étapes. Premièrement, le montage est installé avec précision, pour garantir le meilleur angle de vue, et la meilleure image. La Figure 3.7 montre un exemple de cliché obtenu avec la caméra rapide. La source lumineuse est placée du côté opposé de la caméra, et orientée de manière à obtenir le plus de luminosité possible sur l'image prise. En effet, les principaux paramètres de la prise de vidéo sont la fréquence d'acquisition f et le temps d'exposition δt_e (c'est à dire le temps d'ouverture de l'obturateur du capteur). Par construction du matériel, ces variables sont encadrées par :

$$50 \text{ Hz} < f < 160\,000 \text{ Hz} \quad (3.4)$$

$$3.9 \times 10^{-6} \text{ s} < \delta t_e < 0.02 \text{ s} \quad (3.5)$$

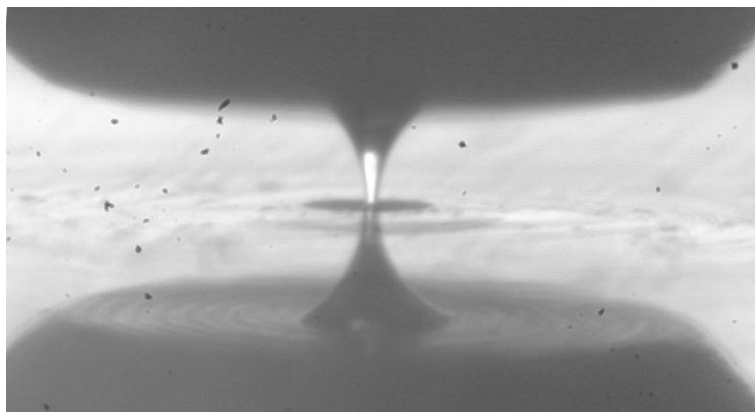


FIGURE 3.7 – Exemple de prise de vue du cône de liquide.

De plus, ces variables sont également reliées par une relation de temps incompressible : la fréquence d'acquisition f ne peut pas être supérieure à l'inverse du temps d'exposition : $f < 1/\delta t_e$. La résolution maximale des vidéos est calculée en fonction de la fréquence voulue f et du débit maximal de données pouvant être obtenu par la caméra.

Les principales configurations utilisées lors des expériences sont résumées dans la table 3.1 ci dessous.

Configuration	f (Hz)	δt_e (μ s)	Résolution (pixels)
1	1 000	50	1280x1024
2	2 000	25	1280x1024
3	5 000	20	1280x1024
2	10 000	4 s	1280x240

TABLE 3.1 – Configurations de caméra rapide utilisées dans les expériences réalisées.

Plus le temps d'ouverture de l'obturateur δt_e est petit, plus l'image est sombre (le capteur C-MOS reçoit moins de photons). Il faut donc placer la source lumineuse de manière la plus optimale obtenir la meilleure image possible. Par exemple, l'image Figure 3.7 a été prise avec un temps d'exposition de $\delta t_e = 25 \times 10^{-6}$ s. Nous observons que la période d'oscillation du cône en régime transitoire, par exemple, est de l'ordre de $T \sim 2$ ms. Cette période correspond à une fréquence de $f_e = 500$ Hz. On souhaite au moins, sur une période d'oscillation, obtenir entre 10 et 20 images, ce qui correspond à $f > 10f_e$, soit une fréquence d'acquisition nécessaire de plus de 5 000 images par seconde.

De manière générale, nous effectuons une autre manipulation d'image, pour l'éclaircir : la correction gamma. Il s'agit d'un procédé de traitement d'image particulièrement efficace pour ce type d'observation, qui éclaircit l'image globale au détriment de la création d'un léger bruit sur l'image. Cette méthode est présentée en Annexe A.2.

3.1.2.3 Traitement d'image

Afin de caractériser la période d'oscillation du cône de liquide en régime Transitoire, l'automatisation de la mesure s'est imposée afin de traiter les différentes données :

Premièrement, une vidéo est prise à l'aide de la caméra. Cette vidéo se matérialise sur la mémoire de cette dernière comme une série d'images. À l'aide du logiciel de la caméra *Fastcam Viewer*, nous enregistrons ces photographies dans un dossier spécial.

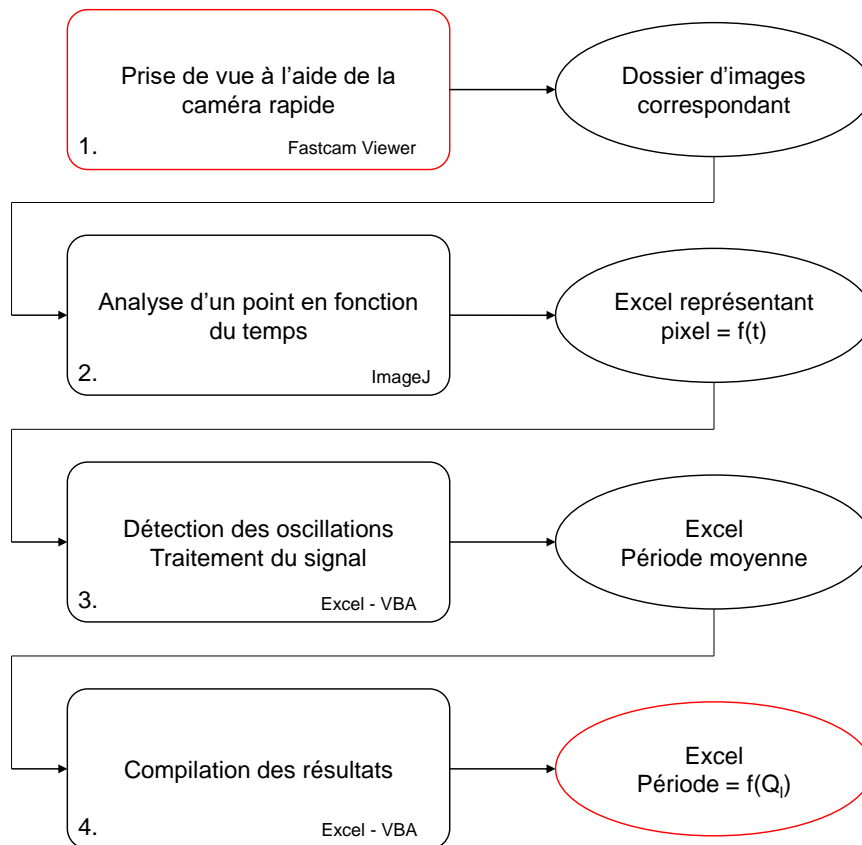


FIGURE 3.8 – Algorithme utilisé dans le traitement des images expérimental.

Nous utilisons une fonctionnalité précise de la caméra rapide, qui est de prendre automatiquement des vidéos de durée fixe régulièrement. Cela permet de pouvoir démarrer la manipulation et de se consacrer sur le traitement des données en parallèle.

Un premier exécutable, programmé en batch windows, sert à découper les piles d'image correspondant à ces vidéos de taille fixe, et à les distribuer dans des dossiers séparés.

Une macro écrite sous le logiciel ImageJ traite chacune des séries d'images, et récupère le signal temporel d'un point, en utilisant la fonction *Reslice*. Le fonctionnement de cet outil et son utilisation sont présentés en Annexe A.3. Cela nous permet de synthétiser chaque vidéo en un tableur représentant la valeur d'un pixel choisi en fonction du temps.

Ensuite, une macro développée sous Excel nous permet d'effectuer l'analyse de ces données, en ouvrant chaque tableur créé précédemment, en reliant le signal de chaque vidéo au débit liquide correspondant. Ensuite, il calcule la période moyenne d'oscillation T_{moyenne} sur le temps de la vidéo, et compile les résultats sur une même courbe.

Le temps caractéristique de traitement d'une expérience est typiquement de l'ordre de 15 minutes, pour traiter environ 5 Gigaoctets de données, résumés dans une centaine de fichiers Excel.

3.2 Modélisation

Les procédés d'aérospray et d'électro-aérospray font l'objet de travaux de recherche intenses depuis quelques années, mais la connaissance des phénomènes physiques en jeu et leurs interactions reste un domaine d'étude.

Dans un premier temps, nous présentons au paragraphe § 3.2.1 les nombres adimensionnels utilisés dans nos travaux. Il s'agit principalement des nombres classiques en mécanique des fluides (§ 3.2.1.1), mais également des valeurs caractéristiques spécifiques aux systèmes étudiés (§ 3.2.1.2).

Le modèle du cône de liquide proposé est développé au paragraphe § 3.2.2. Il présente en premier lieu les équations gouvernant la physique des procédés (§ 3.2.2.1), puis décrit les différentes possibilités existant pour traiter l'aspect multiphasique de l'étude (§ 3.2.2.1) ainsi que notre choix. Ensuite, nous présentons la méthode numérique utilisée pour la résolution du modèle (§ 3.2.2.3).

Pour le jet liquide en partie § 3.2.3, le développement du modèle étant dans un cas spécial (il sera présenté en chapitre 5), les différentes hypothèses de modélisation sont énoncées : axisymétrie (§ 3.2.3.2.3), le choix de la méthode numérique (§ 3.2.3.3), et du référentiel (§ 3.2.3.2.1).

Enfin, la partie § 3.2.4 est consacrée à l'implémentation logicielle (§ 3.2.4.1) et matérielle (§ 3.2.4.2) du modèle.

3.2.1 Nombres adimensionnels

Pour gagner en généralité, les paramètres d'intérêt ont été adimensionnés de la façon suivante. Premièrement, il est possible de considérer, en plus des deux temps caractéristiques définis précédemment τ_h (temps hydrodynamique) et τ_e (temps de relaxation de la charge), deux autres temps τ_v (convection) et τ_s (tension de surface), avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau_h = \frac{L}{V} \\ \tau_e = \frac{\epsilon_r \epsilon_0}{\sigma} \\ \tau_v = \frac{\rho L^2}{\mu} \\ \tau_s = \sqrt{\frac{\rho L^3}{\gamma}} \end{array} \right. \quad (3.6)$$

Dans ce système, les grandeurs considérées L , V , ϵ_r , σ , ρ , μ et γ représentent respectivement la longueur et vitesse caractéristiques, la permittivité relative, la conductivité électrique, la densité et viscosité, et la tension de surface du ou des fluides considérés.

3.2.1.1 Paramètres du système

3.2.1.1.1 Géométries

On choisit d'adimensionner les longueurs géométriques (diamètre intérieur de la buse D_i et distance buse-éjecteur H) par le diamètre de l'éjecteur D_o :

$$D'_i = \frac{D_i}{D_o} \quad \text{et} \quad H' = \frac{H}{D_o} \quad (3.7)$$

3.2.1.1.2 Fluidiques

Les paramètres de contrôle du procédé d'aérospray (débit liquide Q_l , pression de gaz ΔP_g) sont rendus sans dimension avec les nombres de Reynolds (relation entre termes inertiels et visqueux) et de Weber (relation entre termes inertiels et surfaciques).

Ceux-ci peuvent être définis à l'aide des temps caractéristiques définis dans le système (3.6), avec :

$$\begin{cases} \text{Re} = \frac{\rho V L}{\mu} & \left(= \frac{\tau_v}{\tau_h} \right) \\ \text{We} = \frac{\rho V^2 L}{\gamma} & \left(= \frac{\tau_s^2}{\tau_h^2} \right) \end{cases} \quad (3.8)$$

Nous caractérisons l'écoulement de liquide avec le nombre de Reynolds suivant :

$$\text{Re}_l = \frac{\rho_l u_l d_j}{\mu_l} \quad (3.9)$$

où ρ_l et μ_l sont respectivement la densité et la viscosité du liquide, u_l est la vitesse moyenne du liquide au niveau du jet, et d_j est le rayon du jet. il est décidé de prendre l'approximation de Gañán-Calvo (1998) présentée équation 2.2, et d'utiliser la relation $u_l \simeq 4Q_l/\pi d_j^2$ on obtient pour l'expression du nombre de Reynolds :

$$\text{Re}_l = \frac{2}{\mu_l} \left(\frac{Q_l}{\pi} \right)^{1/2} (2\Delta P_g \rho_l^3)^{1/4} \quad (3.10)$$

Pour l'écoulement de gaz, nous choisissons d'utiliser le nombre de Weber :

$$\text{We}_g = \frac{\rho_g u_g^2 d_j}{\gamma} \quad (3.11)$$

où ρ_g est la densité du gaz, u_g sa vitesse à la sortie de la chambre pressurisée, d_j le diamètre du jet liquide sur lequel est actif le gaz, et γ le coefficient de tension superficielle. On utilise l'approximation courante $\rho_g u_g^2 \simeq 2\Delta P_g$ (provenant du théorème de Bernoulli) pour obtenir :

$$\text{We}_g = \frac{4}{\gamma} \left(\frac{Q_l}{\pi} \right)^{1/2} \left(\frac{\rho_l \Delta P_g^3}{2} \right)^{1/4} \quad (3.12)$$

3.2.1.1.3 Électriques

Pour caractériser les aspects électriques dans le procédé d'électro-aérospray, il faut également définir des nombres sans dimensions dépendant des paramètres électriques du système, particulièrement la conductivité du liquide σ , sa permittivité relative ϵ_r , et enfin les potentiels appliqués sur la buse V_b et l'éjecteur V_e .

De nombreux travaux analytiques existent dans l'étude de l'électrospray, qui permettent de comprendre la formation du cône de Taylor (Gañán-Calvo, 1997a,b; Hartman, 1998), et d'estimer le courant du spray (De La Mora, 1992; Fernandez de La Mora et Loscertales, 1994; Gañán-Calvo, 1999), qui est une variable prépondérante dans l'utilisation de ce procédé (qui donne la charge moyenne des gouttelettes, et donc pouvant prédire le comportement du spray).

Gañán-Calvo *et al.* (2006) présente une extension de cette théorie appliquée à l'électro-aérospray : il estime que la pression électrostatique $p_e = \epsilon_0 \|\vec{E}\|^2/2$ admet une borne supérieure :

$$p_e < \left(\frac{\rho \gamma^2 \sigma^2}{\epsilon^2} \right)^{1/3} \quad (3.13)$$

Nous utilisons dans le Chapitre 5 cette pression électrostatique.

3.2.1.2 Indicateurs de régime d'écoulement du cône

3.2.1.2.1 Période (régime Transitoire)

Pour une question de lecture, on dénomme T la périodes (en secondes) d'oscillation du ménisque en régime transitoire, t_c le temps caractéristique du ménisque et τ la variable adimensionnée.

Un temps caractéristique souvent utilisé pour caractériser la formation d'une goutte est le temps relatif à la tension de surface τ_s , défini au système (3.6). Dans notre cas, L en régime transitoire est le *diamètre du ménisque*, qui peut être approximée égale à D_i :

$$t_c = \sqrt{\frac{\rho_l D_i^3}{\gamma}} \quad (3.14)$$

Application numérique : $\rho_l = 10^3 \text{ kg.m}^{-3}$, $\gamma = 7 \times 10^{-2} \text{ N.m}^{-1}$, $D = 200 \text{ }\mu\text{m}$. Le temps caractéristique calculé est de $t_c \simeq 0.34 \text{ ms}$.

On remarquera que ce temps caractéristique tire son origine de l'analyse de stabilité linéaire effectuée par Rayleigh (1879). En effet, le terme $\sqrt{\gamma/\rho R_j^3}$ est défini comme étant ω_0 , une grandeur caractéristique pour le taux de développement des perturbations.

3.2.1.2.2 Taille de la recirculation (régime Stationnaire Dynamique)

L'indicateur choisi dans le mode Stationnaire Dynamique est la taille de la cellule de recirculation qui apparaît (si on appelle z_1 et z_2 les cotes des deux points sur l'axe de symétrie où la vitesse du liquide est nulle, on appelle $s = z_2 - z_1$ la hauteur de la cellule en mètres). Comme pour les paramètres de la géométrie du système, on choisit d'adimensionner s par le diamètre de l'éjecteur D_o :

$$s_R = \frac{s}{D_o} \quad (3.15)$$

3.2.2 Modèle du cône

3.2.2.1 Mise en équations

Cette section présente la mise en équation du problème physique étudié. Premièrement, les équations régissant le mouvement des fluides (liquide/gaz) sont développés § 3.2.2.1.1, pour les modèles de l'aérospray et de l'électro-aérospray. Ensuite, pour le modèle de l'électro-aérospray, on complète en ajoutant les équations gouvernant le calcul du champ électrique § 3.2.2.2.

Le domaine pris en considération est présenté Figure 3.9. Sur ce schéma, la buse et l'éjecteur sont colorés en gris foncé, le liquide en gris clair et l'air en blanc.

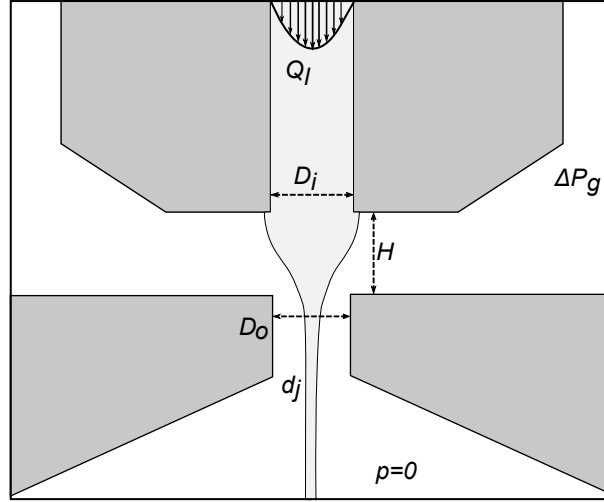


FIGURE 3.9 – Configuration de référence pour le domaine de résolution du modèle. D_i , H et D_o sont respectivement le diamètre intérieur de la buse, la distance entre la buse et l'éjecteur, et le diamètre intérieur de l'éjecteur. Le jet liquide en sortie a un diamètre d_j .

3.2.2.1.1 Équations du mouvement fluide

La simulation des écoulements fluides est réalisée avec la résolution des équations de Navier-Stokes pour un écoulement incompressible (Louisnard, 2012).

Il est possible de simuler l'écoulement fluide sans résoudre l'équation de bilan d'énergie, avec l'équation de continuité (éq. 3.16a) et le bilan de la quantité de mouvement (éq. 3.16b) :

$$\begin{cases} \nabla \cdot \vec{u} = 0 & (3.16a) \\ \rho \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \rho(\vec{u} \cdot \nabla) \vec{u} = \nabla \cdot [-p\vec{I} + \mu(\nabla \vec{u} + \nabla \vec{u}^T)] + \vec{F}_{st} & (3.16b) \end{cases}$$

Les conditions limites pour les variables \vec{u} et p sont :

$$\begin{cases} Q_l = Q_0 & \text{en sortie de buse} & (3.17a) \\ p_g = \Delta P & \text{en entrée de gaz} & (3.17b) \\ p = 0 & \text{en sortie d'éjecteur} & (3.17c) \end{cases}$$

La première condition limite (éq. (3.17a)) est écrite en imposant un débit volumique, mais est traduite en condition limite sur la vitesse \vec{u} (un profil de Poiseuille est imposé à cette variable).

La variable de pression p manipulée ici est une pression relative dans le domaine, par rapport à la pression atmosphérique P_{atm} . C'est pour cette raison que dans la troisième condition limite

(éq. (3.17c)), cette pression relative est nulle. Il s'agit d'une notation usuellement utilisée pour ce type de modèle (Herrada *et al.*, 2008).

3.2.2.1.2 Équation diphasique

L'aspect diphasique est modélisé par une approche de suivi d'interface, *via* la méthode Phase-Field. Dans cette méthode, la variable fonctionnelle ϕ qui décrit chaque phase dans le domaine est gouvernée par l'équation de Cahn-Hilliard :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla \phi = \chi \epsilon^2 \lambda \nabla^2 \left[-\nabla^2 \phi + \frac{\phi(\phi^2 - 1)}{\epsilon^2} \right] \quad (3.18)$$

Cette méthode fait partie des modèles de capture d'interface, tout comme les méthodes fondées sur des isoniveaux de fonctionnelles (dites *level-set*). L'idée générale est d'ajouter aux variables du système une variable scalaire ϕ , qui va décrire la phase dans laquelle on se trouve. Par exemple, on peut fixer les valeurs :

$$\phi : x \mapsto \begin{cases} -1 & \text{dans le liquide} \\ 1 & \text{dans le gaz} \end{cases} \quad (3.19)$$

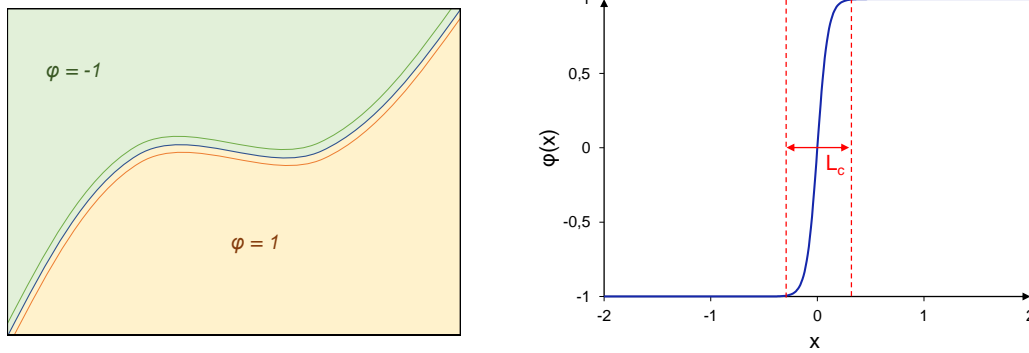


FIGURE 3.10 – (Gauche) Schéma présentant deux phases distinctes et la valeur de ϕ associée ; (Droite) Tracé de ϕ (où le point $x = 0$ représente l'interface).

L'interface entre les deux phases est alors définie par l'isoniveau $\phi = 0$ (voir Figure 3.10 (Gauche)). *Via* cette fonctionnelle, toutes les quantités peuvent être appréhendées *via* les lois barycentriques suivantes :

$$\begin{cases} \rho(x) = \frac{1 - \phi}{2} \rho_l + \frac{1 + \phi}{2} \rho_g & (3.20a) \\ \mu(x) = \frac{1 - \phi}{2} \mu_l + \frac{1 + \phi}{2} \mu_g & (3.20b) \end{cases}$$

A l'interface, ϕ va prendre une valeur entre -1 et 1, à la manière d'une fonction échelon lissée de largeur ϵ . C'est pour cette raison que ce modèle diphasique est appelé à interface diffuse (voir Figure 3.10 (Droite)).

L'équation de Cahn-Hilliard, qui transporte cette fonctionnelle ϕ à la vitesse \vec{u} du fluide, est fondée sur les travaux de Cahn et Hilliard (1958, 1959). Le développement de cette équation est détaillé en annexe C.1.

Dans l'équation (3.18), les paramètres χ et ϵ sont respectivement appelés le *réglage de la mobilité* et l'*épaisseur capillaire*. Il s'agit des trois paramètres principaux, avec la taille de maille (dans la discrétisation du domaine), qui permettent un ajustement optimal du modèle. Les deux paramètres χ et ϵ font l'objet d'une étude de calibration dans l'annexe C.2. Le paramètre ϵ est relié à la largeur de l'interface L_c par la formule $L_c = 3\sqrt{2}\epsilon$ (voir Annexe C.2).

3.2.2.1.3 Tension de surface

La tension de surface d'un liquide représente le fait qu'une molécule à une surface libre a une énergie plus élevée que celle dans le volume. Il y a un coût énergétique nécessaire pour augmenter la surface de liquide (à même volume). Par exemple, une gouttelette isolée, en l'absence de forces aérodynamiques, gravitationnelles, ou électrostatiques, prend une forme sphérique (surface minimale pour un volume fixé).

Le coefficient de tension superficielle γ est relié aux paramètres λ et ϵ par l'équation (Yue *et al.*, 2004) :

$$\gamma = \frac{2\sqrt{2}}{3} \frac{\lambda}{\epsilon} \quad (3.21)$$

Nous faisons également l'hypothèse que le liquide a un angle de contact droit.

3.2.2.2 Aspect électrique

3.2.2.2.1 Introduction de l'électricité dans l'étude

Notre but est de modéliser l'influence du champ électrique sur l'écoulement des fluides. Pour cela, on dérive les équations de Maxwell pour en déduire la force électrostatique s'appliquant sur le cône de liquide quand la tension est considérée en électro-aérospray. Dans le premier paragraphe §3.2.2.2.1, nous présentons la problématique du couplage fluide/électrique dans la configuration utilisée (modèle d'interface diffuse). Nous présentons les équations utilisées dans les différentes approches par la suite (paragraphe §3.2.2.2.1).

Problématique du couplage En général, dans les modèles d'écoulement diphasique où de l'électricité est résolue, l'interface utilisée est de type « nette ». Dans ce cas, le couplage fluide-électricité est généralement implémenté sous la forme d'une pression électrostatique agissant sur la surface du liquide, définie explicitement dans le modèle. Dans notre cas précis, nous avons choisi de modéliser l'écoulement des deux phases fluides en utilisant un modèle dit de type interface « diffuse ». L'interface est définie implicitement comme une isosurface de la fonctionnelle ($\phi = 0$).

Nous pouvons alors implémenter l'action de l'électricité sur le liquide comme une force supplémentaire (de Lorentz) :

$$\vec{F}_e = q_v \vec{E} \quad (3.22)$$

Nous supposons ici que le champ magnétique \vec{B} est nul. Dans cette expression, \vec{F}_e désigne la force volumique électrique, créée par la présence d'une densité de charge volumique q_v .

Par nature de la physique en jeu ici, la force électrique est surfacique, et appliquée uniquement à l'endroit où se situent les charges (donc à l'interface). L'implémentation d'une force volumique est donc une approximation numérique, mais qui se révèle plus pertinente que la tentative d'implémentation d'une pression électrostatique sur l'interface. En effet, comme expliqué précédemment, l'aspect implicite de la définition de l'interface fait que l'*isolevel* $\phi = 0$ peut ne pas être parfaitement aligné sur maillage. Une application d'une pression électrostatique (de surface) sur des nœuds du maillage où l'interface n'est pas présente exactement peut donc se révéler plus correcte au sens physique, mais moins précise au sens numérique. Afin de développer une approche cohérente avec le modèle à interface diffuse, nous choisissons d'implémenter la solution volumique qui est retenue.

Système d'équations Pour le calcul du champ électrique, les équations fondamentales sont :

$$\nabla \cdot (\epsilon_r \epsilon_0 \vec{E}) = q_v \quad \text{Équation de Maxwell-Gauss} \quad (3.23)$$

$$\frac{\partial q_v}{\partial t} + \nabla \cdot \underbrace{(q_v \vec{u} + \sigma \vec{E})}_{\vec{j}} = 0 \quad \text{Conservation du courant} \quad (3.24)$$

La première équation (Maxwell-Gauss, éq. 3.23) permet de calculer le potentiel en tout point de l'espace, et la seconde (continuité, éq. 3.24) de résoudre la continuité de la charge électrique. La principale difficulté d'implémentation directe de ce système est la nécessité de fixer des conditions limites sur la charge q_v , qui sont inconnues dans notre cas d'étude. Pour pallier à ce problème, il a été choisi de simplifier l'équation de continuité de la charge en comparant les différents termes en présence.

Ainsi, en reprenant l'équation de continuité (3.24), nous calculons le temps caractéristique de relaxation de la charge. Une première approximation est de négliger le transport des charges par la vitesse \vec{u} , très faible par rapport aux vitesses des charges libres, ce qui permet d'obtenir :

$$\frac{\partial q_v}{\partial t} + \nabla \cdot (\sigma \vec{E}) = 0 \quad (3.25)$$

et, en combinant les équations (3.23) et (3.25), on a :

$$\frac{\partial q_v}{\partial t} + \frac{\sigma}{\epsilon_r \epsilon_0} q_v = \vec{E} \cdot \underbrace{\left(\frac{\sigma}{\epsilon_r \epsilon_0} \nabla(\epsilon_r \epsilon_0) - \nabla \sigma \right)}_{=0 \text{ si les propriétés sont homogènes}} \quad (3.26)$$

une équation différentielle du premier ordre qui fait apparaître le temps caractéristique τ_e

$$\tau_e = \frac{\epsilon_r \epsilon_0}{\sigma} \left(\sim \frac{10^2 \cdot 10^{-11}}{10^{-2}} \sim 10^{-7} \text{ secondes dans notre cas} \right) \quad (3.27)$$

Le temps caractéristique de relaxation de la charge est donc très court devant le temps extérieur hydrodynamique $\tau_h = L/U \sim 10^{-4}/10^0 \sim 10^{-4}$ s. On peut donc supposer qu'à chaque temps de calcul de l'écoulement, la solution stationnaire de l'équation de continuité (3.26) est atteinte.

Ce raisonnement est valable pour le calcul d'un champ électrique dans un cas général (sous les mêmes hypothèses effectuées). Maintenant, nous allons ajouter l'aspect diphasique et distinguer deux approches permettant une résolution du problème, chacune avec des avantages et inconvénients.

3.2.2.2 Différentes approches possibles

Nous avons vu au paragraphe précédent la définition physique du temps caractéristique de relaxation de la charge. Afin d'appliquer cette théorie à l'étude du cône de liquide en électro-aérospray, deux approches sont proposées ici. La première se fonde sur la résolution de l'équation de Maxwell-Gauss et la conservation du courant, et vise à obtenir une cohérence de la charge électrique produite avec le théorème de Gauss. Autrement dit, il s'agit d'une approche diélectrique/diélectrique, en supposant que le liquide est un mauvais isolant. La seconde approche est une approche conducteur/conducteur, qui suppose que le gaz est un mauvais conducteur. L'idée est de ne calculer le champ électrique \vec{E} qu'à l'aide de l'équation de continuité de la charge, et d'utiliser le théorème de Maxwell-Gauss pour le calcul de la charge volumique présente. Concrètement, la différence fondamentale entre les deux approches concerne la modification du champ électrique par la charge volumique q_v .

Nous appréhendons les propriétés électriques de chaque fluide *via* les lois barycentriques suivantes, selon la même approche que les propriétés fluidiques éq. (3.20a) et (3.20b) :

$$\epsilon(x) = \frac{1-\phi}{2}\epsilon_l + \frac{1+\phi}{2}\epsilon_g \quad (3.28)$$

$$\sigma(x) = \frac{1-\phi}{2}\sigma_l + \frac{1+\phi}{2}\sigma_g \quad (3.29)$$

Approche diélectrique/diélectrique L'idée de cette approche numérique est d'utiliser l'équation de Maxwell-Gauss de manière itérative :

$$\nabla \cdot (\epsilon(x)\vec{E}) = q_v \quad (3.30)$$

Nous supposons que le liquide est conducteur et que l'air est diélectrique. Néanmoins, pour manipuler des équations homogènes, nous estimons que $\epsilon_g = 1$ et que $\epsilon_l \gg \epsilon_g$ (nous ne manipulons pas de conductivité dans cette approche). Sous ces hypothèses, le champ électrique est nul dans le liquide et non nul dans l'air et les équations gouvernant $\|\vec{E}\|$ sont :

$$\begin{cases} \nabla \cdot (\epsilon_l \vec{E}) = 0 & \text{dans le domaine liquide} \\ \nabla \cdot (\epsilon_g \vec{E}) = 0 & \text{dans le domaine air} \end{cases} \quad (3.31)$$

La continuité du flux normal à l'interface donne la condition de passage :

$$\epsilon_l \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_l = \epsilon_g \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_g \quad (3.32)$$

À l'aide du saut selon la normale de \vec{E} à l'interface, on calcule la charge surfacique q_s :

$$\vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_g - \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_l = \frac{q_s}{\epsilon_0} \quad (3.33)$$

or le saut de \vec{E} peut être approximé (en utilisant l'éq. (3.32)) en :

$$\vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_g - \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_l = \left(1 - \frac{\epsilon_g}{\epsilon_l}\right) \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_g \quad (3.34)$$

$$\simeq \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_g \quad (3.35)$$

en négligeant le terme ϵ_g/ϵ_l devant 1. Cette approximation, qui découle de nos hypothèses précédentes, fait apparaître la densité de charge surfacique à l'interface liquide/air :

$$q_s = \epsilon_0 \vec{E} \cdot \vec{n} \Big|_g \quad (3.36)$$

Cette densité de charge surfacique peut amener au calcul de la charge volumique ρ_v (en notant δ la largeur de la demi interface) :

$$q_v \approx \frac{q_s}{\delta} \quad (3.37)$$

Cette première charge volumique, calculée le long de l'interface, est ensuite intégrée pour une nouvelle itération dans l'équation (3.31). Le principe est ensuite d'itérer la résolution du champ électrique jusqu'à obtenir la convergence de \vec{E} .

Approche conducteur/conducteur Dans cette approche, nous faisons l’hypothèse que les deux matériaux sont conducteurs (et que le gaz a une conductivité très faible, $\sigma_g \ll \sigma_l$). L’idée est de résoudre l’équation de continuité de la charge dans tout le domaine :

$$\nabla \cdot (\sigma \vec{E}) = 0 \quad (3.38)$$

En pratique, le champ électrique sera très faible dans le liquide, bon conducteur (isopotential), et non nul dans l’air. La charge volumique est ensuite calculée en utilisant le théorème de Maxwell-Gauss :

$$q_v = \nabla \cdot (\epsilon(x) \vec{E}) \quad (3.39)$$

3.2.2.3 Méthode numérique

Le modèle est développé en utilisant la méthode des éléments finis. Classique pour résoudre des équations aux dérivées partielles, son principe est d’utiliser l’approximation de Galerkin (la transformation du problème continu par un problème discret). La formulation faible du problème est obtenue en projetant les équations gouvernant le mouvement fluide par une fonction test, puis en intégrant sur le domaine de résolution et en utilisant la formule de Green (il existe de nombreux supports précisant le contexte mathématique (Dhatt *et al.*, 2012)).

Différentes formulations existent pour la simulation d’écoulement fluide. Les trois les plus couramment utilisées sont :

Différences finies Le principe des différences finies est de discrétiser le domaine de résolution en mailles uniformes, et d’approximer les équations différentielles en utilisant les formules de Taylor sur ces mailles.

Éléments finis La méthode des éléments finis est une méthode numérique largement utilisée dans le domaine de la simulation numérique. Elle est fondée sur une discrétisation des équations aux dérivées partielles sur des éléments, constituant le domaine. Cette méthode utilise des formulations variationnelles qui permettent de déterminer des solutions numériques approchées du problème d’origine. Elle emploie une théorie mathématique vaste et complexe, et est adaptable à de nombreux phénomènes physiques.

Volumes finis La méthode des volumes finis est fondée sur une intégration des équations sur des volumes de contrôles (discrétisation du domaine), qui a pour avantage de conserver les différents flux étudiés. Pour cette raison, c’est une méthode historiquement utilisée dans le domaine de la mécanique des fluides (notamment les écoulements turbulents). Cependant, elle peut se révéler moins efficace que la méthode des éléments finis dans certains cas, même en mécanique des fluides (Gohil *et al.*, 2011). De plus, elle peut ne pas être adaptée à des géométries complexes.

Dans ces travaux, nous utilisons la méthode des éléments finis. Même si à l’origine, elle était critiquée pour son manque de signification physique et sa difficulté à gérer la conservation des flux dans les éléments, elle a fait l’objet depuis quelques décennies d’apports théoriques et numériques importants, permettant d’améliorer ses différentes lacunes dans le domaine de la mécanique des fluides. De plus, il s’agit d’une méthode qui permet relativement facilement des couplages physiques, les éléments finis étant utilisés dans la modélisation et la simulation en mécanique des structures, en électromagnétisme, etc.

Notre objectif étant de modéliser une interaction entre l’électrostatique et la mécanique des fluides, il s’agit d’une solution tout à fait pertinente.

3.2.2.3.1 Maillage

Pour appliquer les schémas numériques afin de résoudre, les systèmes d'équations aux dérivées partielles de Navier-Stokes et de Cahn-Hilliard sur le domaine, nous avons discrétisé celui-ci en un maillage présenté ci-dessous (Figure 3.11).

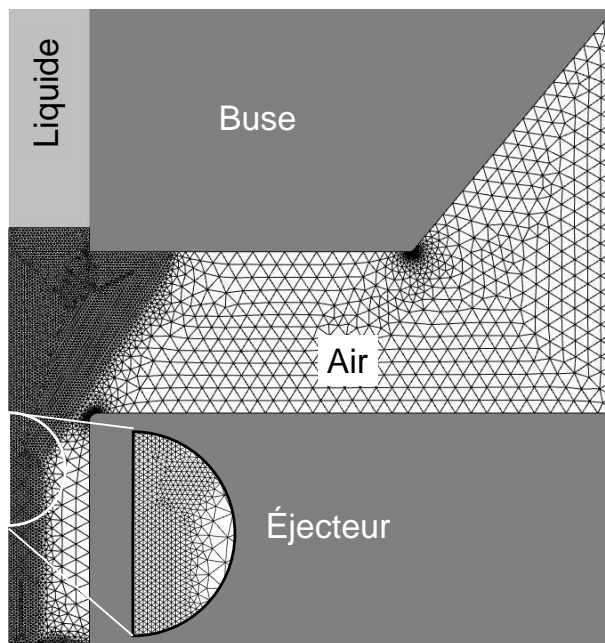


FIGURE 3.11 – Maillage utilisé dans la simulation du cône d'aérospray et d'électro-aérospray.

Ce maillage a été développé suivant plusieurs étapes : premièrement, il est raffiné dans la zone que l'interface est susceptible de traverser durant le calcul (l'hypothèse est que l'on connaît l'allure générale de l'écoulement). En effet, plus la taille de l'élément est faible pour l'évaluation des valeurs maximales de $\|\nabla\phi\|$, plus l'interface est précise et sa largeur ciblée conservée. La taille maximale de maille dans ce sous-domaine est h_{\max} .

Ensuite, les différents angles de la géométrie sont lissés (ce qui permet de se rapprocher de la géométrie réelle, dans laquelle il n'y a pas d'angles parfaits, à cause du procédé d'usinage utilisé) et la taille maximale de maille aux alentours de ces angles est également h_{\max} . Il s'agit des lieux où la vitesse et la pression du fluide est susceptible d'admettre les plus forts gradients (par exemple lorsque le gaz rentre dans l'éjecteur).

A la sortie de l'éjecteur dans le domaine où l'interface ne traverse pas ($\phi = 1$, il n'y a que du gaz), un maillage propagé est utilisé : la connaissance *a priori* de l'allure du champ de vitesse, principalement vertical (la vitesse radiale est faible) permet de mailler cette zone avec des mailles plus grandes que h_{\max} tout en conservant un bon suivi de l'écoulement.

Dans le reste du domaine, où les valeurs des gradients de variables $\|\nabla\vec{u}\|$, $\|\nabla p\|$ et $\|\nabla\phi\|$ sont faibles, la taille de maille maximale a été fixée à $5h_{\max}$.

Dans la partie préliminaires du chapitre suivant (§ 4.2.1), nous présentons les résultats d'une étude de calibration réalisée pour déterminer la taille de maille h_{\max} optimale.

3.2.2.3.2 Champ de phase

Afin de paramétrer l'équation de Cahn-Hilliard, nous réalisons une étude de sensibilité de la fonction ϕ par rapport aux paramètres χ et ϵ . Cette étude en une dimension a pour but de déterminer quels sont les valeurs optimales pour ces deux paramètres.

La méthode utilisée ainsi que les résultats obtenus sont présentés en annexe C.2. Les paramètres retenus sont :

$$\begin{cases} \epsilon = 0.7 h_{\max} \\ \chi = 1 \end{cases} \quad (3.40)$$

3.2.2.3.3 Domaine temporel

Le temps caractéristique du système, établi à l'éq. (3.14), peut varier dans notre cas entre 0.2 ms et 1 ms. Dans ces conditions, nous choisissons d'avoir au moins dix états intermédiaires (pour détecter l'éventuelle instabilité du cône de liquide en régime transitoire). Les simulations sont de l'ordre de grandeur de plusieurs millisecondes ($T_{\text{tot}} \sim 10$ ms), avec une sauvegarde des variables toutes les cinquantièmes de millisecondes ($\delta t \sim 0.02$ ms).

Nous présentons dans une partie préliminaire du chapitre suivant (§ 4.2.2) les résultats d'une étude qualitative de calibration du modèle par rapport au pas de temps.

3.2.2.3.4 Solveurs utilisés

Pour la résolution du système d'équation, nous utilisons un solveur temporel, qui a pour but de discrétiser le terme temporel en différences finies. Le solveur temporel utilisé est BDF (Backward Differentiation Formula), qui est une famille de méthodes implicites pour la résolution d'équations différentielles ordinaires.

La méthode utilisée pour résoudre le problème non-linéaire est l'algorithme de Newton-Raphson, dont le principe est d'appréhender les équations non linéaires régissant les variables en les transformant en systèmes linéaires (voir Figure 3.12).

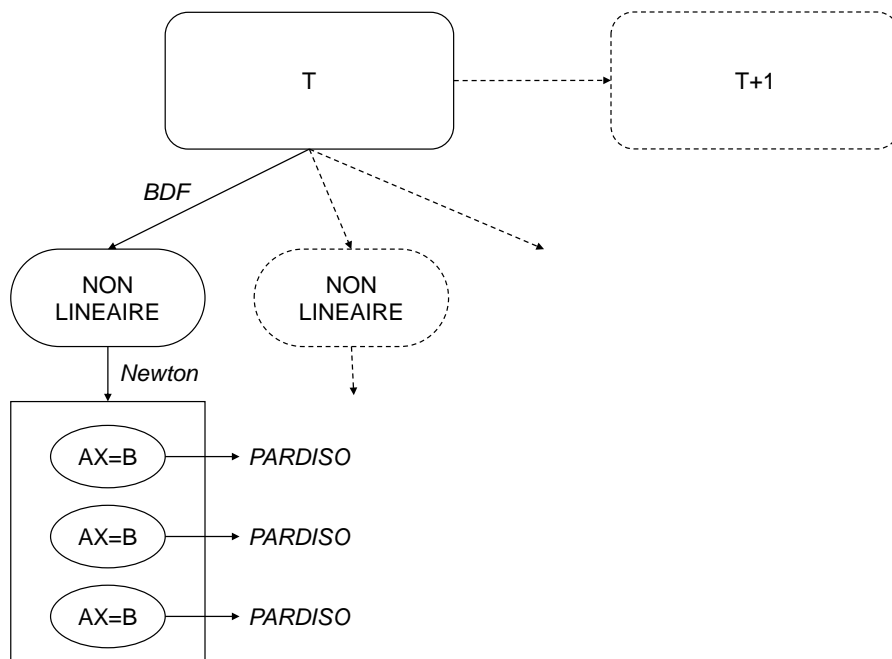


FIGURE 3.12 – Solveurs et méthodes utilisés dans la résolution du modèle numérique. Les pointillés représentent les étapes non détaillées, et les solveurs sont en italiques

La méthode de résolution linéaire est de type PARDISO². Ce solveur calcule la solution d'un

2. <https://www.pardiso-project.org/>

système creux de type $AX = B$ en utilisant un algorithme LU parallèle.

Paramétrage du solveur L'étude comporte deux étapes : une première étape, stationnaire, afin d'initialiser la fonction de champ de phase, et une seconde, transitoire, afin de simuler toutes les variables du modèle.

La première étape, simplifiée, consiste à calculer dans les différents éléments du domaine la distance à l'interface, en utilisant les conditions initiales (valeur de la fonction de champ de phase ϕ dans chaque partie du domaine, lieu de l'interface initiale). Voir l'annexe C.2 pour le détail de la résolution de l'équation de Cahn-Hilliard stationnaire (sans terme temporel).

La seconde étape demande plusieurs paramétrages spécifiques. Nous réglons les paramètres de tolérance numérique, et plus particulièrement les tolérances relatives t_r et absolues t_a . Ce sont ces paramètres qui permettent de majorer l'erreur numérique e_n du solveur temporel sur une variable U , et permettent d'imposer la condition :

$$e_n < |t_a U_0 + t_r |U|| \quad (3.41)$$

Dans cette équation, U_0 désigne la valeur utilisée pour adimensionner U . Nous avons fixé dans notre modèle la tolérance relative à $t_r = 10^{-3}$ et la tolérance absolue à $t_a = 10^{-4}$. Le solveur non-linéaire utilise l'algorithme de Newton-Raphson à facteur d'amortissement constant. Le critère d'arrêt de cette méthode est quand l'erreur est plus faible que la tolérance, comme détaillé équation (3.41). Si, au bout de vingt-cinq itérations, l'algorithme de descente n'a pas convergé, une erreur est levée et le calcul s'arrête.

3.2.2.3.5 Vérification temporelle

La méthode des éléments finis étant parfois critiquée en mécanique des fluides pour son manque de conservation des quantités de matières, nous avons développé une méthode permettant de vérifier la précision du modèle.

En effet, nous vérifions la constance des invariants au cours du temps (par exemple en effectuant un bilan de la masse), pour s'assurer de la précision de la méthode et quantifier l'erreur numérique. En pratique, la masse de fluide attendue dans le domaine étudié au temps t est :

$$M(t) = \underbrace{\iiint_{\Omega} \rho_l(\phi_0 < 0) dV}_{\text{Masse initiale}} + \underbrace{\rho_l Q_l t}_{\text{Masse entrée}} - \underbrace{\iint_{\partial\Omega} \rho_l U_l dS}_{\text{Masse sortie}} \quad (3.42)$$

où $M(t)$ représente la masse attendue de liquide présent dans le domaine (qui doit être égal à la masse réelle), Ω le domaine et $\partial\Omega$ sa sortie, ϕ_0 la valeur initiale de la fonctionnelle ϕ , et U_l la vitesse du liquide en sortie du domaine.

Nous vérifions ainsi, pour chaque simulation, que le taux d'erreur de $M(t)$ n'est pas supérieur à 1%.

3.2.2.3.6 Condition de stabilité

La condition *inf-sup*, également appelée condition de Babuška-Brezzi, est fondé sur une analyse de l'erreur dans la résolution d'équations aux dérivées partielles avec la méthode des éléments finis. Cette théorie a été développée par Babuška (1971) et Brezzi (1974). Impliquant la vitesse et la pression, il s'agit d'une condition nécessaire pour la bonne convergence du schéma numérique résolu. Cette condition implique, en pratique, que l'ordre des éléments pour les deux variables soit différent (la vitesse doit être résolue sur des éléments au moins d'un ordre supérieur à ceux

où la pression est calculée). Cet aspect est toutefois à nuancer, dans le sens où il existe des méthodes attractives numériquement (ordre égal, P1+P1) qui sont stabilisées par des méthodes dites de *streamline* (Hughes *et al.*, 1986). Le modèle a été testé en utilisant cette configuration (éléments linéaires et stabilisation), mais nous avons retenu la configuration ne nécessitant pas de stabilisation numérique supplémentaire pour les simulations dont les résultats sont présentés dans le chapitre suivant.

Le couple de variable fluides (\vec{u}, p) est discrétisé en utilisant des éléments respectivement quadratiques (P2) et affines (P1), et la variable du champ de phase l'est avec des éléments quadratiques.

3.2.3 Modèle du jet

Dans cette partie, nous présentons les différents principes utilisés pour étudier et modéliser la fragmentation du jet liquide. Dans un premier temps, les grandes étapes de ce développement sont listées (§ 3.2.3.1), puis détaillées. Ainsi, nous explicitons le domaine étudié (§ 3.2.3.2), les méthodes choisies ainsi que les équations utilisées (§ 3.2.3.3), et définissons des indicateurs dont le but est de nous aider à caractériser le développement des instabilités à la surface du jet (§ 3.2.3.4).

3.2.3.1 Étapes de développement

L'objectif d'un modèle du jet liquide est de permettre la prédiction des tailles de gouttes produites, en analysant le développement des instabilités de surface.

Les modèles développés dans cette partie sont constitués de multiples paramètres, physiques et numériques. La Figure 3.13 schématise les trois groupes de possibilités permettant de constituer un modèle.

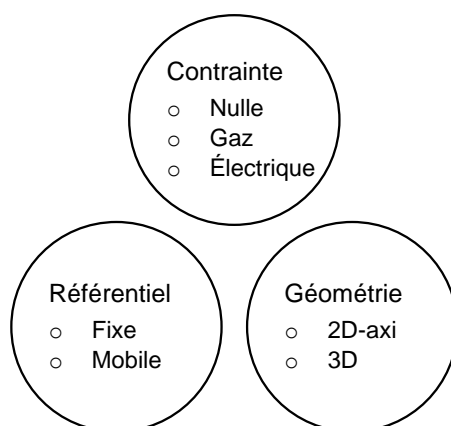


FIGURE 3.13 – Ensembles de paramètres pour le développement d'un modèle de jet.

Premièrement, il est possible de développer le modèle avec différents types de contraintes mécaniques. Pour la modélisation du jet en électro-aérospray, l'objectif est d'intégrer les deux types de contraintes (gaz et électrique), mais ce modèle doit être construit de proche en proche avec le rajout ponctuel de termes. Dans le chapitre 5, nous organisons les résultats de nos travaux selon cette logique.

Ensuite, le domaine de résolution des équations gouvernant le mouvement fluide doit être établi. Il existe là encore plusieurs possibilités pour le référentiel d'étude ainsi que pour la dimension géométrique de ce domaine. Nous proposons d'utiliser la méthode ALE (*Arbitrary Lagrangian Eulerian*), définie par la suite (§ 3.2.3.3).

3.2.3.2 Domaine étudié

3.2.3.2.1 Choix du repère

Il est possible de considérer le jet selon deux référentiels distincts, selon le type d'étude désirée :

1. Référentiel fixe, dans le repère de la buse (fixé). Le domaine étudié est entre deux cotes précises z_1 et z_2 , et le fluide se déplace à une vitesse u_0 .
2. Référentiel mobile, dans le repère du jet (en mouvement). Le domaine étudié se déplace vers le bas à la vitesse u_0 , et le fluide a une vitesse relative nulle.

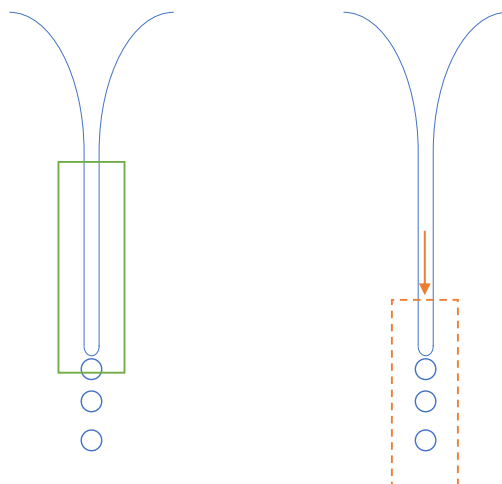


FIGURE 3.14 – Schémas représentant les deux référentiels utilisés pour modéliser le jet. (Gauche) Repère fixe; (Droite) Repère mobile.

Dans le premier cas, l'objectif est de reproduire ce qui est observé expérimentalement avec une caméra rapide, par exemple : le haut du jet symbolise l'arrivée de liquide (le bas du cône de liquide, par exemple), et le bas représente les premières gouttelettes produites. Les instabilités sont convectées à la vitesse du fluide vers la sortie du domaine, et le rayon local du jet ne vérifie donc jamais la condition d'arrêt de l'étude temporelle (éq. (3.52)).

Dans le second cas, l'objectif est de suivre un tronçon du jet durant son déplacement le long de l'axe z . Ce référentiel, étant en translation à une vitesse constante et homogène par rapport au repère fixe de la buse, est considéré galiléen. Les instabilités se développent le long de cette partie du jet, et nous suivons donc uniquement un nombre fixe de goutte (égal au rapport de la longueur du domaine et de la longueur d'onde produite). Cette étude est bornée dans le temps, étant donné que les perturbations restent dans le domaine et grandissent.

3.2.3.2 Dimension du modèle

Après le choix du repère utilisé dans l'étude, il faut décider dans quelle géométrie on se place. Hartman (1998) présente les différentes formes des instabilités qui sont susceptibles d'apparaître dans la fragmentation d'un jet (voir Figure 2.10). On distingue plusieurs types de symétrie admissibles pour chacun de ces cas :

- Dans le cas d'une fragmentation le long de l'axe ($m = 0$), le mode est dit *variqueux*, et le jet admet une symétrie de révolution selon l'axe z .
- Dans le cas d'une fragmentation en mode *whipping* le long d'un axe x par exemple ($m = 1$), le jet admet un plan de symétrie $y = 0$.
- Pour les modes avec $m \geq 2$, le jet n'admet généralement pas de symétrie.

Nous nous plaçons dans un repère cylindrique (r, θ, z) . Le domaine du jet est représenté par les équations :

$$\begin{cases} 0 \leq r \leq r_j \\ 0 \leq z \leq L \\ 0 \leq \theta \leq 2\pi \end{cases} \quad (3.43)$$

En fonction de la symétrie admise, il est possible de considérer différentes géométries pour le développement du modèle du jet : en effet, dans le cas d'un axe de symétrie, il est possible de

réduire l'étude d'une dimension, et de s'affranchir de la variable θ :

$$\begin{cases} 0 \leq r \leq r_j \\ 0 \leq z \leq L \end{cases} \quad (3.44)$$

Dans ce cas, le modèle est indépendant de la variable angulaire θ , donc n'est constitué que de deux degrés de libertés. C'est un domaine dit 2D-axisymétrique. Dans ce type d'étude, la géométrie du domaine est dessinée en seulement deux dimensions, autour d'un axe de révolution représentant l'axe de symétrie. De ce fait, le maillage utilisé pour discrétiser les équations fluides comporte généralement beaucoup moins d'éléments qu'un modèle développé en trois dimensions.

Dans le cas d'une symétrie par rapport à un plan ($y=0$), il est possible de réduire l'étude à :

$$\begin{cases} 0 \leq r \leq r_j \\ 0 \leq z \leq L \\ 0 \leq \theta \leq \pi \end{cases} \quad (3.45)$$

Dans ce cas, la propriété de symétrie apporte une simplification du domaine. En effet, au lieu d'un cylindre entier étudier, seule la résolution d'une moitié du domaine est pertinente. Le maillage comporte donc deux fois moins d'éléments que dans un cas complet.

3.2.3.2.3 Axisymétrie de la rupture du jet

Dans les procédés d'aérospray et d'électro-aérospray, le type de fragmentation du jet dépend fortement des paramètres de contrôle du procédé (Gañán-Calvo, 1998; Si *et al.*, 2009; Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2008). En particulier, il est souvent difficile de prouver si le jet admet une symétrie lors de la création des gouttelettes. Dans cette sous-partie, nous analysons les résultats existant pour déterminer quelle est l'approche la plus pertinente.

À l'aide des résultats obtenus par Gordillo *et al.* (2001) et Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo (2008) pour l'aérospray, et Tatoulian *et al.* (2010) pour l'électrospray, nous choisissons dans cette sous-partie les quantités physiques suivantes pour caractériser les phénomènes de fragmentation du jet liquide.

Gordillo, Pérez-Saborid, et Gañán-Calvo (2001) Dans cet article, les auteurs caractérisent les différents modes de fragmentation du jet en fonction d'un nombre de Weber, en aérospray :

$$\text{We}_G = \frac{\rho_g U_\infty^2 R_0}{\gamma} \quad (3.46)$$

où ρ_g , U_∞ , R_0 et γ sont respectivement la densité du gaz, sa vitesse d'écoulement autour du jet (en dehors de la couche limite proche de l'interface), le rayon du jet et le coefficient de tension de surface. Les résultats expérimentaux sont présentés Figure 3.15. On distingue un seuil entre les modes de fragmentation axisymétrique et non-axisymétrique (placé entre $11 < \text{We}_G < 20$).

Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo (2008) Cette recherche porte également sur les différents modes de production du jet liquide en aérospray. Le nombre de Weber défini est :

$$\text{We}_{\text{RL}} = \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^{1/4} \left(\frac{\rho_l Q^2 \Delta P^3}{\gamma^4} \right)^{1/4} \quad (3.47)$$

où ρ_l , Q , ΔP et γ sont respectivement la densité du liquide, le débit liquide, la pression de gaz appliquée et le coefficient de tension de surface. Les résultats expérimentaux correspondant à cette caractérisation des modes sont présentés Figure 3.16. Le seuil obtenu ici est pour un $\text{We}_{\text{RL}} \sim 20$, avec une augmentation progressive de la non-axisymétrie pour $20 < \text{We}_{\text{RL}} < 1000$.

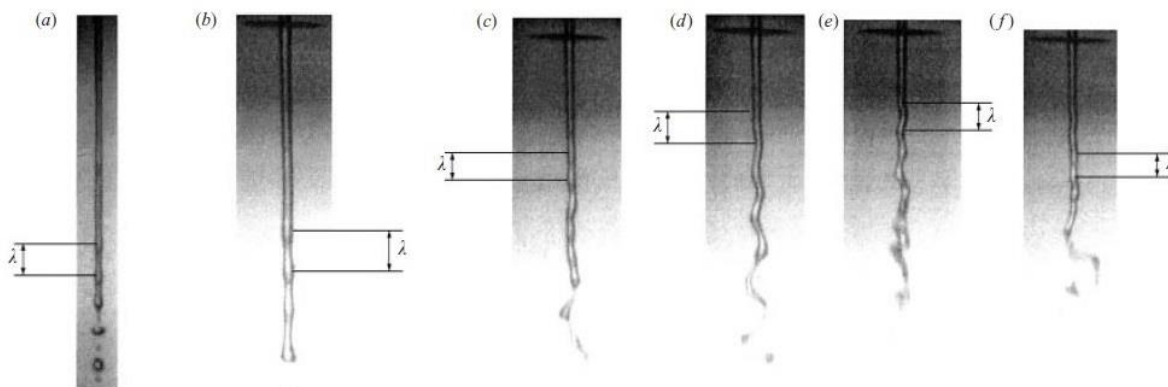


FIGURE 3.15 – Modes de fragmentation du jet en fonction de We_G . a) 6.3 ; b) 11 ; c,d) 20 ; e,f) 28 (Gordillo *et al.*, 2001).

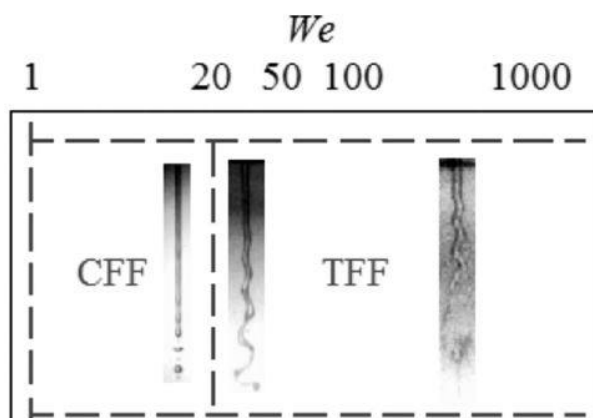


FIGURE 3.16 – Rosell-Llompарт : Mode de fragmentation du jet en fonction du We_{RL} .

Tatoulian, Ehouarn, et Clémenceau (2010) Ces travaux, internes à DBV Technologies, portent sur l'électrospray et les modes de production des gouttes. Ils ont été réalisés avec de l'éthanol, et montrent deux types de symétrie du jet (voir Figure 3.17).

On constate que, dans les conditions de ces expériences, une augmentation du débit liquide entraîne une modification de la symétrie du jet : pour un débit faible ($Q_l = 0.9 \text{ ml.h}^{-1}$), la production des gouttes est monodispersée (les gouttes ont la même taille) et régulière. Une augmentation du débit ($Q_l = 5 \text{ ml.h}^{-1}$) conduit à la formation de gouttelettes satellites (une deuxième population de taille inférieure aux gouttes principales). Pour un débit plus élevé ($Q_l = 13 \text{ ml.h}^{-1}$), le jet passe en mode *whipping* : les perturbations déplacent le jet de gauche à droite, et ce sont des ligaments qui sont formés, qui se fragmentent ensuite pour former des gouttelettes de taille différentes.

Application numérique (Aérospray) Dans le flow focusing eau/air ($\rho_l = 1 \times 10^{-3} \text{ kg/m}^3$, $\rho_g = 1 \text{ kg/m}^3$ et $\sigma = 70 \text{ mN.m}^{-1}$), avec un jet de diamètre de l'ordre de $d_j = 10 \text{ }\mu\text{m}$, et des paramètres procédés arbitraires $Q = 3 \text{ ml.h}^{-1} \simeq 8.33 \times 10^{-10} \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, $\Delta P = 0.7 \text{ bar}$ et $U_0 \simeq 200 \text{ m.s}^{-1}$, les deux nombres présentés précédemment équations (3.46) et

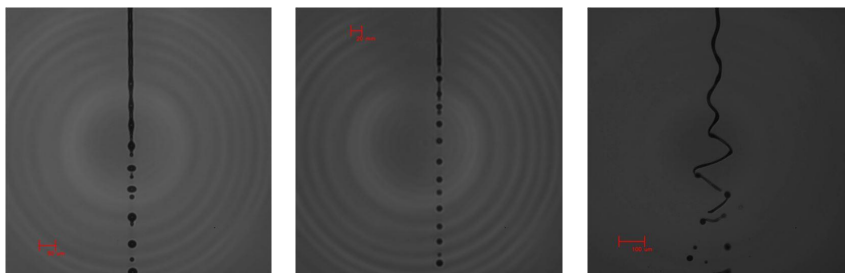


FIGURE 3.17 – Photos des différents jets en fonction du débit liquide (Éthanol). De gauche à droite : ($V = 6.2$ kV, $Q_l = 0.9$ ml.h⁻¹); ($V = 6$ kV, $Q_l = 5$ ml.h⁻¹); ($V = 7.2$ kV, $Q_l = 13$ ml.h⁻¹)

(3.47) valent :

$$\begin{cases} We_G &= 2.86 \\ We_{RL} &= 9.47 \end{cases} \quad (3.48)$$

Dans les deux cas, le nombre de Weber de l'écoulement est dans le régime capillaire. En particulier, cela signifie que, pour ces paramètres d'entrée choisis, la rupture du jet admet une symétrie axiale.

Application (Électro-aérospray) Nous supposons *a priori* que l'influence de l'électricité dans la rupture du jet en électro-aérospray est négligeable pour une variation de la symétrie. En effet, en considérant les expériences Figure 3.17, on constate que seule la tension électrique contribue au développement des perturbations de surface. Nous faisons l'hypothèse, pour le modèle du cône d'électro-aérospray, que le jet produit, *au moins dans un premier temps*, admet une symétrie axiale.

Influence de cette étude Cette analyse des résultats présents dans la littérature, et de leur application à notre système, nous permet de simplifier l'étude de l'aérospray et de l'électro-aérospray. En effet, nous pouvons réduire la géométrie du système d'un degré de liberté (passage du 3D au 2D-axisymétrique). Cette réduction permet de changer le référentiel dans lequel l'étude est considérée (comme vu plus haut, équation 3.44).

$$(x, y, z) \underset{\text{Coordonnées cylindriques}}{\implies} \text{Coordonnées cylindriques } (r, \theta, z) \underset{\text{Simplification 2D-axi}}{\implies} (r, z) \quad (3.49)$$

Cette simplification est essentielle pour une réduction significative des ressources requises pour chaque simulation (mémoire allouée, temps de calcul).

3.2.3.3 Méthode et mise en équations

3.2.3.3.1 Modèles du jet : ALE

La méthode ALE (Arbitrary Lagrangian Eulerian) est une formulation en éléments finis, dans laquelle le système de coordonnées n'est ni fixé dans l'espace (comme une formulation Eulérienne), ni attaché au matériau (comme une formulation Lagrangienne). Il s'agit d'une méthode hybride, qui utilise un maillage mobile en fonction de la déformation de l'écoulement.

En, effet, cette technique relie la formulation eulérienne à l'intérieur du domaine (où le maillage est libre de se déplacer selon une méthode de lissage), avec la formulation lagrangienne à l'extérieur (où le maillage suit le déplacement mécanique), tout en assurant la continuité des

variables caractérisant le fluide (vitesse et pression) à l'interface. La frontière liquide/gaz est explicitement décrite, ce qui permet d'appliquer précisément les forces appliquées à l'interface. Il s'agit d'un avantage de taille en comparaison aux méthodes à interface diffuse. Cependant, une limite à cette technique est que le volume de fluide doit garder la même topologie (l'interface doit rester continue).

L'étude du jet liquide en aérospray et électro-aérospray a pour but de prévoir, en fonction des paramètres d'entrée, les différentes tailles et vitesses des gouttes produites. Celles-ci sont créées quand des instabilités microscopiques à la surface du jet se développent et grandissent. Pour cette raison, le modèle ALE a été choisi pour simuler la fragmentation du jet liquide.

3.2.3.3.2 Mise en équations et conditions limites

Pour le modèle du jet, la méthode ALE est utilisée. Le système d'équations résolues est constitué des équations de Navier-Stokes et du transport du maillage à la vitesse du fluide. L'écoulement est également considéré incompressible, à température fixée.

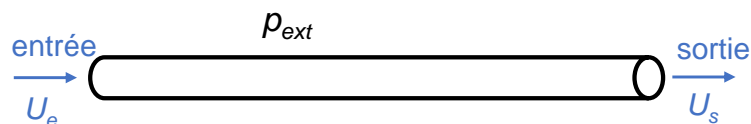


FIGURE 3.18 – Géométrie et conditions limites pour le modèle du jet.

Nous considérons une colonne de fluide pour représenter le jet (géométrie cylindrique), de diamètre $d_j = 10 \mu\text{m}$, de longueur $L = 300 \mu\text{m}$ (l'épaisseur de l'éjecteur).

Le principe de la méthode ALE est de coupler l'étude d'un fluide et un déplacement de maillage. Dans le domaine du jet, le système de Navier-Stokes gouverne l'écoulement fluide (voir équations 3.16a et 3.16b).

Le déplacement des nœuds du maillage est effectué à partir du mouvement de l'interface fluide. En effet, ce déplacement de l'interface est propagé à travers le domaine, afin d'obtenir une déformation homogène du maillage. En pratique, le point (r, z) dans le maillage déformé est relié aux coordonnées (R, Z) du maillage original via une fonction de la forme :

$$r = r(R, Z, t) \quad z = z(R, Z, t) \quad (3.50)$$

La propagation du déplacement est effectuée en utilisant une méthode de lissage de Winslow (1966) (Knupp, 1999).

Deux modèles distincts ont été développés selon le repère d'étude. Les conditions limites diffèrent selon le référentiel choisi (voir Figure 3.18).

Modèle 1 : Repère fixe Dans ce référentiel fixe (*de l'éjecteur*), la vitesse du jet est non nulle :

- en entrée, la vitesse est fixée de manière uniforme
- en sortie, la valeur moyenne de la vitesse est imposée
- sur la surface extérieure du jet, une pression dépendant du flux d'air est imposée, ainsi que la valeur de la tension de surface

La résolution du modèle est initialisée avec une vitesse axiale descendante pour le jet. On ajoute à cette condition initiale un bruit infinitésimal aléatoire en pression et vitesse, d'amplitude faible : il s'agit des perturbations infinitésimales en $\mathcal{O}(\epsilon)$, où ϵ est l'amplitude choisie initialement. Ces

très petites variations traduisent les irrégularités physiques, nécessaires au développement des instabilités du jet par la suite, et permettent au modèle de reproduire les conditions expérimentales physiques pour la fragmentation du jet.

Certaines problématiques numériques apparaissent lorsque le jet se fragmente : en effet, la méthode de maillage mobile n'est pas utilisée pour les changements topologiques du volume de fluide, et une erreur peut être levée si une goutte se détache du jet. Dans ce cas, le modèle 1 a pour but de simuler la rupture du jet, mais en sachant que la longueur du jet modélisée ne doit pas excéder la longueur de rupture (*break-up length*).

Ce modèle permet de caractériser le comportement du jet en prévoyant l'endroit de cette rupture, et d'effectuer une étude temporelle sur les gouttes produites. En outre, il s'agit d'une technique qui est directement comparables aux expériences.

Modèle 2 : Repère local Dans ce second modèle, un repère mobile est utilisé (*du jet*), se déplaçant à la vitesse du liquide. Dans ce référentiel, la vitesse axiale du jet est globalement nulle. Sur la surface extérieure du jet, la pression exercée est une contrainte qui peut se déplacer ou non. En entrée et en sortie, les conditions limites peuvent être soit de glissement, de symétrie, ou de pression. Ces différents cas de figure font l'objet d'une discussion dans le paragraphe concernant les résultats du jet.

3.2.3.4 Indicateurs

3.2.3.4.1 Condition d'arrêt du modèle

L'erreur quadratique intégrale ϵ_q est définie à l'aide du rayon de l'interface perturbée $r(z)$ et du rayon du jet initial r_j :

$$\epsilon_q = \int_0^L (r(z) - r_j)^2 dz \quad (3.51)$$

Cet indicateur permet de caractériser la simulation du modèle et de vérifier le développement des instabilités de surface en fonction du référentiel choisi.

La méthode ALE utilise un maillage mobile, et une limitation de cette méthode est la gestion du changement de topologie. Dans notre étude, seule l'étape de développement des instabilités à la surface du jet nous intéresse, dans le sens où les gouttes sont produites en fonction de ces instabilités *in fine*. Concrètement, l'étude est stoppée volontairement quand les perturbations deviennent suffisamment grandes.

Pour ce faire, il convient de définir un critère temporel d'arrêt de l'étude du jet, que nous choisissons arbitrairement :

$$\frac{r_{\max} - r_j}{r_j} > 10\% \quad (3.52)$$

où r_{\max} désigne le rayon maximum du jet à un temps t fixé, et r_j le rayon initial.

Ainsi, le rayon du jet n'atteint jamais la valeur 0 (significative de la formation d'une goutte), et ne génère pas de divergence numérique.

3.2.3.4.2 Coefficient r_g/r_j

Le coefficient sans dimension r_g/r_j permet de quantifier l'influence des paramètres (perturbation initiale, pression de gaz, pression électrique) sur la taille des gouttes produites. Le calcul effectif de ce coefficient est réalisé en fonction du repère d'étude :

- Dans le repère fixe, nous étudions la fréquence de production des gouttes, et calculons la longueur d'onde caractéristique développée, pour pouvoir ensuite obtenir le rayon de la gouttelette ;

- Dans le repère local, La longueur d'onde spatiale est directement obtenue avec le traitement des résultats du modèle.

Nous présentons avec plus de détails les différents traitements de données en Annexe D.3.

3.2.4 Implémentation physique

3.2.4.1 Logiciel

Il existe plusieurs logiciels permettant l'implémentation et la simulation du modèle développé. Certains sont sous GPL (*General Public Licence*) et gratuits, comme OpenFoam (une boîte à outils pour le développement de solveurs numériques), ou FreeFEM++. Ces logiciels sont souvent peu graphiques, et requièrent parfois des compétences en programmation pour la création de modèles personnalisés. D'autres sont payants et sous licence commerciale (Ansys [®], COMSOL Multiphysics [®]). Ces derniers ont en général une interface graphique spéciale et bénéficient d'un support et d'une maintenance.

Dans notre cas, nous avons développé les modèles en utilisant COMSOL Multiphysics [®] (version 5.2)³. C'est un logiciel commercial, fondé sur la méthode des éléments finis, bénéficiant d'un support et de nombreux domaines d'applications.

Nous utilisons, pour les modèles développés sur l'aérospray et l'électro-aérospray, le module *Microfluidics*, permettant de simuler des écoulements diphasiques dont les longueurs caractéristiques sont de l'ordre du micromètre. Il contient notamment les outils nécessaires pour la simulation d'un modèle en champ de phase et en ALE. Ainsi, la physique utilisée pour la résolution du cône en aérospray est *Laminar Two-Phase Flow*, *Phase Field*, couplée avec la physique *Electric Currents* en électro-aérospray. Pour le modèle du jet, c'est la physique *Laminar Two-Phase Flow*, *Moving Mesh* qui est utilisée.

3.2.4.2 Système

L'ordinateur utilisé pour les simulations du modèle est une station DELL Precision T5600. Le processeur est de la marque Intel[®]Xeon[®], de modèle E5-2687W, de cadence 3.10 GHz. La mémoire installée est de 64 Go, répartie sur deux processeurs de 8 cœurs physiques chacun. Le système d'exploitation de la machine est Windows 7 Professionnel.

Le temps de calcul de chaque simulation est compris entre quelques secondes jusqu'à plusieurs heures, dépendant de la complexité de l'écoulement et des paramètres numériques utilisés (voir Table 3.2).

	Min	Max
Cône AS(<i>Phase-Field</i>)	30 min	12 h
Jet AS (<i>ALE</i>)	10 sec	1 h

TABLE 3.2 – Ordre de grandeur des différents temps de calculs caractéristiques pour chaque modèle développé.

Nous présentons dans le chapitre suivant (§ 4.2.3) une étude réalisée sur le temps de résolution et la mémoire de calcul utilisé en fonction du nombre de cœurs de calculs. Dans les modèles où nous souhaitons étudier en particulier le régime Stationnaire Dynamique (SD), deux études temporelles sont réalisées : la première (STD1), avec un maillage grossier, pour amorcer numériquement la formation du cône, et la seconde (STD2) avec un maillage fin, qui utilise les résultats de la première étude comme état initial, permettant une convergence plus rapide.

3. <https://www.comsol.fr/>

Chapitre 4

Résultats de simulations du cône de liquide en aérospray ; Confrontation expérimentale

En aérospray et électro-aérospray, le cône décrit la forme particulière de l'écoulement en sortie de buse du liquide, qui, sous l'action du gaz, se retrouve contraint en un jet fin de quelques microns de diamètre. Il s'agit d'une zone critique qui régit la stabilité globale du spray en sortie de la chambre pressurisée. Pour cette raison, une étude approfondie est effectuée et les différents phénomènes physiques se produisant sont analysés.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats des simulations du modèle développé en chapitre 3. Ces résultats sont analysés et confrontés aux mesures expérimentales que nous avons effectuées en vue d'estimer la pertinence des prédictions numériques. Les résultats obtenus par ce modèle portent principalement sur le cône de liquide dans les procédés d'aérospray et d'électro-aérospray.

Dans un premier temps, les deux régimes principaux d'écoulement liquide en aérospray sont présentés (§ 4.1), et les résultats propres à chacun de ces modes sont détaillés (§ 4.3 et § 4.4). Nous détaillons ensuite l'impact de la tension électrique sur l'écoulement liquide dans le régime Stationnaire Dynamique (§ 4.3.4), dans le cadre de l'étude de l'électro-aérospray. Enfin, les résultats numériques sont compilés dans des diagrammes de modes en fonction des paramètres d'étude (§ 4.5).

Une partie des résultats présentés dans cette partie ont fait l'objet d'une publication dans la revue internationale à comité de lecture *Physics of Fluids* (Mamet *et al.*, 2017). La confrontation des résultats de simulations avec les résultats expérimentaux ont également été présentés en conférence internationale (International Aerosol Conference 2018), et font l'objet d'une publication en préparation (Mamet *et al.*, 2019, *en préparation*).

4.1 Comportement binaire du cône

4.1.1 Dualité Stationnaire Dynamique (SD) / Transitoire (T)

Deux types de régimes peuvent être obtenus en fonction des paramètres du procédé (débit liquide et pression de gaz) et géométriques (diamètres de la buse, de l'éjecteur, et distance entre ces deux pièces).

- Le régime Stationnaire Dynamique (SD), où les deux écoulements (liquide et gazeux) sont à l'équilibre mécanique et l'interface n'a aucun mouvement. Le cône est stable.

- Le régime Transitoire (T), où l'interface est mobile et périodique en fonction du temps. Le cône est instable.

Notre but est d'effectuer une étude approfondie sur ces deux modes, sur les phénomènes physiques en jeu dans chacun, et sur la caractérisation numérique des domaines de modes en utilisant les nombres adimensionnels de Reynolds et de Weber.

4.1.2 Indicateurs choisis

Dans l'objectif d'étudier les différents régimes en aérospray et électro-aérospray, des indicateurs quantitatifs sont définis pour chaque mode (voir Figure 4.1).

Dans le régime stationnaire dynamique (SD), la position de la surface du cône (l'interface liquide/air) est immobile. L'objectif est de caractériser cette position pour chaque configuration stable. Nous avons choisi la taille de la cellule de recirculation dans le cône s , un indicateur qui est déjà présent dans la littérature (Herrada *et al.*, 2008). Cette longueur est adimensionnée *via* le diamètre de l'éjecteur D_o :

$$s_R = \frac{s}{D_o} \quad (4.1)$$

Dans le mode transitoire (T), l'écoulement est périodique. En vue de caractériser cet aspect oscillant, la période T , adimensionnée par le temps caractéristique capillaire t_c , est choisie comme estimateur de ce régime.

$$\tau = \frac{T}{t_c} \quad (4.2)$$

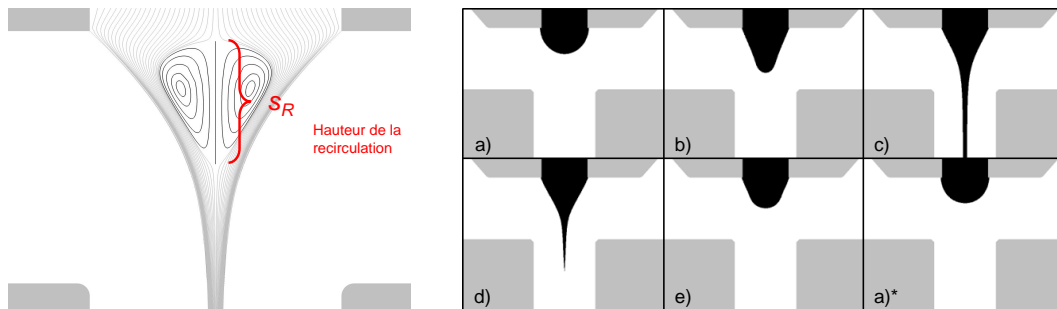


FIGURE 4.1 – (Gauche) Recirculation observée dans le régime stationnaire dynamique (SD); (Droite) Mouvement liquide périodique dans le régime transitoire (T).

4.2 Préliminaires : Validation des paramètres numériques retenus

Dans cette partie, nous présentons les résultats d'études numériques effectuées pour valider les paramètres retenus : la taille de maille (§ 4.2.1), le pas de temps de l'étude (§ 4.2.2), la décomposition de la simulation en deux études temporelles (§ 4.2.2.1) et le nombre de cœurs de calculs utilisés (§ 4.2.3).

4.2.1 Taille de maille

La Figure 4.2 présente les résultats d'une étude de convergence du maillage effectuée en fonction de la taille maximale dans la zone raffinée h_{\max} . L'indicateur de convergence choisi pour cette étude est la vitesse maximale du gaz.

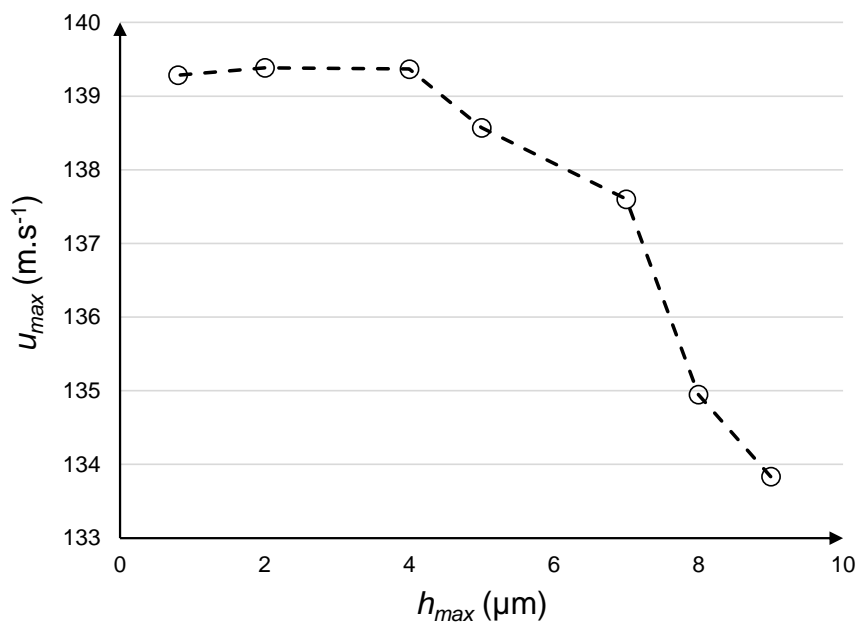


FIGURE 4.2 – Vitesse maximale du gaz obtenue avec le modèle en fonction de la taille de maille utilisée h_{\max} .

On observe sur cette figure que plus le maillage est grossier (h_{\max} élevé), plus la valeur maximale de la vitesse du gaz est faible. Le théorème de Bernoulli, dans ce modèle, donne une approximation de la vitesse moyenne $\tilde{u} = \sqrt{2\Delta P_g/\rho_g} \simeq 129 \text{ m.s}^{-1}$. La vitesse maximale obtenue avec le modèle, plus élevée (139 m.s^{-1}), est donc cohérente (la vitesse n'est pas uniforme sur toute la section transversale).

L'étude de la taille de maille présentée Figure 4.2 montre que la valeur $h_{\max} = 4 \mu\text{m}$ est une valeur seuil pour l'obtention d'une vitesse maximale unique en dessous de cette valeur. Nous choisissons donc cette valeur comme paramètre dans les modèles simulés.

4.2.2 Pas de temps de l'étude

La Figure 4.3 présente les résultats de l'étude qualitative de calibration du modèle par rapport au pas de temps. Elle montre que, pour un pas de temps du solveur δt trop élevé, il est possible de perdre en précision sur la valeur de la période T . La valeur seuil en deçà de laquelle cette période est constante est de $\delta t = 0.02 \text{ ms}$.

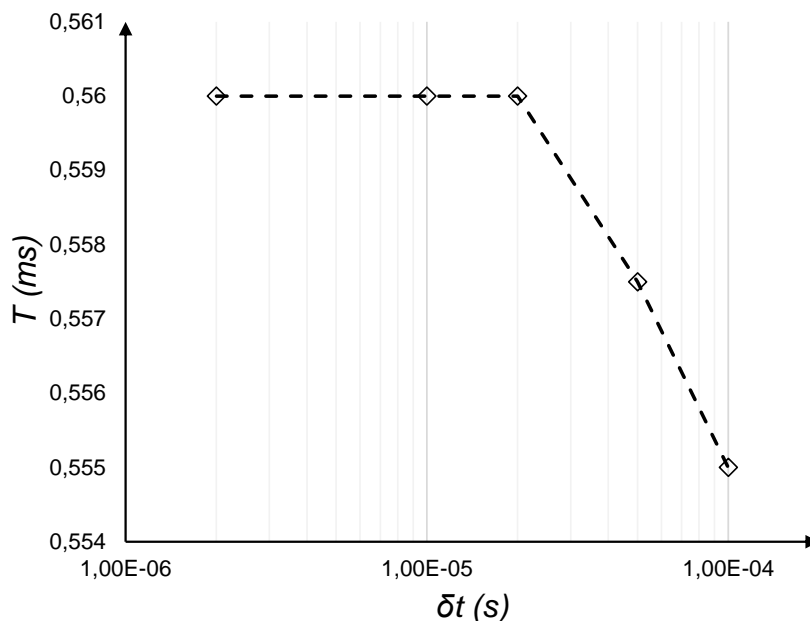


FIGURE 4.3 – Période T obtenue en fonction du pas de temps maximal du solveur δt .

4.2.2.1 Utilisation de deux études temporelles

Pour simuler le régime Stationnaire Dynamique, deux études successives sont implémentées. L'étude 1 (STD1) est effectuée avec un maillage de taille ϵ_1 , relativement grossier. L'objectif de cette étude préliminaire est de calculer une solution approximative de l'interface dans un régime stable. Cette solution est ensuite donnée comme valeur initiale à l'étude 2 (STD2), avec un maillage de taille $\epsilon_2 < \epsilon_1$ plus fin. La résolution des équations à partir d'une solution approchée plus proche de la solution finale est ensuite plus précise.

Cette méthode a été choisie pour éviter un calcul trop long lors de la transformation de l'interface quand le liquide passe d'une demi-goutte à un cône/jet. En effet, plus l'interface est transportée, plus le temps de calcul de la simulation est élevé.

Cette méthode numérique n'est utilisable que pour simuler le régime Stationnaire Dynamique, où l'allure de la solution finale, asymptotique, est connue. Dans le régime Transitoire, l'oscillation du liquide est périodique et l'interface ne tend pas vers une solution fixe. Dans ce cas, c'est directement le maillage et les paramètres numériques de l'étude 2 qui sont utilisés.

4.2.3 Nombre de cœurs de calcul

Le graphique Figure 4.4 présente les temps de calcul et la mémoire de calcul utilisée en fonction du nombre de cœurs alloués. Ce benchmark est réalisé sur un modèle comportant deux études, utilisé pour simuler le régime Stationnaire Dynamique du cône de liquide en aérospray.

On observe sur la Figure 4.4 que l'étude 1 est la plus longue en terme de temps de calcul (phénomène de déformation de l'interface détaillé ci-dessus), mais que c'est l'étude 2 qui est la plus coûteuse en mémoire de calcul (à cause du maillage plus fin). La simulation avec quatre cœurs de calculs est la moins coûteuse en mémoire et donne des bons résultats en temps de calculs, donc c'est la solution retenue pour la simulation des différents modèles. Elle donne aussi la possibilité de lancer plusieurs calculs en parallèle (quatre simulations), pour utiliser tous les cœurs à disposition en même temps.

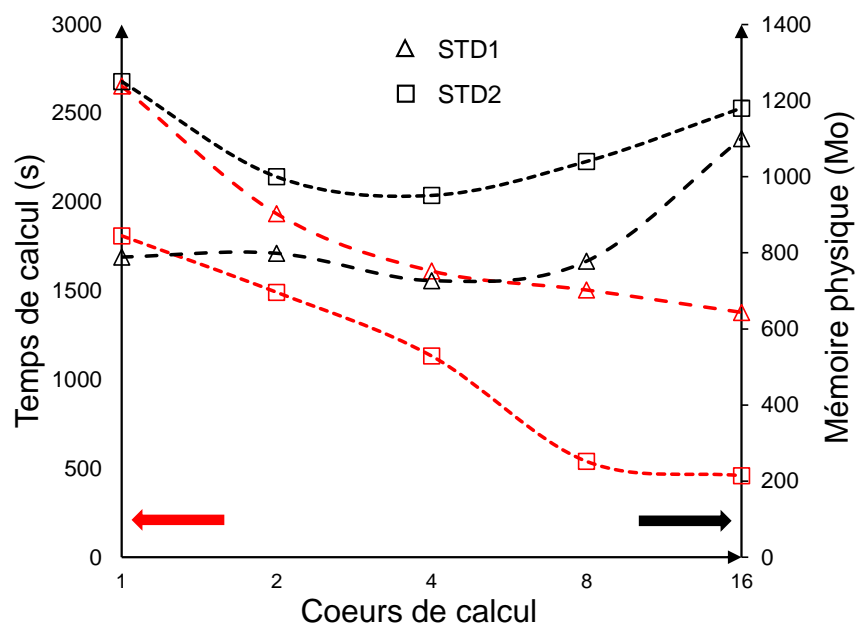


FIGURE 4.4 – Benchmark effectué sur le nombre de cœurs de calcul. Les symboles triangulaires représentent l'étude 1 et les symboles carrés l'étude 2. En rouge sont indiqués les temps de calculs et en noir la mémoire utilisée lors du calcul.

4.3 Régime Stationnaire Dynamique

Le régime Stationnaire Dynamique est caractérisé par la stabilité de l'écoulement liquide/gaz. Il est obtenu pour de grands nombres de Reynolds pour l'écoulement liquide ($Re_l \geq 10^2$).

Des recirculations peuvent être présentes au sein du cône dans ce régime. Nous allons présenter l'influence de la géométrie (§ 4.3.1), des paramètres procédés (liquide § 4.3.2, gaz § 4.3.3 et électrique § 4.3.4) et des propriétés du fluide (§ 4.3.5) sur cette cellule de recirculation.

Nous étudions ces mouvements de recirculations à l'aide du modèle développé au chapitre 3.

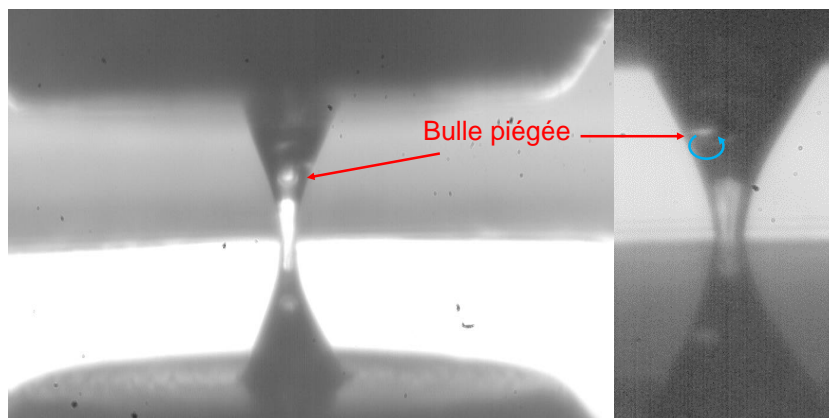


FIGURE 4.5 – Photographie d'une bulle d'air dans le cône de liquide en régime stationnaire. (Gauche) La bulle est immobile, piégée dans la cellule de recirculation ; (Droite) La bulle a un mouvement de rotation (environ 0.86 ms par tour).

4.3.1 Géométrie du domaine

Par choix de délimitation de l'étude (sur une base bibliographique (Rosell-Llompart et Gañán-Calvo, 2008) et expérimentale (Berri, 2018)), les paramètres géométriques dominants dans le procédé d'aérospray sont (voir Figure 3.9) :

- Le diamètre intérieur adimensionné de la buse $D'_i = D_i/D_o$
- La hauteur adimensionnée buse/éjecteur $H' = H/D_o$

La dépendance de la taille de la cellule de recirculation s_R à ces deux paramètres géométriques est détaillée dans les paragraphes suivants.

4.3.1.1 Diamètre de la buse D'_i

L'influence du diamètre intérieur de la buse D'_i est étudié en faisant une étude paramétrique portant sur D_i du modèle de cône développé au chapitre 3. La Figure 4.6 présente l'influence de D'_i sur la taille de la cellule de recirculation s_R en régime Stationnaire Dynamique. En effet, dans une configuration donnée, pour un faible D'_i de l'ordre de 0.5, le cône est dans un régime de stabilité « absolue » : c'est à dire qu'il n'y a pas de cellules de recirculation ($s_R = 0$). Cependant, une augmentation progressive de ce diamètre conduit à l'apparition d'un refoulement au niveau du jet, générant une recirculation. Une augmentation de D'_i sur $[0.5, 1.5]$ conduit à un élargissement de la cellule de recirculation. Pour un diamètre trop grand $D'_i > 1.5$, le cône oscille (la base de la demi-goutte devient trop grande et les effets de tension de surface ne suffisent pas à maintenir le cône de liquide).

Voir Figure 4.7 ci-dessous trois exemples de cas pour des valeurs caractéristiques de D'_i l'allure du cône.

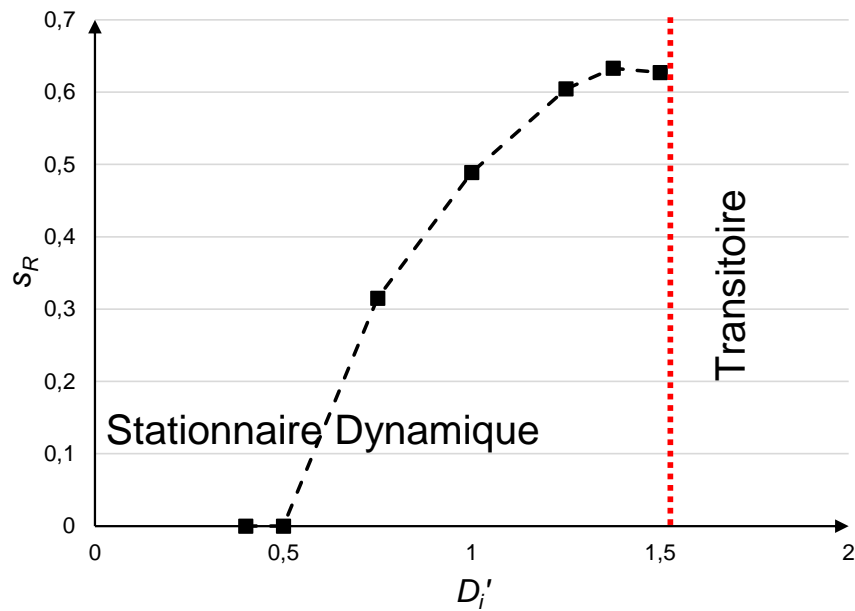


FIGURE 4.6 – Tracé de la taille de la cellule de recirculation s_R en fonction du diamètre intérieur de la buse D_i' . $Re_l = 145.8$, $We_g = 16.3$. Si D_i' est plus grand que 1.5, l'écoulement atteint le régime transitoire (représenté par la ligne pointillée).

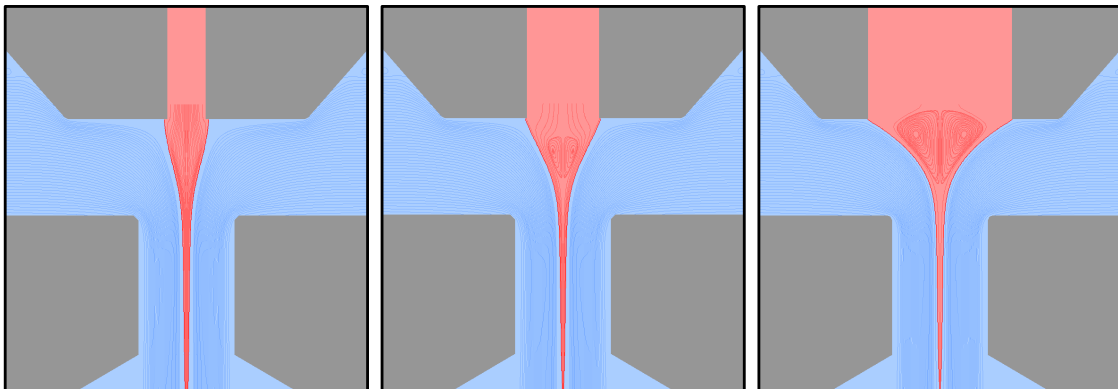


FIGURE 4.7 – Morphologies obtenues par simulation numérique, où les différents domaines ont été mis en couleur : liquide (rouge), gaz (bleu), partie solide (gris). Lignes de champ de vitesse pour trois valeurs différentes de D_i' . De gauche à droite : 0.4, 0.75, 1.5.

Nous observons également que le diamètre du jet liquide d_j varie peu en fonction de D_i . Il y a une variation de moins de $\sim 15\%$ entre les différentes buses étudiées ($D_i \in [80 \mu\text{m}, 350 \mu\text{m}]$), correspondant aux trois configurations Figure 4.7.

*
* *

Ce résultat est complémentaire aux résultats d'Herrada *et al.* (2008) qui détaillent le comportement de la cellule de recirculation en fonction de Q_l principalement. En effet, il montre que D_i' est une variable sensiblement active sur s_R . Cette complémentarité invite à proposer une nouvelle expression analytique permettant la caractérisation de $s_R = f(Q_l, D_i)$, pour améliorer les expressions existantes (Montanero *et al.*, 2011).

Expérimentalement, il peut être ardu de mesurer avec précision le diamètre du jet produit par l'aérospray, celui-ci étant confiné dans l'éjecteur. Pour cette raison, l'hypothèse est faite que les gouttes produites ont un diamètre proportionnel à celui du jet, et il est préféré de mesurer ces gouttelettes. Berri (2018) trouve expérimentalement que le diamètre de la buse D'_i n'a pas d'influence sur la taille des gouttes. Cependant, dans les conditions de ses expériences, ce résultat n'est pas en désaccord avec les simulations effectuées :

- L'intervalle étudié dans cette recherche est $D'_i \in [0.625, 1]$, donc ne couvrant que deux points sur la courbe Figure 4.6, et peut permettre de ne pas observer d'action significative sur s_R .
- L'indicateur choisi est différent : nous utilisons ici s_R et non la distribution des diamètres de gouttes. Celles-ci peuvent être constantes tout en étant dans des configurations où la cellule de recirculation se développe.
- Dans cet intervalle, le régime est surtout stationnaire dynamique, et il est connu que dans ce mode d'écoulement, le diamètre du jet dépend peu de D'_i (Gañán-Calvo, 1998). Il n'est donc pas surprenant de ne pas voir de dépendance du diamètre des gouttes produites à D'_i .

Acero *et al.* (2012) développe un système de buse améliorée, afin de supprimer la cellule de recirculation pour atteindre le régime stationnaire dynamique pour des débits liquides Q_l très faibles. Il insère une aiguille dans la buse, ce qui vient empêcher la boucle de reflux de se créer (voir Figure 4.8). L'idée générale de ces travaux est de bloquer la zone spatiale normalement occupée par la boucle de recirculation, mais ce faisant, la section de la buse par laquelle est émise le liquide est *artificiellement réduite*. Si l'aiguille est de diamètre D_a , alors cette section est réduite de $\delta S = \pi D_a^2/2$, et est équivalente à une buse de diamètre intérieure de :

$$D'_{i \text{ mod}} = D'_i \sqrt{1 - \left(\frac{D'_a}{D'_i}\right)^2} \quad (4.3)$$

En notant $D'_a = D_a/D_o$. Plusieurs résultats provenant de simulations numériques confirment la suppression de cette recirculation avec l'ajout de cette aiguille dans la buse (voir Figure 4.8).

On peut faire le parallèle entre cette étude et les résultats obtenus (Figure 4.6). Acero *et al.* (2012), en ajoutant l'aiguille, diminue D'_i , et ce faisant fait disparaître la cellule ($s_R = 0$), ce qui est en accord avec les résultats du modèle.

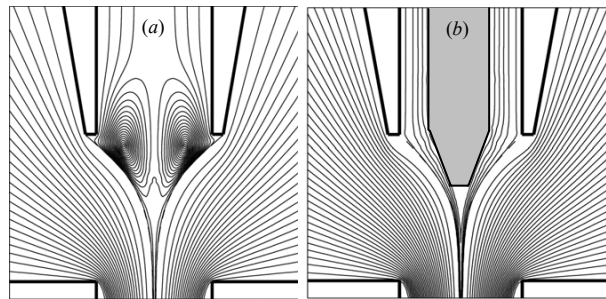


FIGURE 4.8 – (Acero *et al.*, 2012) Configuration standard (gauche) du flow focusing, et configuration développée et étudiée (droite). La barre à l'intérieur de la buse empêche la cellule de recirculation de se développer.

Dans le procédé d'aérospray, en régime Stationnaire Dynamique, une variation du diamètre intérieur de la buse impacte la stabilité globale du liquide. Une faible valeur de D'_i favorise la stabilité inconditionnelle du cône, tandis qu'une augmentation de ce paramètre contribue à une augmentation de s_R , puis une instabilité globale du cône (régime Transitoire). Cependant, D'_i ne

semble pas avoir d'effet sur le diamètre du jet et des gouttes formées.

L'influence de D'_i sur la ligne de transition (SD/T) est développée au paragraphe § 4.3.6.

4.3.1.2 Distance buse/éjecteur H'

La Figure 4.9 présente l'influence de H' sur la forme du cône. On constate que s_R est affine en fonction de H' . Autrement dit, $s_R \propto (H' - 1.2)$, une augmentation de H' au-delà de 1.2 aboutit à la création d'une cellule de recirculation. Pour une valeur trop élevée de H' (au-delà de 2.25), alors le régime d'écoulement liquide passe en Transitoire : le cône oscille.

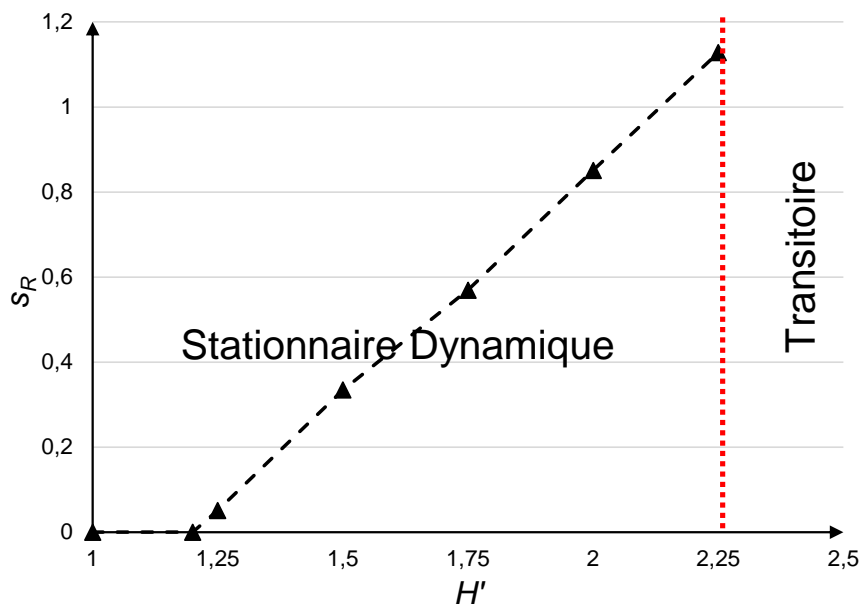


FIGURE 4.9 – Influence de H' sur la taille de recirculation s_R .

La Figure 4.10 montre, pour différentes valeurs de H' , l'allure du cône de liquide en régime Stationnaire Dynamique. On observe, pour des fortes valeurs de H' , que le diamètre de la base du cône (qui est D'_i dans la gamme du flow focusing) est plus grand : la ligne de contact de la goutte liquide sur la buse se déplace sur la partie inférieure de la buse. Ce phénomène sera développé à la partie suivante, ayant un impact majeur sur la période d'oscillation du cône en régime transitoire.

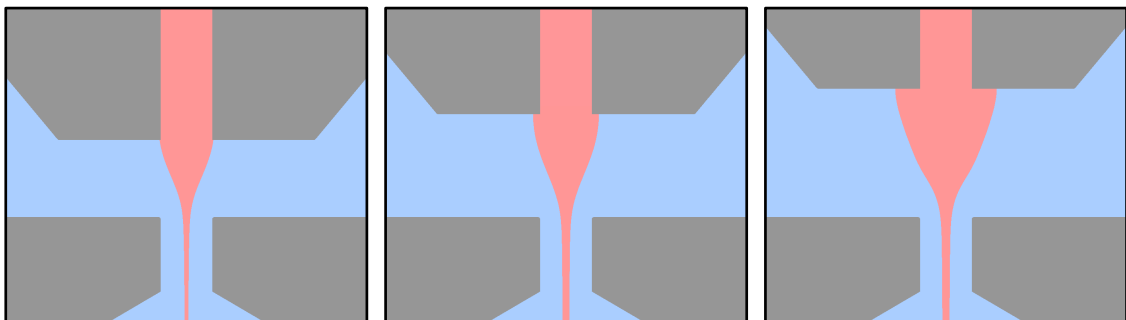


FIGURE 4.10 – Résultats des simulations numériques pour plusieurs valeurs élevées de H' . De gauche à droite : 1,5, 2, 2,5.

De plus, nous avons réalisé une expérience pour valider la robustesse du cône face aux tolérances d'alignement buse/éjecteur montre que le cône de liquide reste stable en régime Stationnaire Dynamique, même en cas de décentrage. La buse utilisée, dont l'orifice est volontairement décentré, et le cône obtenu avec celle-ci, sont présentés Figure 4.11.

Ce résultat expérimental permet de valider l'hypothèse d'axisymétrie de l'écoulement, utilisée dans notre modèle : même dans un cas de décentrage, le cône reste robuste. Dans ce cas, il est pertinent de considérer un écoulement symétrique par rapport à un axe (les mêmes phénomènes ont lieu).

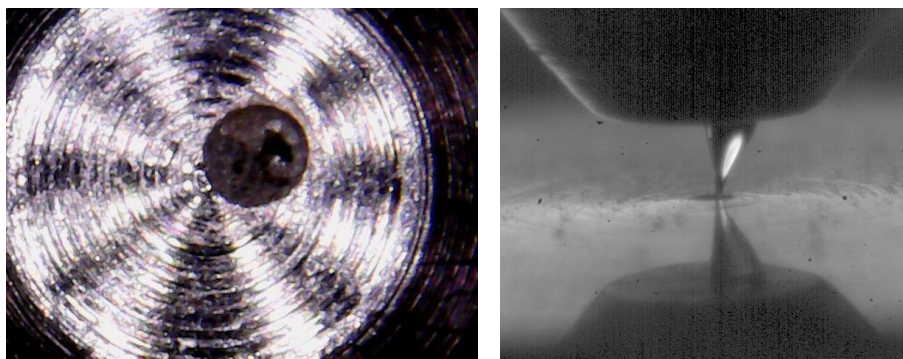


FIGURE 4.11 – (Gauche) Photo de la buse décentrée. $D_i = 200 \mu\text{m}$; (Droite) Prise de vue du cône de liquide en régime stationnaire avec la buse décentrée.

*
* *

Vega *et al.* (2010) ont prouvé que H intervient de manière complexe dans le régime d'écoulement (ligne de transition SD/T). Berri (2018) observe également (voir Figure 4.12) une variation de la forme du cône avec l'augmentation de H . En effet, à un débit liquide Q_l fixé, pour un $H \sim D_o$ faible, si le régime est stable (SD), l'augmentation de $H \simeq kD_o$, $k \geq 2$, modifie cette stabilité et le cône de liquide devient instable. Ce résultat est directement observé avec la simulation numérique : dans la Figure 4.10 l'image de droite correspond au H' le plus grand possible atteignable. Au-delà de cette valeur, le cône devient instable (ce qui équivaut à $k \sim 2.5$ ici).

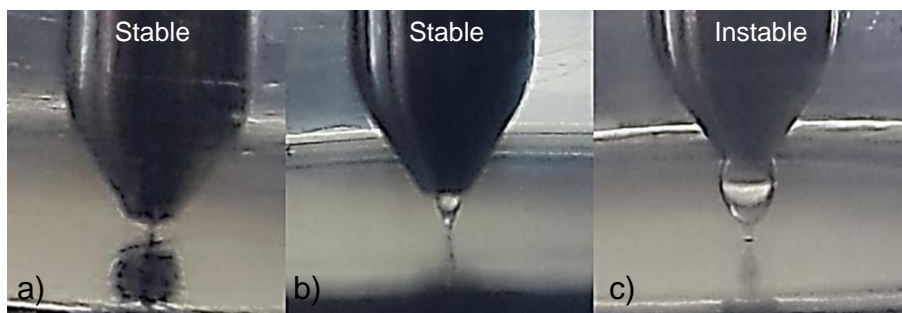


FIGURE 4.12 – (Berri, 2018) Visualisation du cône de liquide pour trois valeurs de H croissantes, de gauche à droite. Dans les trois clichés, le débit liquide Q_l et la pression de gaz dans la chambre ΔP_g sont invariants. L'écoulement est en régime stationnaire dynamique dans les deux photos à gauche, et transitoire à droite.

On trouve dans les travaux de Gañán-Calvo et Barrero (1999) des résultats expérimentaux complémentaires à notre étude Figure 4.11 : en effet, ils étudient l'impact de la tolérance d'alignement

ment entre la buse et l'orifice de l'éjecteur. Voir à la Figure 4.13 plusieurs exemples de décentrages entre les deux pièces mécaniques composant l'aérospray.

Ils concluent de leurs résultats une indépendance de la technique par rapport au désaxage du système, en régime Stationnaire Dynamique.

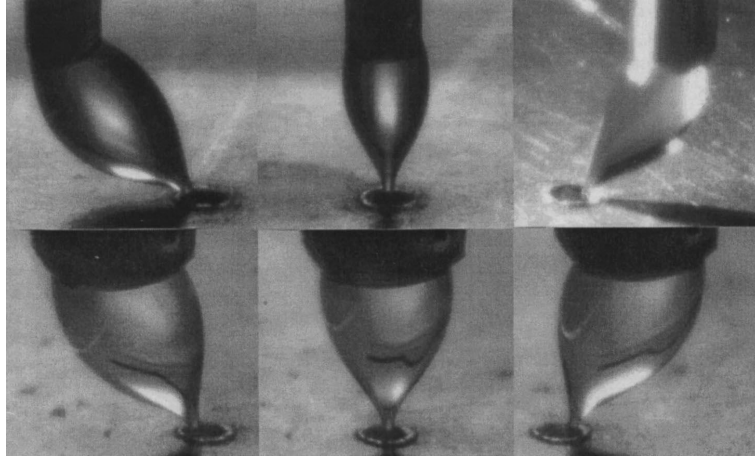


FIGURE 4.13 – (Gañán-Calvo et Barrero, 1999) Différentes configurations avec un désaxage de la buse par rapport à l'éjecteur. Dans tous les cas, le liquide n'est jamais en contact avec l'éjecteur.

Dans le procédé d'aérospray, en régime Stationnaire Dynamique, la distance H' entre la buse et l'éjecteur peut influencer la stabilité du cône de liquide. Une augmentation de H' rend le cône instable en augmentant progressivement la taille de la cellule de recirculation s_R .

De plus, les expériences sont en accord avec la littérature pour affirmer que le régime Stationnaire Dynamique admet une tolérance sur l'alignement buse-éjecteur du système (un désaxage est possible sans modifier la stabilité du cône), ce qui permet de renforcer l'hypothèse effectuée au chapitre précédent, utilisant une symétrie axiale de l'écoulement en sortie de buse.

4.3.2 Débit liquide Q_l

La Figure 4.14 présente le diamètre du jet adimensionné en fonction du débit liquide, quand le cône est en régime Stationnaire Dynamique. Plus le débit liquide Q_l augmente, plus le diamètre du jet augmente.

La Figure 4.15 présente la taille de la cellule de recirculation s_R par rapport au débit liquide Q_l . On peut décomposer le comportement du cône en fonction de la valeur de cette variable.

- $Q_l > Q_r$: le cône est « inconditionnellement stable », le champ de vitesse est uniformément dirigé vers le bas. Le profil de vitesse en sortie de la buse est un profil de Poiseuille. Plus le cône se rétrécit, plus ce profil est modifié : le liquide à l'interface est accélérée par le cisaillement du gaz et devient plus rapide que le liquide sur l'axe de symétrie.
- $Q_{\min} < Q_l < Q_r$: une recirculation apparaît. Il s'agit d'un reflux généré par une trop forte accélération du liquide dans la couche limite à l'interface avec l'air. Voir la Figure 4.16 au paragraphe suivant, où un schéma expliquant le principe physique est présenté. Plus Q_l est faible dans cet intervalle, plus s_R est grand.
- $Q_l < Q_{\min}$: La recirculation est devenue trop grande et le reflux minimise l'énergie du cône : l'écoulement devient transitoire, et le cône oscille.

*
* *

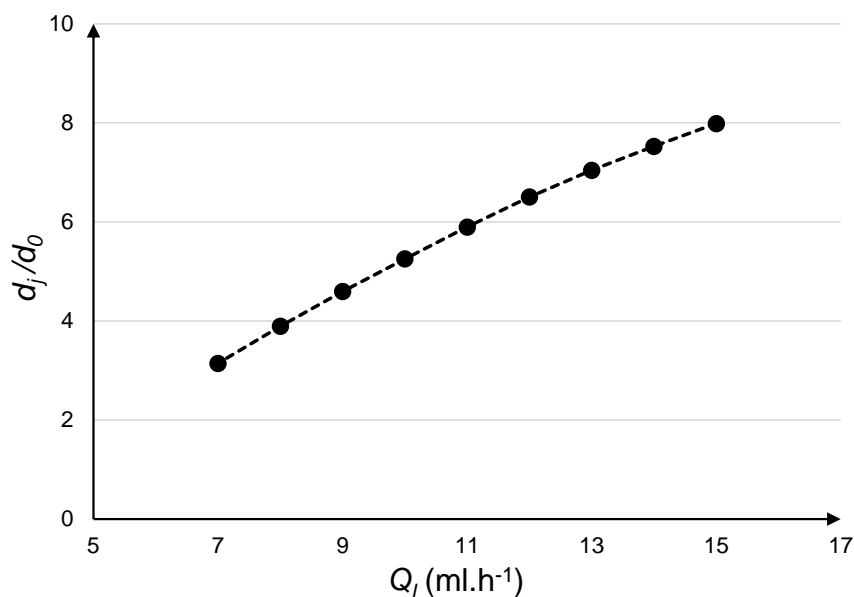


FIGURE 4.14 – Diamètre du jet adimensionné d_j/d_0 en fonction du débit liquide Q_l .

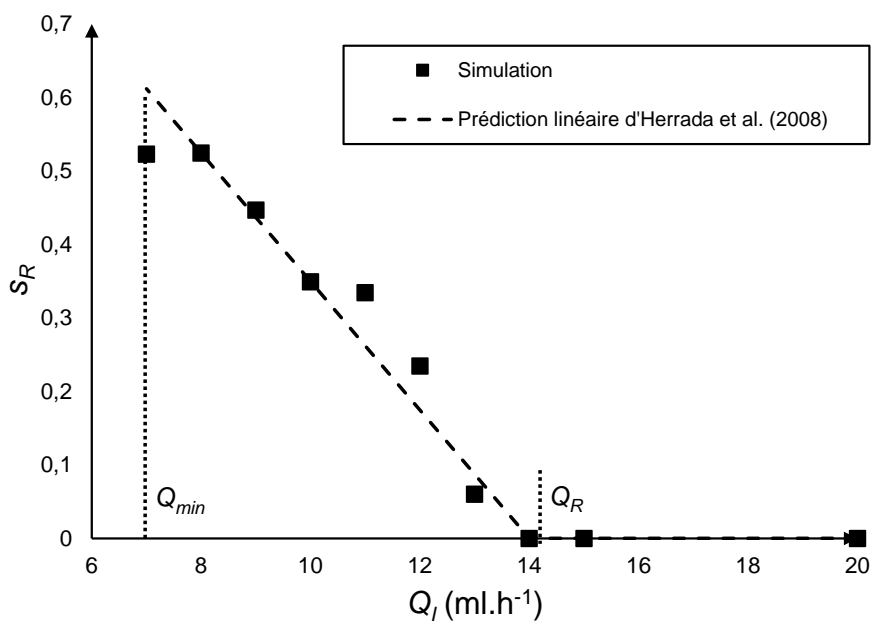


FIGURE 4.15 – Points : Taille adimensionnée s_R de la cellule de recirculation en fonction du débit liquide Q_l . La droite en tirets est la prédiction linéaire d'Herrada *et al.* (2008), et les deux lignes pointillées mettent en avant les deux valeurs de Q_{min} et Q_D . $D'_i = 0.75$; $Ca^* = 0.112$.

Le débit liquide Q_l a une influence sur le régime stationnaire dynamique. En effet, une augmentation de ce paramètre conduit une meilleure stabilité du ménisque, via une augmentation du diamètre de jet (équation (2.2) et Figure 4.14). Plus le jet a un diamètre élevé, moins le cône-jet va se rompre : c'est l'effet pinch-off (Yang *et al.*, 2006). En effet, on peut calculer la pression de Laplace (différence de pression entre le liquide et le gaz) comme le produit du coefficient de

tension de surface et la courbure κ de la surface :

$$P_l - P_g = \gamma\kappa \quad (4.4)$$

Plus le diamètre de jet est grand, plus la courbure de l'interface liquide/air est faible, donc moins il y a une différence de pression $\delta P = P_l - P_g$ entre les deux phases. L'interface est plus robuste, et le ménisque perd sa forme de cône pour devenir plus lisse.

4.3.2.1 Origine de la recirculation

Dans l'étude physique du flow focusing, Herrada *et al.* (2008); Montanero *et al.* (2011) analysent le fonctionnement de la cellule de recirculation en produisant un raisonnement, pour les liquides à faible viscosité, fondé sur la continuité de l'écoulement. Nous avons vu au chapitre 2 le principe physique de ce reflux à l'intérieur du cône d'électrospray. Il est détaillé Figure 4.16 : à gauche, si le débit liquide Q_l est plus grand que le débit entraîné par le gaz sur l'interface Q_r , alors il n'y a pas de recirculation. À l'inverse, si $Q_l < Q_r$, alors un reflux est observé.

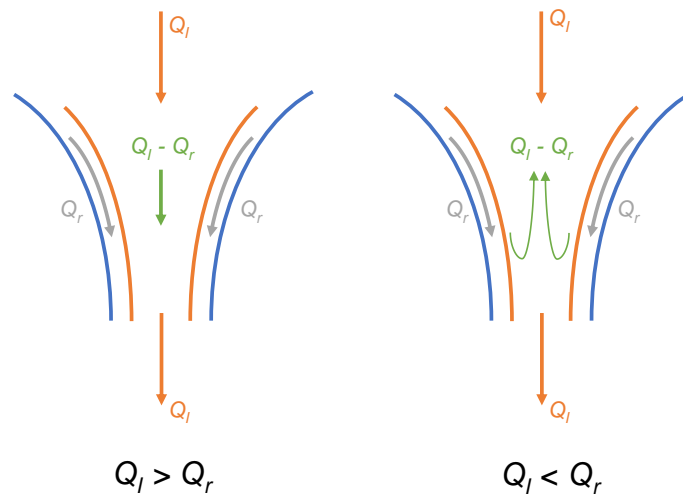


FIGURE 4.16 – Schéma décrivant le fonctionnement de la cellule de recirculation, pour des liquides de faibles viscosités, en régime stationnaire comme décrit par Montanero *et al.* (2011).

4.3.2.2 Phénomène physique de recirculation

Les résultats présentés Figure 4.15 sont en corrélation avec l'hypothèse de dépendance linéaire proposée analytiquement, et validée numériquement, par Herrada *et al.* (2008) :

$$s_R \sim \frac{\rho_l}{\mu_l D_o} (Q_r - Q_l) \quad (4.5)$$

avec Q_r le débit liquide seuil en deçà duquel le phénomène de recirculation est observé. Cette formulation provient d'un raisonnement physique simple sur l'écoulement à l'intérieur du cône : le débit de reflux (*backflow*) $Q_b = Q_r - Q_l$ génère la cellule de recirculation sur une longueur s (voir Figure 4.16). Herrada *et al.* (2008) suppose qu'au sommet de cette cellule, la contrainte visqueuse est du même ordre de grandeur que l'inertie du liquide en provenance de la buse (ce qui donne $s \sim \rho_l Q_b / \mu_l$).

La fonction $s_R = f(Q_l)$ (Figure 4.15) peut être ajustée par une régression linéaire, tracée en tirets, ayant un coefficient de corrélation $R^2 = 0.9476$. Le comportement de cette fonction est donc identique à celle caractérisée dans les travaux d'Herrada *et al.* (2008) ($R^2 = 0.944$).

Il est possible d'obtenir une approximation du débit liquide seuil de recirculation $Q_r \sim U_s \delta_l^2$, où U_s et δ_l sont respectivement la vitesse du liquide à l'interface et la largeur de la couche limite à l'intérieur du liquide. La formule de Blasius donne $\delta_l^2 \simeq \sqrt{\mu_l D_o / \rho_l U_s}$, soit :

$$Q_r \sim \frac{D_o \mu_l}{\rho_l} \quad (4.6)$$

4.3.2.3 Relation entre Q_{\min} et Q_r

En adaptant le raisonnement d'Herrada *et al.* (2008), il est possible d'estimer le débit liquide seuil en dessous duquel le régime transitoire apparaît. Nous pouvons supposer que le cône devient oscillant lorsque le débit liquide de reflux $Q_b = Q_r - Q_l$ devient qualitativement supérieur au débit liquide émis par la buse Q_l :

$$Q_l < Q_b \quad (4.7)$$

ce qui est équivalent à l'expression $Q_l < Q_r/2$, ou :

$$\boxed{Q_{\min} \simeq \frac{Q_r}{2}} \quad (4.8)$$

Ce résultat est en bonne corrélation avec la courbe présentée Figure 4.15, où $Q_r \simeq 14 \text{ ml.h}^{-1}$ et $Q_{\min} \simeq 7 \text{ ml.h}^{-1}$.

Cette nouvelle relation entre Q_{\min} et Q_r nous permet de reformuler s_R en transformant l'équation 4.5 :

$$s_R = 1 - \frac{Q_l}{Q_r} \quad (4.9)$$

Pour un débit liquide proche du débit seuil Q_{\min} , on obtient $s_R = 1 - 1/2 = 0.5$; c'est bien une valeur approchée de s_R constatée Figure 4.15.

4.3.3 Pression de gaz ΔP_g

La Figure 4.17 présente l'influence de la pression de gaz ΔP_g sur la taille de la cellule de recirculation s_R . On constate que la pression de gaz joue un rôle important dans le régime Stationnaire Dynamique. Pour une différence de pression élevée, il y a une réduction de la taille de la cellule de recirculation.

La Figure 4.18 présente les clichés des deux valeurs extrêmes du domaine de stabilité du cône. L'analyse des images donne les diamètres du jet liquide pour chaque pression appliquée, respectivement $37 \mu\text{m}$ à gauche et $14 \mu\text{m}$ à droite. On remarque que le volume de liquide présent entre la buse et l'éjecteur est réduit drastiquement : il est réduit d'environ 65% entre la photographie de gauche et celle de droite. Nous pouvons relier, dans ce cas, la diminution d'espace disponible pour le développement d'une cellule de recirculation et la pression de gaz (résultat retrouvé Figure 4.17).

La Figure 4.19 présente l'influence de la pression de gaz ΔP_g sur le diamètre de jet d_j . On constate que plus la différence de pression appliquée dans la chambre est élevée, plus le jet est réduit. On observe une influence non-linéaire : pour 0.1 bar, $d_j = 11.4 \mu\text{m}$, et le jet est réduit de moitié pour 0.3 bar avec $d_j = 5.9 \mu\text{m}$. Pour une pression plus élevée de 0.5 bar, le diamètre de jet diminue légèrement pour atteindre $d_j = 4.5 \mu\text{m}$.

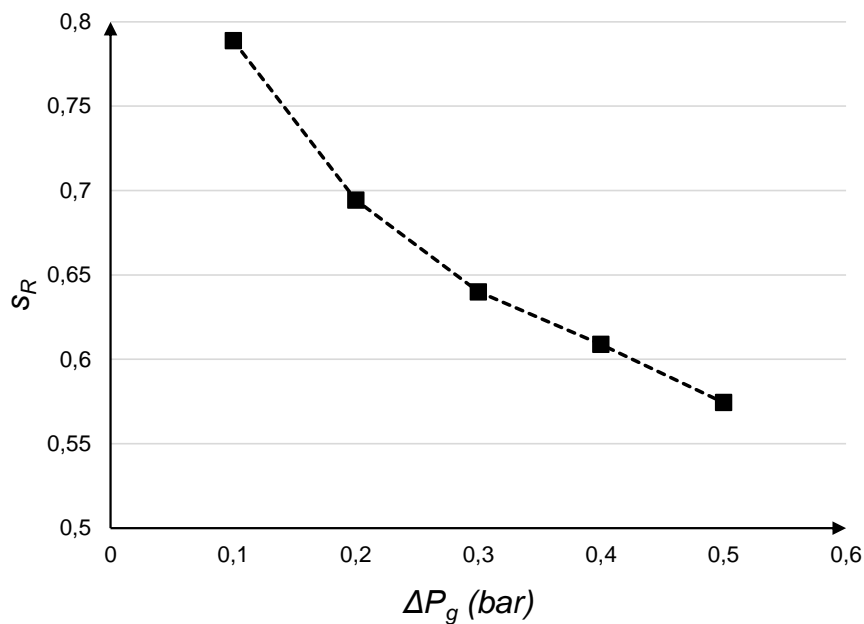


FIGURE 4.17 – Influence de la pression de gaz ΔP_g sur la taille de la cellule de recirculation s_R (résultats numériques).

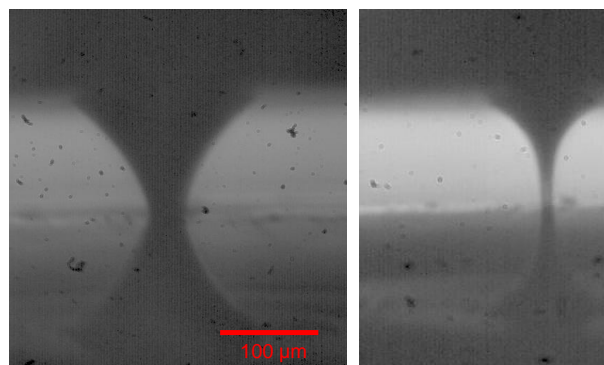


FIGURE 4.18 – Clichés instantanés du cône pour les deux valeurs extrêmes de pression du domaine de stabilité SD. (Gauche) $\Delta P_g = 0.08$ bar ; (Droite) $\Delta P_g = 1.87$ bar. Le débit liquide est constant $Q_l = 3$ ml.h⁻¹.

*
* *

Des éléments de comparaison de ces résultats avec la littérature sont présents dans les travaux d'Herrada *et al.* (2008) : même si leurs évaluations analytiques ne permettent pas de décrire une influence de ΔP_g sur s_R , on peut constater qu'une augmentation de la pression de gaz dans la chambre, à géométrie donnée, diminue la taille de la cellule de recirculation (via une augmentation du débit de gaz).

Les résultats expérimentaux, bien que ne permettant pas de conclure sur l'influence de la pression de gaz appliquée sur la taille de recirculation, montrent la même tendance que dans la littérature.

Enfin, une bonne corrélation est prouvée en prenant un indicateur plus visible expérimentalement, le diamètre de jet d_j . Le modèle est cohérent avec les expériences réalisées (Figure 4.18), ainsi que les précédents travaux de Gañán-Calvo (1998) et Herrada *et al.* (2008). En effet, les

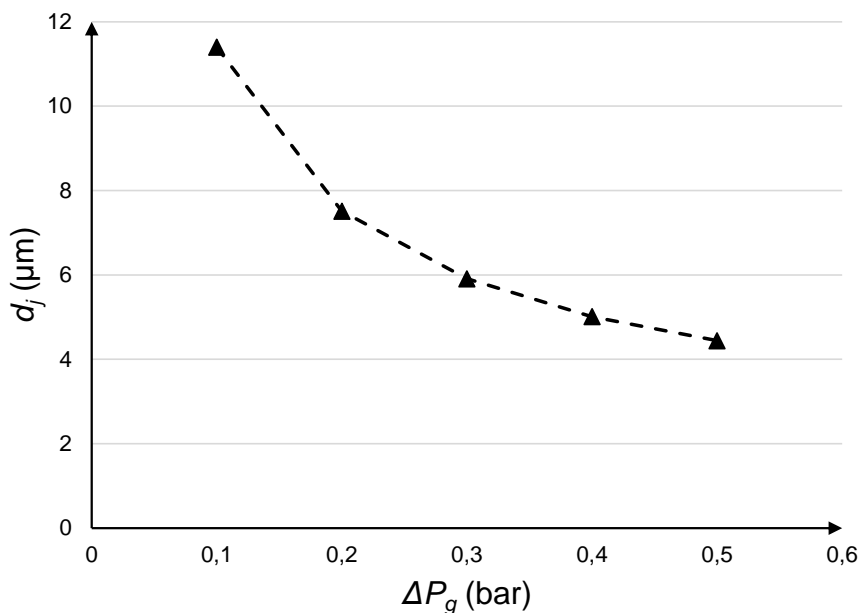


FIGURE 4.19 – Influence de la pression ΔP_g sur le diamètre du jet d_j (résultats numériques).

résultats numériques permettent de quantifier le diamètre de jet obtenu avec le modèle du cône de liquide. La décroissance de d_j pour une augmentation de ΔP_g est bien retrouvée.

4.3.4 Champ électrique ΔV

Dans cette partie, les résultats de simulations du modèle développé au chapitre précédent (§ 3.2.2.2) sont présentés. L'influence de l'électricité sur l'écoulement liquide en sortie de buse est exploré, dans le régime stable de l'électro-aérospray. La Figure 4.20 illustre la modification de l'écoulement liquide dans la zone entre la buse et l'éjecteur.

L'influence de la différence de potentiel ΔV sur la taille de recirculation s_R est présentée à la Figure 4.21.

*
* *

Dans la Figure 4.20, nous remarquons que le rayon local de l'interface varie peu en fonction du potentiel appliqué sur la buse. Le volume total du cône est réduit de quelques pourcents entre $V = 0$ V et $V = 500$ V.

Cependant, nous observons que la différence de potentiel $\Delta V = V_b - V_e$ joue un effet sur la recirculation dans le cône de liquide : en effet, nous observons que s_R augmente de manière affine en fonction de ΔV (pour les valeurs supérieures à 100 V. Il s'agit d'un résultat en corrélation avec l'origine physique de la recirculation en aérospray, présentée Figure 4.16. La présence de charge électrique à la surface du jet accélère le liquide et augmente la valeur du débit entraîné Q_r , ce qui augmente le phénomène de reflux.

Il est possible de noter que la pression électrostatique a une influence inverse à celle de la pression de gaz : une augmentation du potentiel augmente la taille de la cellule s_R . Il est possible de décomposer la force électrique selon les deux composantes normale et tangentielle. La composante tangentielle de cette force est dans le sens de la normale sortante du cône de liquide, et la composante normale est dans le sens de l'écoulement vers le bas du jet. Les résultats de la Figure 4.21 sont en accord avec les résultats de l'aérospray (sans électricité) présentés Figure 4.17.

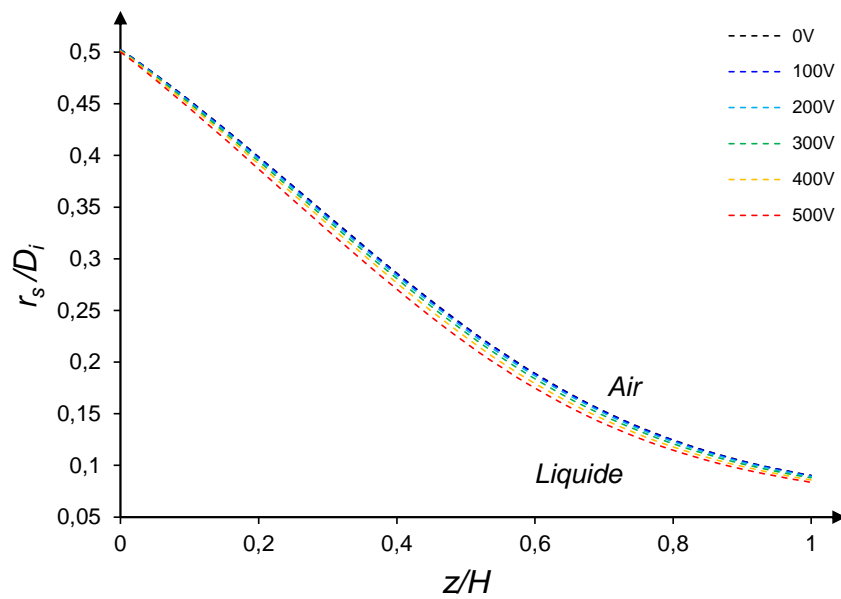


FIGURE 4.20 – Rayon du cône de liquide en électro-aérospray en fonction de la différence de potentiel buse-éjecteur ΔV . $D_i = 150 \mu\text{m}$, $H = 200 \mu\text{m}$, $D_o = 200 \mu\text{m}$, $Q_l = 8 \text{ ml.h}^{-1}$, $\Delta P_g = 0.3 \text{ bar}$.

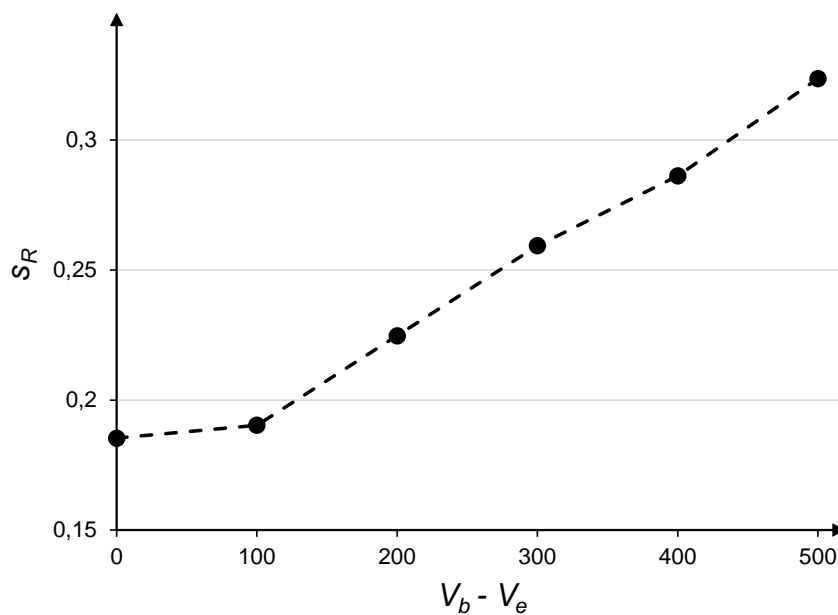


FIGURE 4.21 – Taille de recirculation d_R en électro-aérospray en fonction de la différence de potentiel buse-éjecteur ΔV . $D_i = 150 \mu\text{m}$, $H = 200 \mu\text{m}$, $D_o = 200 \mu\text{m}$, $Q_l = 8 \text{ ml.h}^{-1}$, $\Delta P_g = 0.3 \text{ bar}$.

Il peut être utile de noter que le modèle ne tient pas compte de la tension de claquage, ou *disruptive*, dans le gaz. Dans l'expérience, des décharges peuvent se produire pour un champ électrique à partir d'un certain seuil E_{max} proche du champ atteint pour $\Delta V = 500 \text{ V}$ dans

notre configuration. Une exploration de la gamme des potentiels électriques supérieurs ne serait donc pas réaliste sans la prise en compte de décharges.

4.3.5 Viscosité du liquide μ_l

La Figure 4.22 présente les résultats numériques obtenus avec la simulation du cône d'aérospray pour des liquides de différentes viscosités entre 5×10^{-4} Pa.s et 1×10^{-2} Pa.s. On constate que, dans une configuration donnée (H' , D'_i , Q_l et ΔP_g), une augmentation de la viscosité du liquide conduit à une réduction régulière de la taille de la cellule de recirculation.

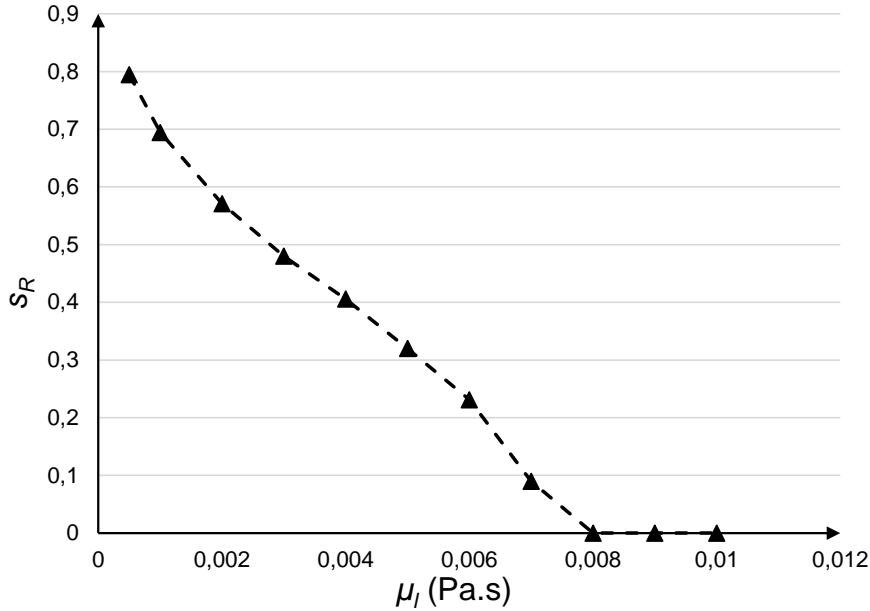


FIGURE 4.22 – Influence de la viscosité liquide μ_l sur la taille s_R de la recirculation.

La viscosité du liquide dans le *flow focusing* (procédé d'aérospray) est un paramètre essentiel, qui intervient dans tous les niveaux du spray : la stabilité du cône, la fragmentation du jet et le comportement des gouttes (ces deux derniers points sont abordés dans les chapitres ultérieurs de cette thèse).

*
* *

Il est connu, avec les simulations de Montanero *et al.* (2011) et la confirmation expérimentale de Gañán-Calvo *et al.* (2011) (voir Figure 4.23), que le paramétrage de la viscosité du liquide permet d'atténuer ou non la cellule de recirculation. Nous avons développé précédemment le fonctionnement de cette cellule : le gaz produit une force tangentielle forte qui guide et enveloppe le liquide en un jet fin, ce qui a pour effet de générer un débit de reflux à l'interface Q_r (Montanero *et al.*, 2011). Ce débit, s'il est supérieur au débit en entrée de la buse Q_l , crée un reflux à l'intérieur du cône de liquide. Le rôle de la viscosité, dans ce phénomène, est de réduire drastiquement le débit de recirculation Q_r (réduisant de ce fait s_R).

Montanero *et al.* (2011) et Herrada *et al.* (2008) étudient surtout le débit Q_{\min} de transition SD/T en fonction de la viscosité, mais ne caractérisent pas la taille s_R de la cellule de recirculation.

On constate que, dans une configuration donnée (H' , D'_i , Q_l et ΔP_g), une augmentation de la viscosité du liquide conduit à une réduction régulière de la taille de la cellule de recirculation. Ce

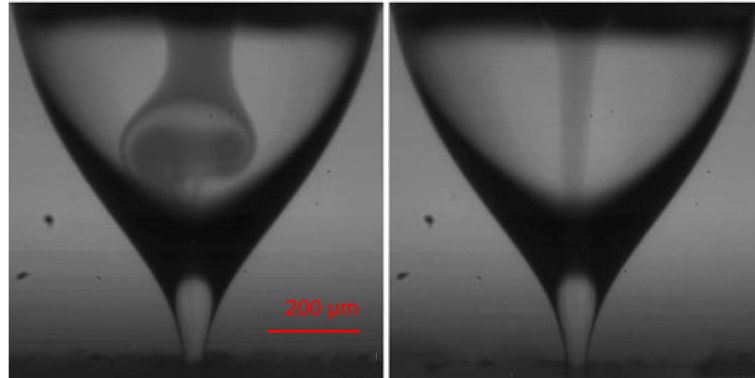


FIGURE 4.23 – Visualisation expérimentale du flow focusing de deux liquides (Gañán-Calvo *et al.*, 2011). (Gauche) Viscosité liquide $\mu_l = 5$ cp ; (Droite) $\mu_l = 12$ cp. La boucle de recirculation est visible à l’aide d’un montage de buses concentriques, où deux liquides de viscosités similaires sont utilisés, mais où le liquide intérieur est coloré.

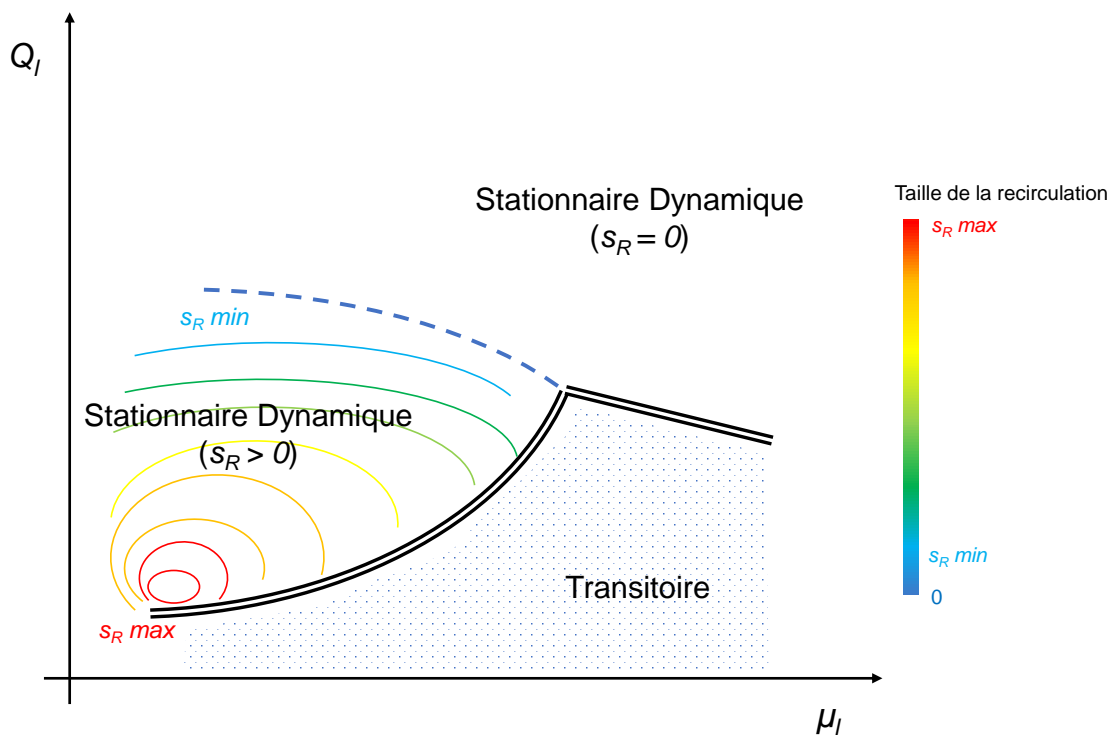


FIGURE 4.24 – Schéma de modes de principe de la taille de recirculation s_R dans un diagramme (μ_l, Q_l) .

résultat est en corrélation avec les travaux expérimentaux de Gañán-Calvo *et al.* (2011) illustrés Figure 4.23. Sur la photographie de gauche, on peut calculer $s_R \simeq 0.3$, ce qui est en accord avec les ordres de grandeurs de s_R présentés sur la courbe Figure 4.22.

Pour étudier plus en détail l’influence de la viscosité sur la boucle de recirculation en régime SD, on peut raisonner avec une fonction à deux variables $s_R = f(Q_l, \mu_l)$ (l’influence de la différence de pression sur s_R n’est pas prise en compte ici). La Figure 4.24 représente une vue globale du plan (Q_l, μ_l) dans les gammes étudiées ici, avec les lignes de niveaux de la variable s_R

dans ce plan. La ligne bleue continue est la transition entre les deux régimes SD/T. Au-dessus de cette ligne (vers des Q_l plus grands), le régime est SD. Pour des valeurs faibles à moyennes de viscosité liquide μ_l , on constate la présence d'une recirculation (zone $s_R > 0$). La taille de cette boucle diminue lorsque le débit liquide ou la viscosité sont augmentés (résultat combiné des Figures 4.15 et 4.22).

4.3.6 Synthèse

Dans cette partie, plusieurs résultats nouveaux sur les phénomènes physiques se produisant en régime d'écoulement Stationnaire Dynamique ont été établis. Les résultats de simulation du modèle numérique développé ont été analysés et confrontés aux résultats expérimentaux, ainsi qu'aux travaux présents dans la littérature (numériques, analytiques et expérimentaux). Nous avons montré avec succès la pertinence du modèle dans le régime SD.

Les travaux de cette partie permettent de caractériser les conditions initiales pour le modèle du jet, dont les résultats sont présentés au chapitre suivant. En particulier, le diamètre de jet à étudier est d'environ $d_j \simeq 10 \mu\text{m}$.

Dans la partie suivante, l'étude porte sur les résultats des simulations du cône en régime transitoire.

4.4 Régime transitoire

Comme vu précédemment, le cône devient instable pour certaines valeurs de paramètres.

Cette partie est consacrée à l'étude poussée de ce régime d'oscillation du ménisque (régime Transitoire).

Le modèle montre les successions d'états (illustrés Figure 4.1).

- (a) Le liquide sort par la buse à un débit Q_l
- (b) La goutte prend une forme cônique avec les forces normales et tangentielles qui s'exercent sur sa surface par le gaz
- (c) Un jet est formé et sort de la chambre sous pression
- (d) Le volume de liquide se rompt et remonte vers la buse
- (e) La demi-goutte attachée à la buse **oscille**
- (f) = (a*) Le volume de liquide redevient comme à l'étape (a)

Afin de décrire le plus précisément possible l'écoulement liquide pendant une période, on définit l'estimateur H_c (en mètres), qui mesure la différence de cote entre le sommet du cône de liquide (sur l'axe de symétrie) et la partie inférieure de la buse. Une description graphique de cette variable est explicitée en Figure 4.25 Gauche).

4.4.1 Description des oscillations capillaires

Les résultats des simulations mettent en évidence un phénomène de tremblement du liquide attaché à la buse après sa remontée lors d'une oscillation du cône, entre les étapes (d) et (b*) de la Figure 4.1 (l'étoile décrivant l'état similaire lors de la période suivante). Nous appelons ce phénomène « *oscillations capillaires* », en opposition au terme « *oscillation* » simple, relatif à l'écoulement périodique du cône en régime transitoire.

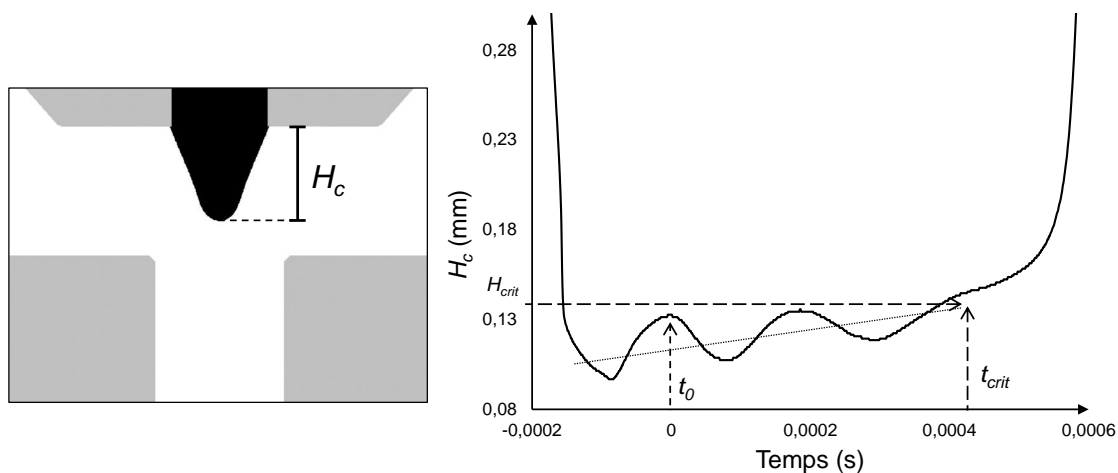


FIGURE 4.25 – (Gauche) Description de la variable H_c considérée, représentant la hauteur de la goutte en régime Transitoire; (Droite) Allure temporelle de H_c . Un temps de référence t_0 est choisi, juste avant la première oscillation capillaire du ménisque. La droite pointillée correspond à l'évolution linéaire attendue de cette variable, et les lignes en tirets précisent les valeurs critiques t_{crit} et H_{crit} .

La Figure 4.25 présente une allure temporelle de la hauteur du cône H_c caractéristique, dans le cas d'un écoulement présentant des oscillations capillaires. Celle-ci peuvent être identifiées

et dénombrées à l'aide des maxima locaux de la fonction $H_c(t)$. Dans cette figure, il y a trois oscillations capillaires pour une oscillation simple du cône.

Nous définissons le nombre d'oscillation capillaire n_o comme le nombre de maxima de la fonction $H_c(t)$ sur l'intervalle de la période d'oscillation :

$$n_o \triangleq \text{card}\{\text{Maxima locaux}\} \quad (4.10)$$

Ainsi, par exemple, sur la Figure 4.25, nous observons deux maxima locaux ($t = t_0$ et $t \simeq 0.2$ ms), ce qui signifie que $n_o = 2$.

Dans les différentes expériences effectuées (numériques et pratiques), nous constatons de plus que, dans le cas où $n_o \geq 5$, seules les premières oscillations capillaires sont détectables. En effet, pour plus de quatre ou cinq oscillations, la goutte attachée à la buse, son volume augmentant, amortit ces vibrations.

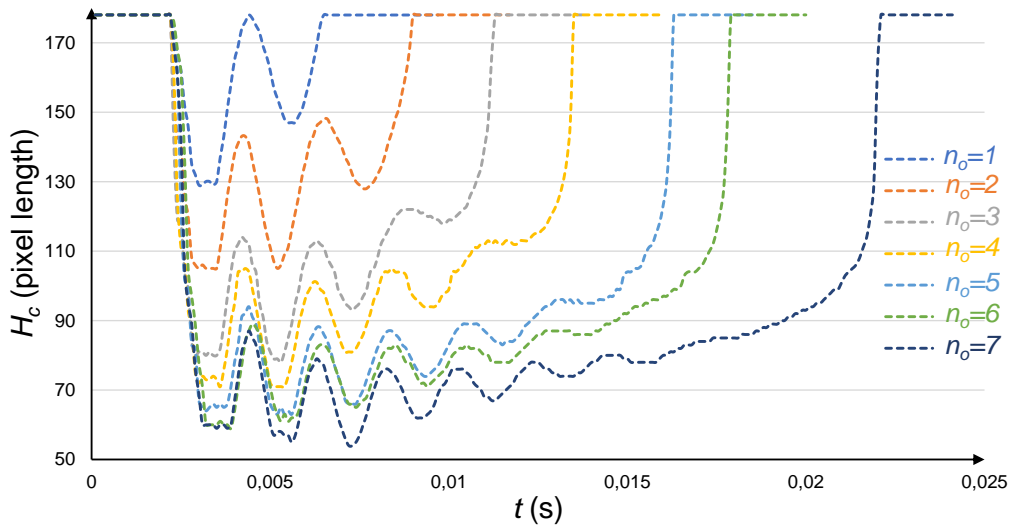


FIGURE 4.26 – Évolution expérimentale de la hauteur du cône en fonction du nombre d'oscillations capillaires.

En considérant un développement du cône de liquide sous la forme d'une goutte (demi-ellipsoïde de révolution), sans mouillage sur la buse, on peut retrouver l'asymptote de la fonction $H_c = f(t)$ en l'absence d'oscillations capillaires. Il est possible d'exprimer sa hauteur (rayon polaire) en fonction du temps. En effet, le volume de cette goutte est $V = \frac{2}{3}\pi p q^2$, où p est le rayon polaire (H_c) et q son rayon équatorial ($D_i/2$). On obtient :

$$\tilde{H}_c(t) = \frac{6}{\pi D_i^2} V \quad (4.11)$$

$$= \frac{6Q_i t}{\pi D_i^2} + \underbrace{h_0}_{\tilde{H}_c(t_0)} \quad (4.12)$$

où le premier terme représente la hauteur du liquide (en supposant qu'il ait gardé sa forme de demi-ellipsoïde), et le second terme h_0 est la hauteur minimale du volume du liquide au début d'une période.

Cette expression analytique donne une évolution moyenne de $H_c(t)$ linéaire, ce qui est en corrélation avec les différents résultats numériques et expérimentaux (voir la droite pointillée sur la Figure 4.25 et Figure 4.26).

4.4.2 Influence de la géométrie

Nous utilisons les deux variables adimensionnées géométriques, déjà définies dans la partie précédente (§ 4.3) :

$$D'_i = \frac{D_i}{D_o} \quad ; \quad H' = \frac{H}{D_o} \quad (4.13)$$

4.4.2.1 Diamètre intérieur de la buse D'_i

Le diamètre intérieur de la buse D_i a une influence sur la période $\tau = T/t_c$. En effet, nous rappelons que cette variable intervient dans la définition du temps caractéristique capillaire :

$$t_c = \sqrt{\frac{\rho_l D_i^3}{\sigma}} \quad (4.14)$$

La courbe présentée Figure 4.27 présente le comportement de τ en fonction de D'_i . Globalement décroissante, on constate que pour $D_i/D_o < 0.6$, il y a mouillage du liquide sur la surface inférieure de la buse, ce qui entraîne une augmentation du volume du ménisque liquide, et également de la période τ (pour $D'_i = 1$, $\tau = 1.24$; et pour $D'_i = 0.4$, $\tau = 8.89$). Pour $D'_i > 0.6$, τ montre une dépendance plus faible au diamètre de la buse.

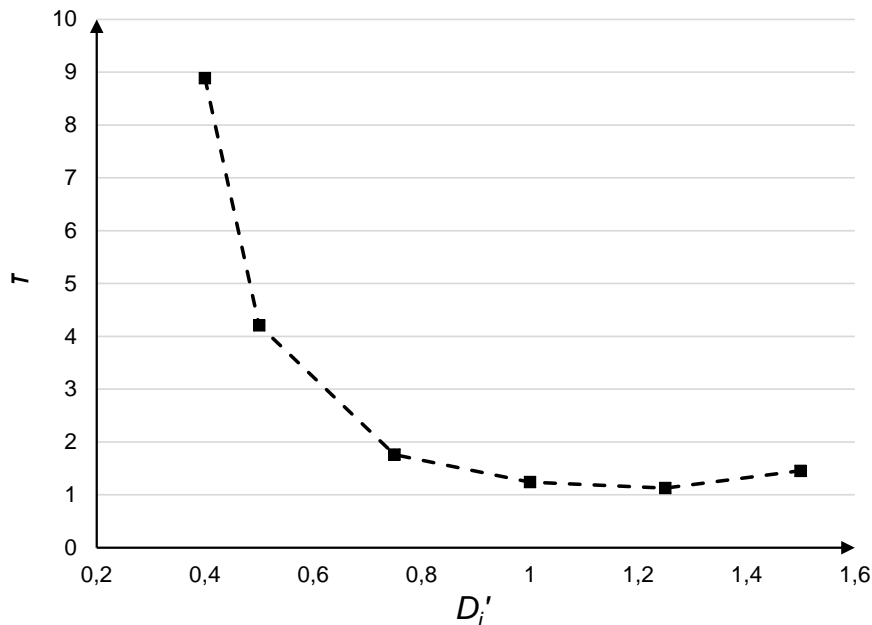


FIGURE 4.27 – Influence de D'_i sur la période d'oscillation du cône τ .

Pour une faible valeur de D'_i , on conclut que la tension de surface prédomine : l'énergie cinétique provenant de l'apport en liquide est insuffisante à compenser l'énergie de tension superficielle de la demi-goutte.

Pour de plus hautes valeurs de D'_i , la période d'oscillation τ devient plus indépendante de la configuration de la buse. Plus précisément, la valeur de la période T se rapproche du temps caractéristique t_c ($\tau \simeq o(1)$), qui provient de la rupture d'une goutte isolée à pression atmosphérique.

4.4.2.2 Hauteur buse/éjecteur H'

La hauteur buse/éjecteur sans dimension $H' = H/D_o$ a une influence indirecte sur τ . Comme vu dans la partie précédente § 4.3.1.2, Une augmentation de H' au-dessus du maximum défini par le système (4.26) peut faire apparaître un phénomène de mouillage, et donc augmenter le diamètre de contact entre la goutte et la buse. Sur la Figure 4.28, on voit deux configurations expliquant ce comportement.

Dans les deux cas, la buse et l'éjecteur sont identiques, et seul change la hauteur H entre les deux. Si H est augmenté (schéma de droite), l'écoulement d'air (représenté par les flèches oranges) exercera une force moindre sur le liquide en sortie de buse. Il y aura mouillage sur la surface inférieure de la buse, et le « réel » diamètre d'entrée à considérer (par exemple dans le calcul du temps capillaire t_c , éq. 4.14) sera D_i^2 .

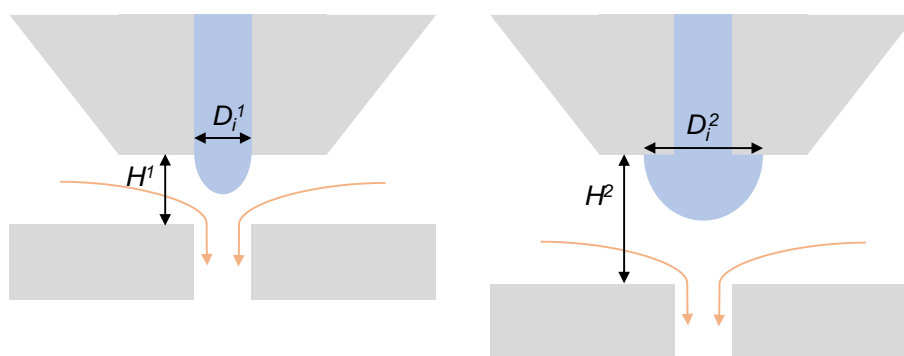


FIGURE 4.28 – Exemple de deux configurations géométriques. Le diamètre de l'orifice de la buse D_i est identique dans les deux cas. Cependant, avec deux H différents ($H^1 < H^2$), le diamètre à la base de la demi-goutte est différent de D_i à cause du mouillage ($D_i^1 < D_i^2$).

Une simulation avec un H élevé nous a permis de prouver numériquement ce phénomène. En effet, l'augmentation de H (voir Figure 4.29) a pour effet principal de réduire la vitesse du gaz qui vient en contact avec la surface du liquide en sortie de buse. En outre, la vitesse du gaz proche de l'éjecteur ne varie que très peu (les hypothèses effectuées au chapitre 3 pour l'application du théorème de Bernoulli sont toujours valables). La contrainte gazeuse au voisinage du point triple de contact liquide/gaz/métal est donc plus faible, et permet à ce dernier d'avancer le long de la partie inférieure de la buse.

Extension : rugosité

Dans le cas d'une distance buse/éjecteur H élevée, une extension au modèle a été réalisée pour se rapprocher de la configuration expérimentale : la modification de la partie inférieure de la buse (remplacement d'une section droite par une section ondulée) pour simuler la rugosité de la pièce. En effet, celle-ci perturbe le mouillage du liquide : l'énergie requise pour faire avancer le front d'interface au contact de la buse augmente et l'angle de contact est modifié.

On peut remarquer Figure 4.30 que la période d'oscillation diminue quand on considère une rugosité sur la buse. Cependant, cet effet n'est présent que pour une distance buse-éjecteur H élevée. On constate même un amortissement de l'oscillation capillaire dans le cas où la buse est parfaitement plate. C'est pourquoi, dans la plupart de nos simulations où $H' = \mathcal{O}(1)$, cet effet est négligé.

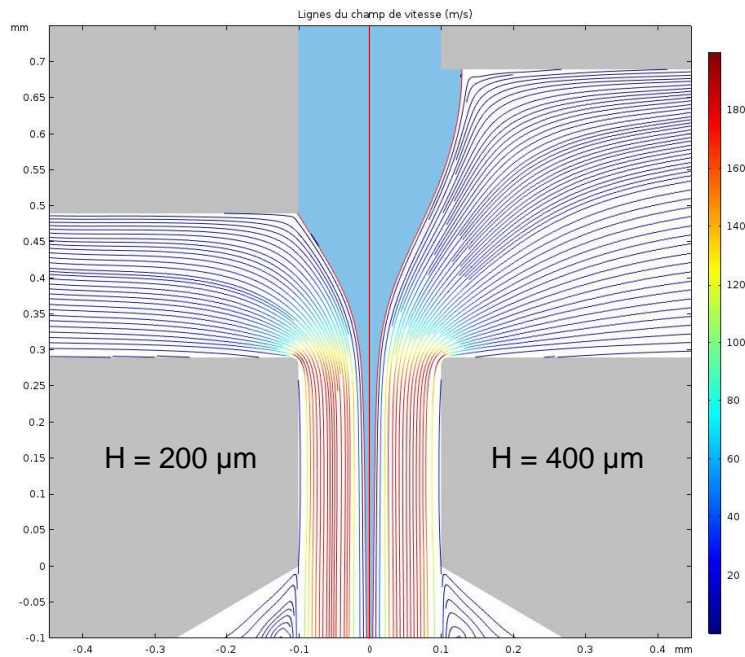


FIGURE 4.29 – Illustration de l'écoulement simulé dans deux configurations de H ($200 \mu\text{m}$ à gauche, $400 \mu\text{m}$ à droite).

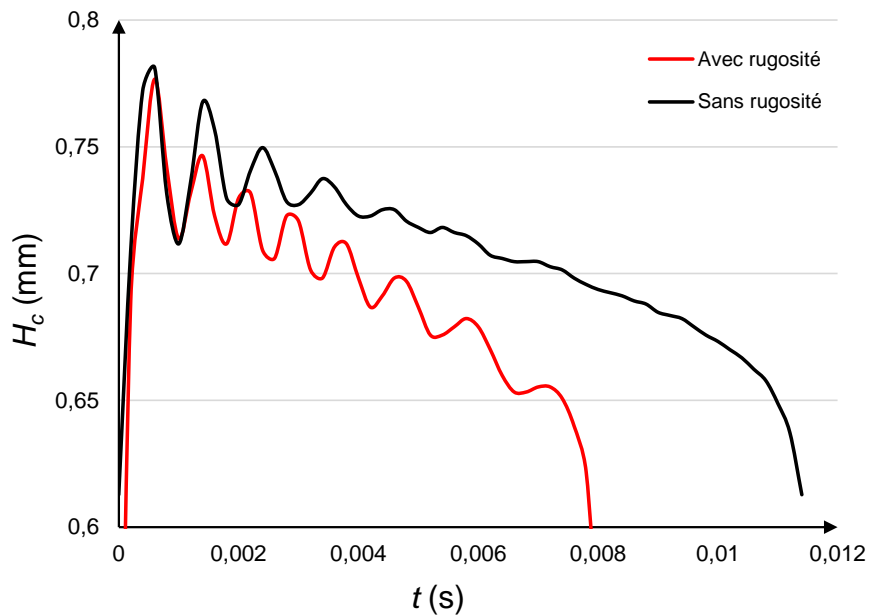


FIGURE 4.30 – Allure de la hauteur du cône $H_c(t)$ dans deux cas : avec une rugosité ajoutée à la géométrie de la buse, et sans.

4.4.3 Influence du débit liquide

4.4.3.1 Étude de $\tau = f(Q_l)$

Les résultats des simulations numériques du régime transitoire pour $Q_l \in [2.5; 8 \text{ ml.h}^{-1}]$ sont présentés Figure 4.31.

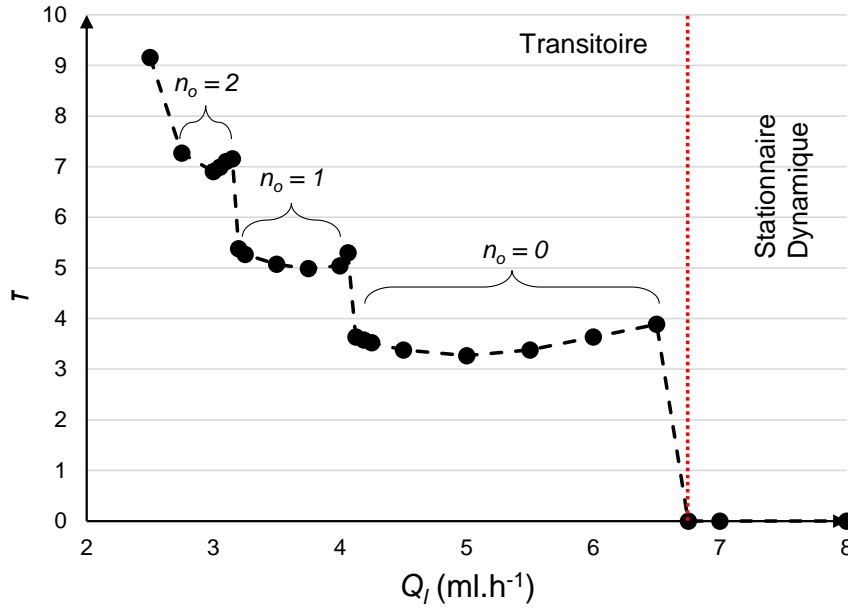


FIGURE 4.31 – Période d'oscillation τ du cône de liquide en régime transitoire en fonction du débit liquide Q_l . $D'_i = 0.75$ et $\Delta P_g = 0.3$ bar.

On constate que cette courbe a une allure particulière :

- Une évolution de la fonction $\tau = f(Q_l)$ en paliers
- Des discontinuités nettes, pour $Q_l \simeq 2.5, 3.1, 4$ et 6.5 ml.h^{-1} .
- Une augmentation de la largeur du palier en fonction de Q_l .

Le modèle montre que dans cette configuration, l'écoulement est dans le régime Stationnaire Dynamique (SD) pour $Q_l > 6.5 \text{ ml.h}^{-1}$, et dans le régime Transitoire (T) dans le cas contraire. Chaque point sur ce graphe Figure 4.31 représente la moyenne sur au moins cinq oscillations des périodes d'écoulement du cône de liquide. Pour chaque Q_l , l'écart-type entre ces moyennes est de quelques pour cents.

Les résultats présentés Figure 4.32 illustrent le phénomène de paliers constaté expérimentalement.

On observe que cette courbe a la même allure que la courbe Figure 4.31. La période en ordonnée $\tau = T/t_c$ est du même ordre de grandeur pour les premiers paliers $n_o = 0$ et $n_o = 1$.

*
* *

Nous avons procédé à une analyse supplémentaire de chaque simulation et compté le nombre d'oscillation capillaire du cône n_o . Cette valeur est indiquée Figure 4.31, et est constante pour chaque palier. Ce résultat permet de comprendre intuitivement la discontinuité de $\tau = f(Q_l)$: en effet, une valeur entière (0, 1, 2, 3) est introduite dans la physique de l'écoulement, ce qui permet d'avoir ce type de comportement non continu.

Pour analyser le comportement spécifique de τ en fonction de Q_l en paliers, nous pouvons remarquer que sur chaque niveau ($n_o = \text{cst}$), la période varie peu (moins de 10%). En négligeant ce phénomène, il est possible de simplifier le graphe Figure 4.31 comme une fonction $n_o = f(\text{Re}_l)$. Un ajustement a été effectué de la forme :

$$n_o = A \left[\left(\frac{B}{\text{Re}_l} \right)^\alpha - C \right] \quad (4.15)$$

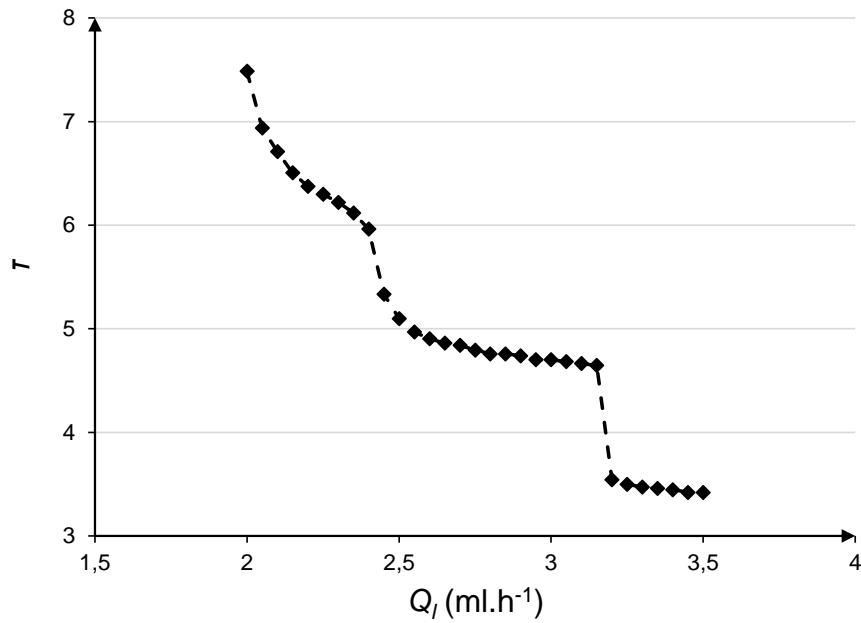


FIGURE 4.32 – Évolution expérimentale de la période d'oscillation du cône en régime transitoire en fonction du débit liquide Q_l . $D'_i = 1$ et $\Delta P_g = 0.3$ bar.

où A , B , C et α sont des paramètres pour l'ajustement et $[\cdot]$ est la fonction partie entière. La meilleure corrélation est atteinte pour $A = 1$, $B = Re_{l0}$ (la valeur de Re_l la plus élevée où $n_o = 1$), $C = 0$ et $\alpha \simeq 5.5$. Avec ces paramètres, tous les points $n_o = f(Re_l)$ sont ajustés (voir Figure 4.33 a)).

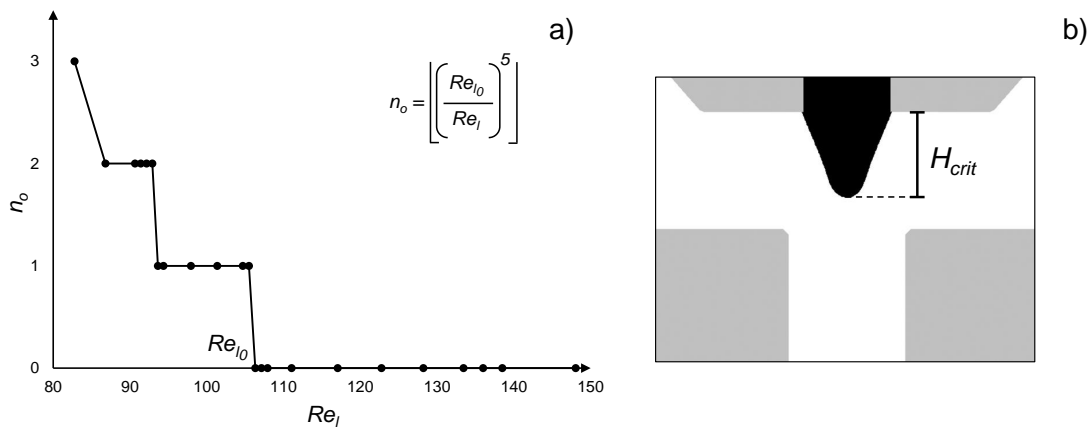


FIGURE 4.33 – (a) Courbe d'ajustement avec les paramètres choisis pour l'équation 4.15; (b) Illustration de la hauteur critique H_{crit}

On peut remarquer que, étant donné l'intérêt applicatif du régime Stationnaire Dynamique, le régime Transitoire n'a pas été l'objet d'une étude avancée dans la littérature (Gañán-Calvo, 1998; Herrada *et al.*, 2008). Cependant, nous verrons à la partie suivante (§ 4.5) que les études portant sur les transitions entre les deux régimes (ou *jetting/dripping*) sont nombreuses (Montanero *et al.*, 2011; Cruz-Mazo *et al.*, 2016, 2017; Zahoor, 2018).

Même si les deux courbes Figures 4.31 et 4.32 n'ont pas les mêmes seuils de débit liquide Q_l

pour chaque palier, il est possible de comparer ces deux graphes.

La Figure 4.34 présente la confrontation des résultats numériques et expérimentaux du nombre d'oscillations capillaires n_o en fonction du nombre de Reynolds Re_l .

Les deux courbes présentent une excellente corrélation sur les intervalles de définitions des paliers de n_o . Dans cette configuration, à ΔP_g constant, on montre que Re_l est un bon indicateur de la valeur de n_o . Ce graphique permet d'établir une validation physique du modèle et de confirmer la compréhension des phénomènes inhérents au procédé dans le régime transitoire.

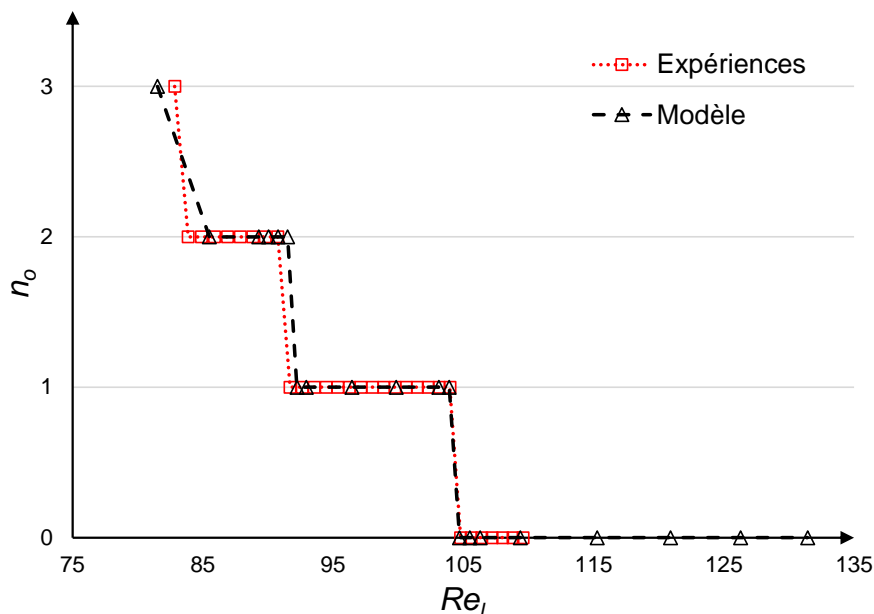


FIGURE 4.34 – Confrontation expérimentale et numérique de la courbe présentée Figure 4.31, en utilisant le nombre d'oscillations capillaires n_o pour caractériser le sous-régime du mode transitoire T.

Étude approfondie de l'oscillation capillaire

Il est possible d'analyser plus finement le phénomène d'oscillations capillaires gouvernant la période τ via l'étude de $H_c = f(t)$ (voir Figure 4.25). Il est possible d'ajuster cette courbe avec l'équation :

$$H_c(t) = C_1 t + C_2 \cos \omega t \cdot e^{-t/\tau_{\text{damp}}} \quad (4.16)$$

où le premier terme $C_1 t$ correspond à l'évolution de la fonction $H_c(t)$ sans le phénomène d'oscillation capillaire (la progression linéaire de la hauteur du cône à un débit liquide constant, explicitée dans l'équation 4.12). Le second terme représente le comportement sinusoïdal de H_c (provenant de l'oscillation capillaire), qui est amorti progressivement en fonction du temps. C_1 et C_2 sont deux facteurs constants, qui dépendent uniquement de la configuration du système (géométrie, débit liquide, pression de gaz). On note ω la pulsation de l'oscillation capillaire, et τ_{damp} le temps caractéristique de l'amortissement capillaire par effets visqueux.

Cette notion d'amortissement capillaire est primordiale pour la caractérisation de la période τ en fonction de Q_l . En effet, pour observer le phénomène d'oscillations capillaires, il est nécessaire que la période d'oscillation du cône de liquide soit du même ordre de grandeur que le temps caractéristique d'amortissement (que l'on peut approximer par le temps capillaire $t_c = \sqrt{\rho_l D_i^3 / \gamma}$).

Lorsque que la période τ est trop élevée par rapport à ce temps (par exemple pour un débit liquide trop faible $Q_l < 2 \text{ ml.h}^{-1}$), alors les oscillations capillaires sont amorties avant que la goutte qui se développe n'atteigne la hauteur critique H_{crit} .

4.4.4 Caractérisation de la période liquide

4.4.4.1 Décomposition du mouvement

On peut décomposer la période d'oscillation en deux parties : la première, où le jet n'est pas présent, et la seconde, où un jet est bien émis hors de la chambre. En utilisant les indices 1 et 2 pour les différentes variables propres à ces deux intervalles de temps, on a :

$$T = T_1 + T_2 \quad (4.17)$$

On note $\alpha = T_1/T$ et $\beta = T_2/T$.

$$\alpha + \beta = 1 \quad (4.18)$$

Lors d'une période d'oscillation de la goutte de liquide, on constate également une recirculation (pour que la goutte remonte, un certain débit de reflux Q_b est nécessaire. Nous avons montré à la partie 4.3.2 la relation entre le débit seuil de transition T/SD Q_{min} et le débit seuil d'apparition d'une cellule de recirculation Q_r .

4.4.4.2 Pulsation

Le régime transitoire génère un jet, puis un spray, pulsé à intervalles réguliers. En effectuant une comparaison du volume de liquide éjecté durant une période T dans les deux régimes (SD/T), on trouve qu'en régime transitoire, le jet est globalement plus rapide que dans le régime stable.

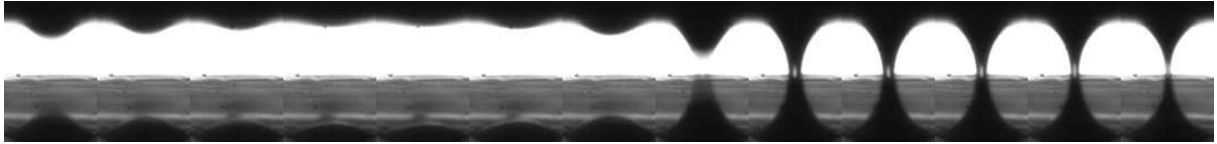


FIGURE 4.35 – Série de photos illustrant une période d'oscillation de type $n_o = 0$. La fréquence d'observation est 8 kHz, $Q_l = 4 \text{ ml.h}^{-1}$, $D_i = 150 \mu\text{m}$, $H = 200 \mu\text{m}$, $D_o = 200 \mu\text{m}$.

Dans la Figure 4.35, la fréquence d'acquisition est de 8 kHz, donc le temps entre chaque cliché est $dt = 1/8000 = 125 \mu\text{s}$. Composé de 12 images, la période d'oscillation dans ce cas est de $T = 12dt = 1.5\text{ms}$. Dans cette configuration, on a $T_1 = 0.875 \text{ ms}$ et $T_2 = 0.625 \text{ ms}$.

4.4.4.2.1 Transition SD/T

Pour un débit liquide proche du débit seuil de transition Q_{min} , on peut raisonner comme suit : pour $Q_{\text{min}} + \epsilon$, l'écoulement est stable (régime SD). Pour $Q_{\text{min}} - \epsilon$, le cône oscille (régime T). Sur la Figure 4.31, ce débit seuil est situé entre 6 et 7 ml.h^{-1} .

Dans le premier cas (régime SD), le volume émis durant une période T est $V_{SD} = Q_{\text{min}}T$, à une vitesse de $v_{SD} = Q_{\text{min}}/S_j$, où S_j est l'aire de la section du jet liquide.

Dans le second cas (régime T), le même volume est émis durant T ($V_T = Q_{\text{min}}T$), mais en réalité uniquement pendant le temps de présence du jet T_2 : $V_T = Q'T_2$ avec :

$$Q' = \frac{Q_{\text{min}}}{\beta} \quad (4.19)$$

En supposant que le diamètre de jet est similaire dans le régime T (équilibre entre les forces de pression et l'inertie du liquide), la vitesse moyenne d'émission du jet liquide est :

$$v_T = \frac{Q'}{S_j} \quad (4.20)$$

$$= \frac{v_{SD}}{\beta} \quad (4.21)$$

On en déduit que, pour un débit liquide proche du seuil de transition, il est possible de choisir entre les deux régimes en ajustant légèrement Q_l : pour produire des gouttelettes plus lentes et régulières, il faut fixer $Q_l > Q_{\min}$, et pour des chapelets de gouttelettes plus rapides en pulsation, se mettre à $Q_l < Q_{\min}$.

4.4.4.2 Premiers paliers

Étudions maintenant le premier palier de la courbe Figure 4.31 (transition entre les paliers $n_o = 0$ à $n_o = 1$ pour $Q_1 \simeq 4 \text{ ml.h}^{-1}$). Si on appelle :

- $Q_l = Q_1 + \epsilon$ ($n_o = 0$) Période $T = T_1 + T_2$
- $Q_l = Q_1 - \epsilon$ ($n_o = 1$) Période $T' = T'_1 + T'_2$

Alors les résultats des simulations et des expériences montrent que $T_2 \simeq T'_2$. Cela signifie que l'intervalle de temps dans la période d'oscillation du cône où le jet liquide est présent ne varie pas sur un palier, et que c'est le temps où la goutte se développe accrochée à la buse qui varie.

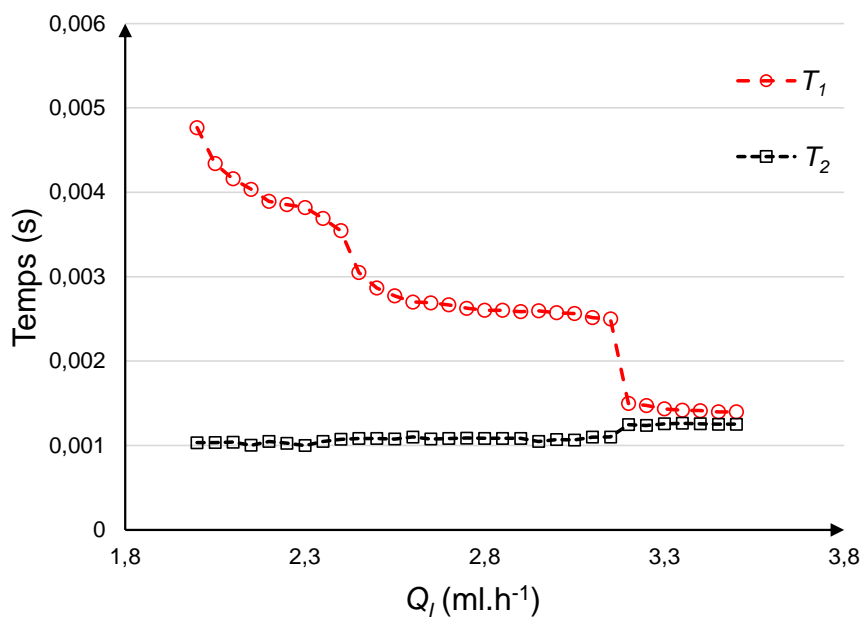


FIGURE 4.36 – Illustration des fonctions T_1 et T_2 en fonction de Q_l . Les données expérimentales proviennent de la courbe Figure 4.32.

En d'autres termes, en notant ces temps en tant que fonctions de Q_l , une généralisation sur les autres paliers de la courbe Figure 4.31 donne :

$$T(Q_l) = T_1(Q_l) + T_2(Q_l) \quad (4.22)$$

La fonction $T_2(Q_l)$ est **continue**, tandis que $T_1(Q_l)$ est **discontinue** (pour $n_o \leq 4$). Cette propriété est illustrée Figure 4.36.

4.4.5 Influence de la pression ΔP_g

La pression à l'intérieur de la chambre d'aérospray est également un facteur de modification de la période d'oscillation du cône de liquide en régime transitoire. La Figure 4.37 présente les résultats expérimentaux obtenus. Nous constatons le comportement de ces courbes en plusieurs paliers, et observons à la caméra rapide le phénomène d'oscillations capillaires.

Une modification de la pression de gaz dans la chambre peut changer les débits de seuil pour chaque sous-régime. Par exemple, sur chacune des courbes, la partie droite quasi-constante est le palier $n_o = 0$. Les débits de transition pour chaque valeur de pression 0.5, 0.6 et 0.7 bar sont respectivement environ 1.7, 1.3 et 1 ml.h⁻¹. Une augmentation de la pression semble donc stabiliser le cône (pour un débit liquide Q_l fixé, une augmentation de ΔP_g diminue la période d'oscillation T).

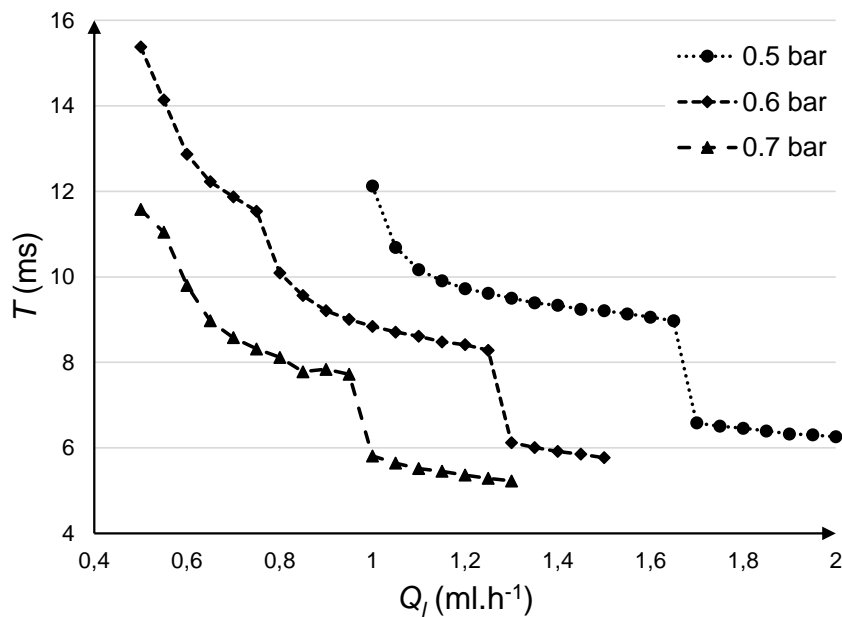


FIGURE 4.37 – Résultats des expériences : période d'oscillation du cône T en fonction du débit liquide Q_l , pour différentes valeurs de pression de gaz ΔP_g . $D'_i = 1$, $H' = 0.75$.

*
* *

La Figure 4.38 présente les résultats présentés précédemment, où la période d'oscillation est adimensionnée en τ et les débit liquide Q_l et pression de gaz ΔP_g le sont en We_g . Nous remarquons la présence de seuils précis du nombre de Weber, permettant de caractériser précisément le nombre d'oscillation capillaire (et la période d'oscillation). Par exemple, pour $11 < We_g$, le nuage de points correspond à $n_o = 0$, et pour $8 < We_g < 11$, c'est le palier $n_o = 1$. Dans chacun de ces nuages de points, la période varie peu (moins de 10%), ce qui nous permet d'affirmer que le nombre de Weber est un bon indicateur pour caractériser les sous-régimes dans le mode transitoire.

4.4.6 Influence des propriétés liquides

L'influence de la tension de surface γ sur la période d'oscillation du cône est présentée Figure 4.39.

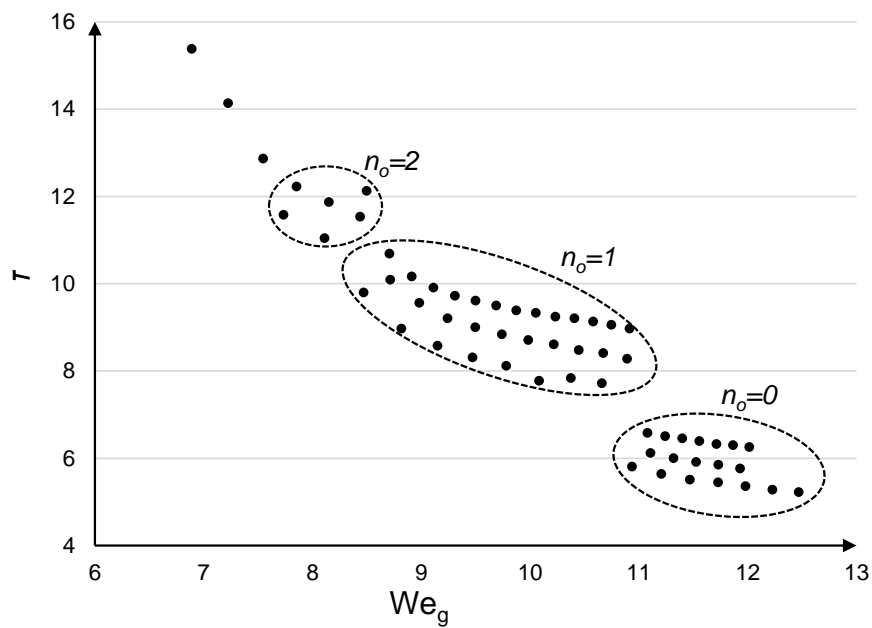


FIGURE 4.38 – Données expérimentales de la Figure 4.37 adimensionnées dans un plan (We_g, τ) . Les zones en pointillées délimitent les configurations où n_o est constant.

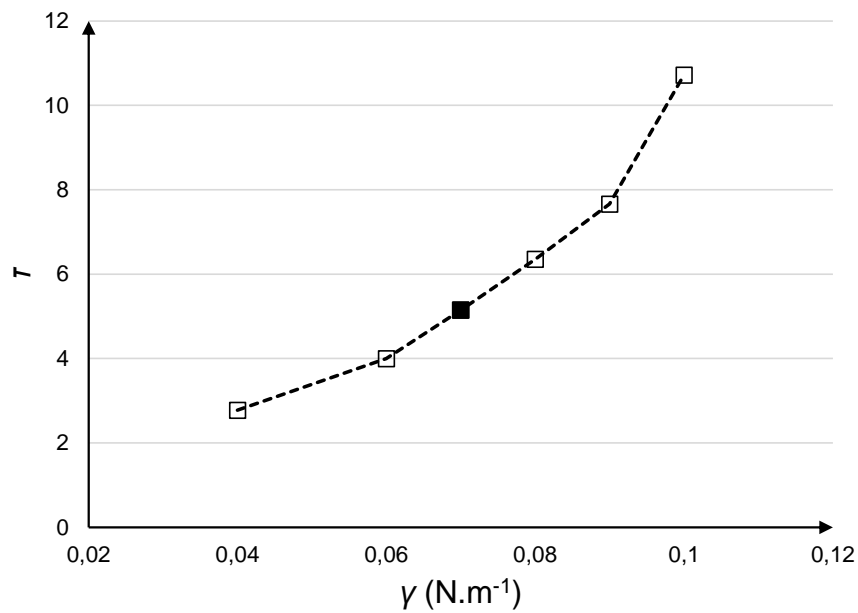


FIGURE 4.39 – Influence du coefficient de tension superficielle γ sur la période d'oscillation en régime transitoire τ . Le symbole plein représente la valeur utilisée dans les modèles, correspondant à $\gamma_{\text{eau/air}} = 0.07 \text{ N} \cdot \text{m}^{-1}$.

La Figure 4.40 présente les résultats de la simulation de l'aérospray en régime transitoire pour trois valeurs de viscosité liquide.

*
* *

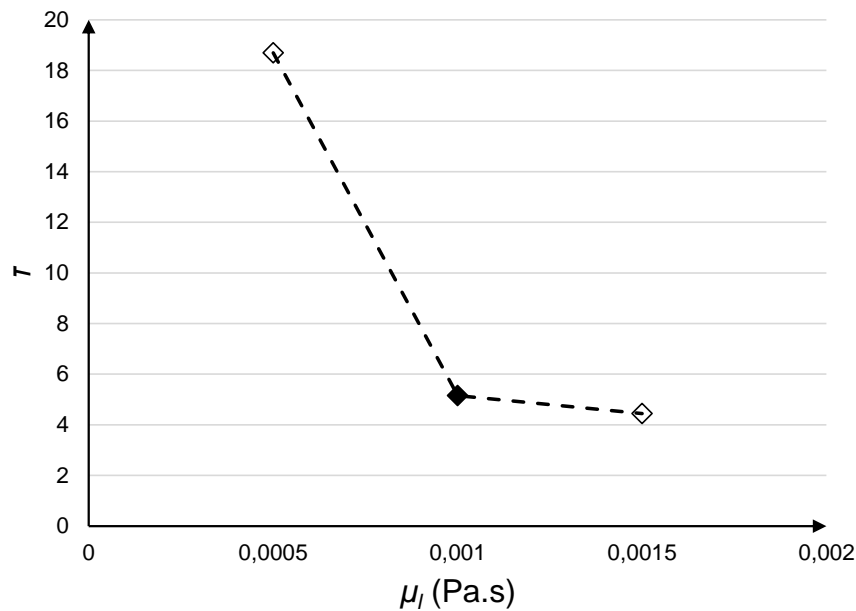


FIGURE 4.40 – Effet de la viscosité du liquide sur la période d’oscillation en régime transitoire τ . Le symbole plein représente la valeur utilisée dans les modèles, correspondant à $\mu_l = 1 \times 10^{-3}$ Pa.s.

On constate que la courbe présentée Figure 4.40 est cohérente avec le schéma Figure 4.24, dans le sens où nous avons constaté qu’une réduction de la viscosité avait pour effet d’augmenter fortement la taille de la cellule de recirculation s_R . Concrètement, cela signifie que la configuration (initialement stationnaire dynamique) se rapproche du domaine transitoire. On observe un phénomène similaire dans ce dernier régime : la période d’oscillation augmente fortement lorsque la viscosité du liquide est réduite.

4.4.7 Synthèse

Dans cette partie, les résultats obtenus concernant l’écoulement en régime Transitoire ont été présentés. Le modèle numérique a mis en évidence un phénomène nouveau, encore jamais détaillé dans la littérature, d’oscillations capillaires du cône dans ce mode. La pertinence du modèle a été prouvée expérimentalement, et une étude analytique sur le principe physique de l’oscillation a été développée.

Dans la partie suivante, nous développons des résultats plus généraux, notamment sur la caractérisation de la ligne de transition Stationnaire Dynamique / Transitoire en fonction des paramètres du procédé.

4.5 Résultats généraux

Dans cette section, nous présentons les résultats généraux obtenus avec le modèle en aérospray. Premièrement, nous effectuons une analyse de la configuration géométrique du flow focusing dans le plan (D'_i, H') , et les diagramme de modes obtenus (§ 4.5.1). Ensuite, le diagramme de mode dans un plan (Re_l, We_g) obtenu numériquement est exposé (§ 4.5.2). La limite de transition entre les deux régimes Stationnaire Dynamique et Transitoire est tracée dans ce plan, et les différentes valeurs des indicateurs choisis sont également illustrées dans chaque mode. Une synthèse des résultats obtenus sur l'influence des propriétés des fluides est développée dans le paragraphe suivant (§ 4.5.3). Enfin, l'influence de D'_i sur la ligne de transition inter-régimes est analysée (§ 4.5.5).

4.5.1 Propriétés géométriques

4.5.1.1 Distance buse/éjecteur

Dans cette sous-partie, les résultats concernant l'influence de H' sur les régime du flow focusing sont présentés, et une analogie est effectuée avec les résultats existants (Gañán-Calvo, 2005; Vega *et al.*, 2010).

La Figure 4.41 montre la limite de transition entre les régimes Stationnaire Dynamique et Transitoire dans un plan (H, Q_l) . On remarque que plus H est élevé, plus le débit liquide Q_l doit être grand pour maintenir le cône dans un régime stable.

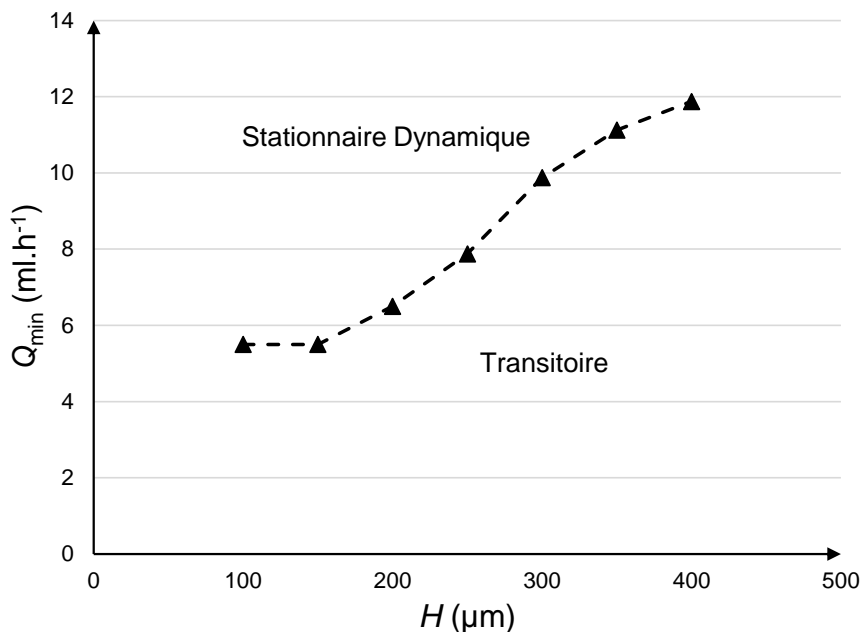


FIGURE 4.41 – Diagramme de stabilité représentant la ligne de transition dans un plan (H, Q_l) . Les points représentent, pour chaque configuration géométrique fixée, le débit liquide minimum Q_{\min} où l'écoulement est stable.

*
* *

Vega *et al.* (2010) effectue une étude approfondie sur l'influence de H en flow focusing, et en particulier son influence sur Q_{\min} , le débit de transition entre le régime stationnaire dynamique

et transitoire (voir Figure 4.42 ci-dessous). En effet, pour une configuration géométrique donnée et une pression de gaz ΔP_g fixée, il trouve cette limite entre les deux régimes de stabilité du cône, soit en partant d'un débit faible (mode oscillant) et en l'augmentant, soit en partant d'un débit élevé (mode stable) et en le diminuant. Il faut bien remarquer que cette courbe est en réalité un diagramme de modes : même si ce n'est pas explicitement précisé, la zone au-dessus du nuage de points représente le régime stationnaire dynamique, et la zone en dessous représente les configurations (H, Q_{\min}) dans lesquelles le cône oscille (régime transitoire).

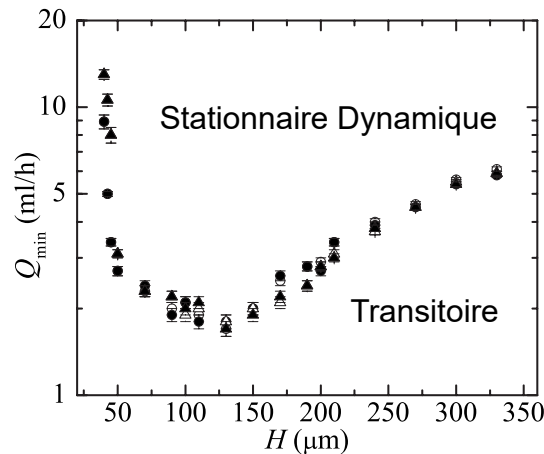


FIGURE 4.42 – (Vega *et al.*, 2010, adapté) Courbe représentant Q_{\min} en fonction de H . $D_i = D_o = 200 \mu\text{m}$, $\Delta P_g = 0.15 \text{ bar}$ (cercles); $\Delta P_g = 0.25 \text{ bar}$ (triangles). Q_{\min} est mesuré en diminuant (symboles pleins) et augmentant (symboles creux) le débit liquide pour chaque H .

On remarque que la courbe Figure 4.42 est convexe et admet un minimum sur $[25 \mu\text{m}, 350 \mu\text{m}]$. Les auteurs définissent donc ce minimum :

$$H_{\text{opt}} = \text{argmin } Q_{\min} \quad (4.23)$$

Ce résultat est majeur dans l'étude du flow focusing : il signifie que le choix de la géométrie résulte de la solution d'un problème d'optimisation non-linéaire convexe. Concrètement, il signifie que si un débit $Q_0 > Q_{\min}(H_{\text{opt}})$ est fixé (droite constante d'équation $y = k$ dans le graphe Figure 4.42), alors le cône ne sera dans un état stable que pour une distance H comprise dans un intervalle $H \in [H_1, H_2]$. Pour $H = H_{\text{opt}}$, la configuration sera la plus éloignée de la frontière avec le mode transitoire (et donc plus stable).

Vega *et al.* (2010) suggère donc une configuration géométrique optimale : $D'_i = 1$ et $H' \simeq 0.65$, qui se situe environ au coin inférieur gauche du domaine du flow focusing présenté dans la Figure 4.44, correspondant au système d'équations 4.26.

On peut également raisonner d'une autre manière avec la courbe Figure 4.42. Si le débit est fixé, et que la distance buse/éjecteur H grandit, alors l'écoulement de gaz va avoir de moins en moins d'effet sur le haut du cône. La goutte va donc avoir tendance à mouiller sur la surface inférieure de la buse et, même si le diamètre intérieur de celle-ci D_i ne change pas, il faudra alors considérer le diamètre réel de la goutte de liquide D'_i . Si H dépasse un certain seuil le ménisque de liquide va alors osciller : il sera instable.

Le résultat obtenu avec le modèle numérique présenté Figure 4.41 est donc cohérent avec la courbe de Vega *et al.* (2010) présentée Figure 4.42. Le comportement de la limite de transition pour $H' > 0.75$ est bien retrouvé. Cependant, le modèle n'est pas efficace pour prédire l'allure de la limite pour $H' < 0.75$. En effet, le constat expérimental de Vega *et al.* (2010) est que dans

cette configuration géométrique, l'écoulement peut être catégorisé en *flow blurring*, et non plus en *flow focusing*.

Flow blurring

Dans cette sous-section, plusieurs résultats vont être présentés concernant le montage et l'alignement de deux pièces vues précédemment, la buse et l'éjecteur. Il faut savoir que c'est un paramètre qui a été beaucoup étudié, notamment expérimentalement (Vega *et al.*, 2010). Il a une influence considérable sur les régimes de stabilité ou d'instabilité du cône. En effet, Gañán-Calvo (2005) a introduit un nouveau mode d'atomisation, fondé sur le fonctionnement du *flow focusing* mais avec uniquement un changement de l'écartement entre la buse et l'éjecteur H : quand H est inférieur à un certain seuil H_{lim} , un nouveau mode apparaît : le *flow blurring*. Dans ce régime, comme présenté Figure 4.43 (Gauche), l'écoulement d'air perturbe le liquide et vient se mélanger avec celui-ci dans la buse (*mixing region*). Le liquide sortant de la buse ne converge pas en un jet stable comme dans le *flow focusing*, mais est émis à travers l'orifice de l'éjecteur sous forme de ligaments, de tailles et formes variables.

Il est important de noter que le modèle numérique n'est pas développé pour simuler l'écoulement dans ce régime particulier, mais il permet d'analyser plus finement numérique la dépendance des modes du *flow focusing* aux paramètres géométriques.

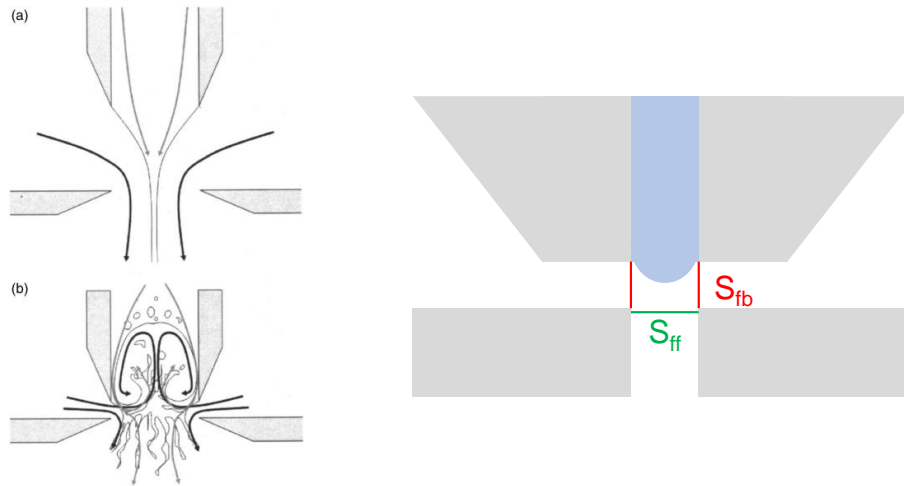


FIGURE 4.43 – (Gauche) (a) Configuration du *flow focusing* ($\psi = 1$); (b) Configuration du *flow blurring* ($\psi = 0.2$); (Droite) Vue en coupe de la buse et de l'éjecteur. En *flow focusing*, c'est l'aire en vert qui est considérée, et la section cylindrique rouge est minimale en *flow blurring*.

Une approximation de ce seuil H_{lim} est calculée analytiquement. En effet, si on recherche, pour une configuration géométrique donnée, l'aire de la section la plus petite traversée par le gaz, on obtient deux cas de figures : soit cette surface est l'aire du disque formé par l'orifice de l'éjecteur, ayant une aire $S_{ff} = \pi D_o^2/4$, soit c'est l'aire du LCP (Lateral Cylindrical Passageway, ou passage cylindrique latéral), surface cylindrique verticale de base l'orifice de l'éjecteur et de hauteur H , d'aire $S_{fb} = \pi D_o H$. Voir Figure 4.43 (Droite) une illustration de ces deux surfaces S_{ff} , en vert, et S_{fb} , en rouge. On fait donc une distinction, en prenant comme expression de H_{lim} la valeur de H pour $S_{ff} = S_{fb}$:

$$H_{lim} = \frac{D_o}{4} \quad (4.24)$$

et on définit l'indicateur de *flow blurring* $\psi = H/D_o$:

$\psi > 1/4$: l'aire minimum est dans l'éjecteur, la vitesse maximale du gaz est verticale (axiale), on est en flow focusing.

$\psi < 1/4$: l'aire minimum est entre la buse et l'éjecteur, la vitesse maximale du gaz est horizontale (radiale), on est en flow blurring.

En effet, ce changement de géométrie entraîne également un changement considérable dans l'écoulement et dans les vitesses caractéristiques du gaz : au lieu de contribuer à la formation d'un cône-jet stable et de s'écouler coaxialement avec le jet de liquide produit dans l'éjecteur (flow focusing), il va devoir effectuer un virage brutal pour s'échapper de la chambre sous pression, et une partie du gaz va interagir avec le liquide en remontant vers la buse et se mixe turbulemment avec celui-ci. Ce mode est également étudié par Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo (2008) en 2008, après le dépôt d'un brevet sur cet écoulement, qu'ils appellent « violent focusing » (Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2006).

4.5.1.2 Analyse et encadrement de (D'_i, H')

Cette sous-partie présente une vision des différents modes du flow focusing dans un diagramme (D'_i, H') .

Rosell-Llompарт et Ganán-Calvo, dans deux brevets, encadrent les dimensions géométriques qui définissent le flow focusing (Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2000; Gañán-Calvo, 2001) :

$$0.6 < \frac{H}{D_o} \quad ; \quad \frac{H}{D_i} < 1.5 \quad ; \quad \frac{D_o}{D_i} \leq 1 \quad (4.25)$$

Soit, après adimensionnement, l'encadrement de H' (voir Figure 4.44) :

$$\begin{cases} 0.6 < H' < 1.5 D'_i \\ 1 \leq D'_i \end{cases} \quad (4.26)$$

Cet encadrement, qui caractérise les gammes géométriques en *flow focusing*, ne propose qu'une borne inférieure pour D'_i , égale à $\max(1; H'/1.5)$. Ils n'explicitent pas de lois de comportement pour la réponse du cône (et de la recirculation) à une modification de D'_i .

Cependant, il existe trois cas de figure principaux selon la valeur de H' :

- $H' < 0.6$: Le régime d'écoulement est le flow blurring (Gañán-Calvo, 2005; Vega *et al.*, 2010). La configuration géométrique est telle que le gaz n'atteint pas sa vitesse maximale dans l'éjecteur mais dans l'espace directement autour du cône, ce qui perturbe l'écoulement. Même si, dans ce mode spécial, l'écoulement est peu contrôlé, les gouttelettes produites sont en moyenne plus petites qu'en flow focusing (Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2000; Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2008). Dans la buse se forme une région de mixage entre le gaz et le liquide, mais aucun cône n'est observé
- $0.6 < H' < 1.5 D'_i$: Il s'agit de la configuration type du flow focusing (Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2008). La taille de recirculation s_R est variable pour ce type de configuration géométrique, en fonction des paramètres du procédé $(Q_l, \Delta P_g)$ (Herrada *et al.*, 2008, 2011).
- $1.5 D'_i < H'$: L'écoulement est instable (Montanero *et al.*, 2011), et la configuration géométrique n'est pas suffisante pour l'initialisation et le maintien d'un cône stationnaire (Rosell-Llompарт et Gañán-Calvo, 2008). Dans certains cas, la ligne de contact liquide/solide peut se détacher de la surface inférieure de la buse et remonter sur le côté de celle-ci (Vega *et al.*, 2010).

Plus H' est élevé, plus la buse est éloignée de l'éjecteur, et plus un phénomène de mouillage est propice à apparaître. Ce mouillage modifie le D'_i « réel », c'est à dire le diamètre à la base de la goutte/du cône, attaché à la buse.

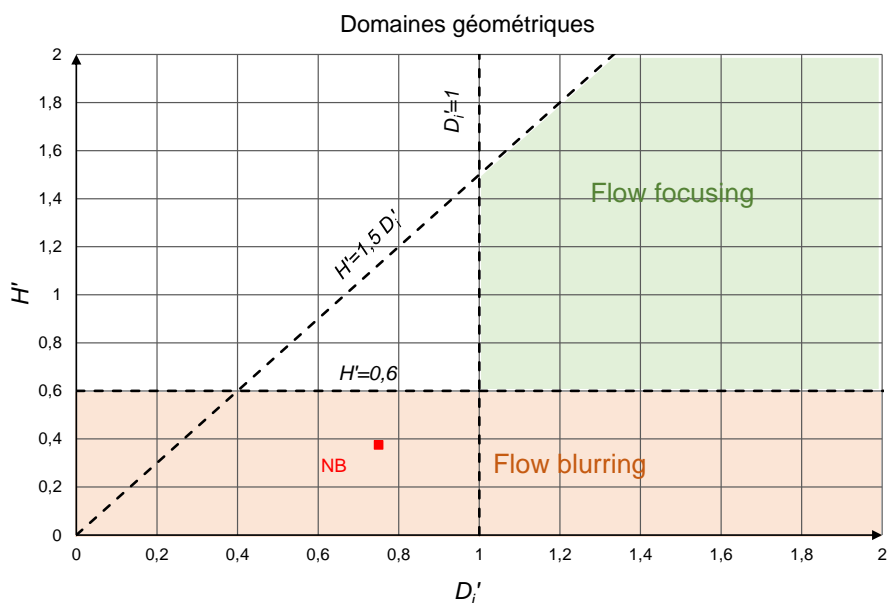


FIGURE 4.44 – Domaines géométriques sur un plan (D'_i, H') où sont placés le flow focusing (en vert) et le flow blurring (en orange), tels que sont définis avec le système 4.26 (Rosell-Llompart et Gañán-Calvo, 2008). Le point « NB » représente la configuration proposée par Berri (2018).

4.5.2 Diagramme de modes

Dans cette partie, l'objectif est de présenter les différents résultats obtenus, caractérisés dans les parties précédentes en fonction des paramètres de contrôle du procédé Q_l et ΔP_g , dans un plan (Re_l, We_g) .

Le détail des deux modes SD/T et les valeurs des indicateurs respectifs (taille de la cellule de recirculation s_R , période d'oscillation du cône τ) sont représentés dans le diagramme Figure 4.45. Les lignes de niveaux pour les deux indicateurs sont tracés de chaque côté de la ligne de transition. On remarque que ces lignes de niveau de s_R sont globalement parallèles à la limite de transition, et que la valeur de s_r est décroissante quand on s'éloigne de cette ligne.

Le choix de s_R comme indicateur de sous-régime dans le régime SD s'avère pertinent, dans la mesure où sa valeur permet d'estimer la stabilité conditionnelle du cône, et la robustesse de l'écoulement face à différentes variations des paramètres du système.

Dans le régime transitoire T, les lignes de niveau de τ sont représentées. Celles-ci n'ont pas le même comportement parallèle à la ligne de transition, montrent que la période d'oscillation est fortement dépendante de We_g .

4.5.3 Propriétés fluides

Nous avons détaillé à la partie § 4.3.5 l'influence de la viscosité liquide μ_l sur la stabilité du cône en aérospray, et à la partie § 4.4.6 l'influence de la tension superficielle γ sur la période d'oscillation en régime transitoire.

Ces deux propriétés sont celles qui ont le plus d'influence dans la technique du flow focusing.

En effet, la viscosité du gaz n'a pas un effet marquant sur la formation du cône (voir Figure 4.46), mis à part une légère réduction du jet pour un gaz particulièrement visqueux.

De plus, les réactions de l'écoulement face aux variations des densités des deux fluides ρ_l et ρ_g ne sont pas étudiées, celles-ci variant peu (par exemple, les liquides utilisés expérimentalement sont globalement des mélanges d'eau et d'éthanol, ayant une densité d'environ $\rho_l \simeq 980 \text{ kg.m}^{-3}$).

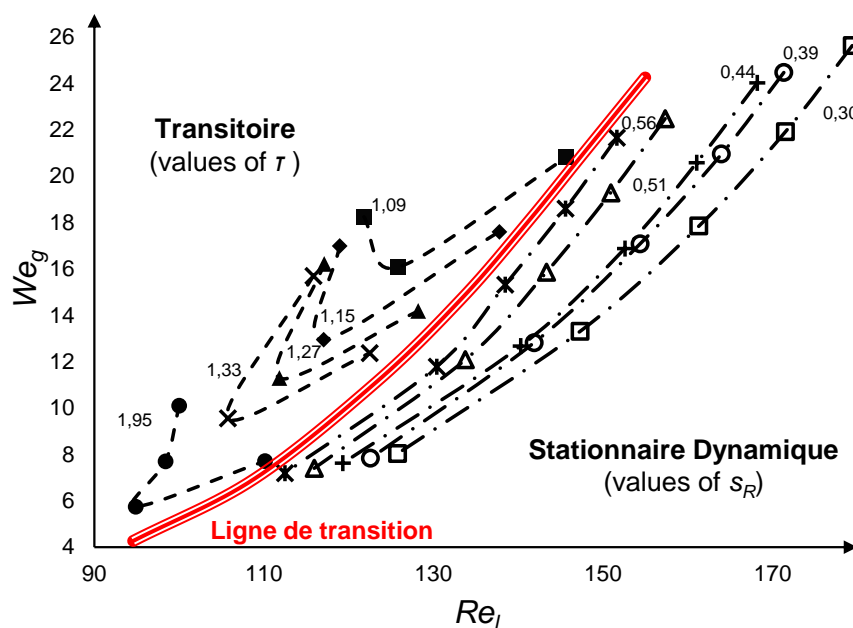


FIGURE 4.45 – Diagramme de régime d'écoulement du liquide dans un plan (Re_l , We_g), obtenu avec les résultats des simulations numériques. Dans la zone du régime transitoire sont tracés des lignes de niveau de la période d'oscillation du cône τ . Pour le régime stationnaire, ce sont des lignes de niveau de la taille de la recirculation s_R . $D'_i = 0.75$.

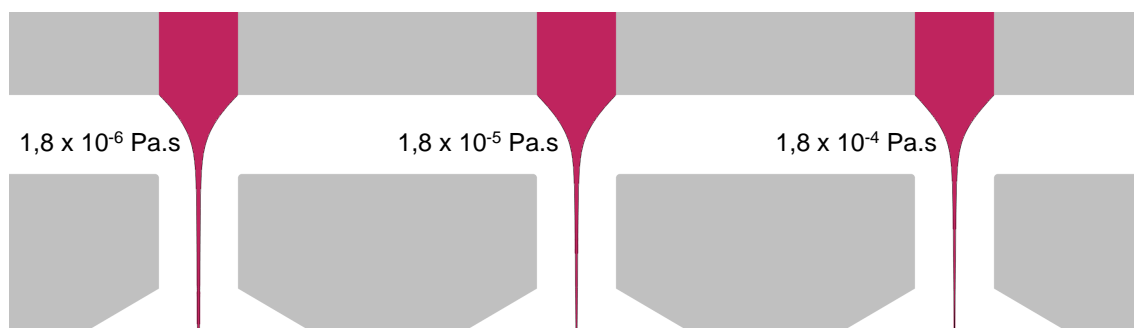
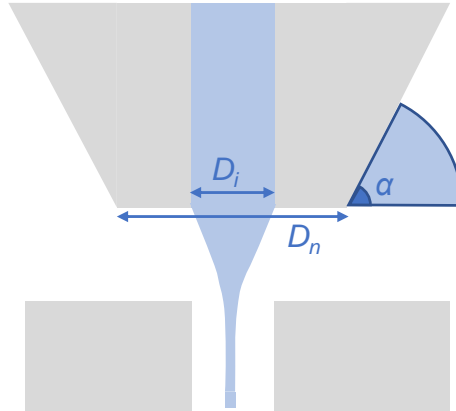


FIGURE 4.46 – Résultats de simulation illustrant la faible variation du cône de liquide face à un changement de viscosité du gaz μ_g .

La conductivité électrique du liquide produit un effet sensible, surtout dans le procédé d'électrospray (Fernandez de La Mora et Loscertales, 1994; Gañán-Calvo et Montanero, 2009). Elle fait partie des trois principales variables qui régissent les modes d'écoulement (avec le débit liquide Q_l et le potentiel appliqué V).

En électro-aérospray, le modèle développé ne permet pas d'étudier avec suffisamment de précision l'influence de cette variable. En effet, nous approximons le couple de fluides comme conducteur/conducteur, en supposant que l'air a une conductivité très faible. Cependant, différents travaux expérimentaux précédents impliquent que ce procédé est beaucoup moins sensible aux variations de conductivité que l'électrospray (Gañán-Calvo, 2007; Berri, 2018).

FIGURE 4.47 – Paramètres géométriques de la buse D_n et α .

4.5.4 Incidence du gaz autour de la buse

Les autres paramètres géométriques de la buse, notamment D_n et α (voir Figure 4.47), sont peu étudiés : ils modifient certes la technique du flow focusing en paramétrant une trajectoire pour le gaz au voisinage de l'éjecteur, ce qui peut avoir un effet double :

- L'écoulement du gaz peut être plus ou moins vertical (par exemple pour un $D_n \gg H$, il sera radial dans la chambre pressurisée puis principalement vertical après sa sortie de l'éjecteur), et donc le facteur de perte de charge supplémentaire est modifié. On peut faire l'analogie d'une différence de perte de charges en hydraulique entre un tuyau droit et un tuyau coudé.
- De même, la direction d'arrivée du gaz au voisinage du cône de liquide peut sensiblement modifier les tenseurs visqueux à l'interface, et donc la stabilité du ménisque. Dans la littérature en général, les travaux portent sur des diamètres extérieurs de buse.

4.5.5 Influence de D'_i sur les régimes SD/T

La Figure 4.48 montre qu'une variation de D'_i modifie les domaines de stabilité et d'instabilité du cône. En effet, une augmentation de D'_i correspond à une diminution de la taille du domaine stable (SD).

Il est donc possible, pour une configuration de paramètres procédé fixés (Re_l, We_g), de faire varier la stabilité du cône, uniquement en changeant D'_i .

Nous avons vu Figure 4.44 le critère $D'_i > 1$ en flow focusing. Cependant, il y a également des valeurs minimum pour les diamètres d'orifices (en μm) D_i et D_o , provenant de contraintes mécaniques et fluidiques.

En effet, l'usinage d'une buse et d'un éjecteur pour des diamètres $< 100 \mu\text{m}$ est considéré trop imprécis et difficile à réaliser (en tout cas avec une méthode de perçage par foret, qui peut se briser lors de l'opération). D'autres techniques existent, comme le perçage laser, mais sont beaucoup plus coûteuses en ressources (prix, énergie).

De plus, la présence de protéines (macromolécules) dans la solution liquide à sprayer peut conduire à la formation d'agrégats, dépendant de la concentration et de la cinétique chimique de celle-ci. Ces amas, qui peuvent atteindre des tailles allant jusqu'à $200 \mu\text{m}$ dans un cas extrême¹, peuvent boucher la buse si son diamètre intérieur est trop faible, et empêcher une bonne éjection du liquide.

1. Rapport de correspondance d'étude de la société Occhio à DBV Technologies, 2016

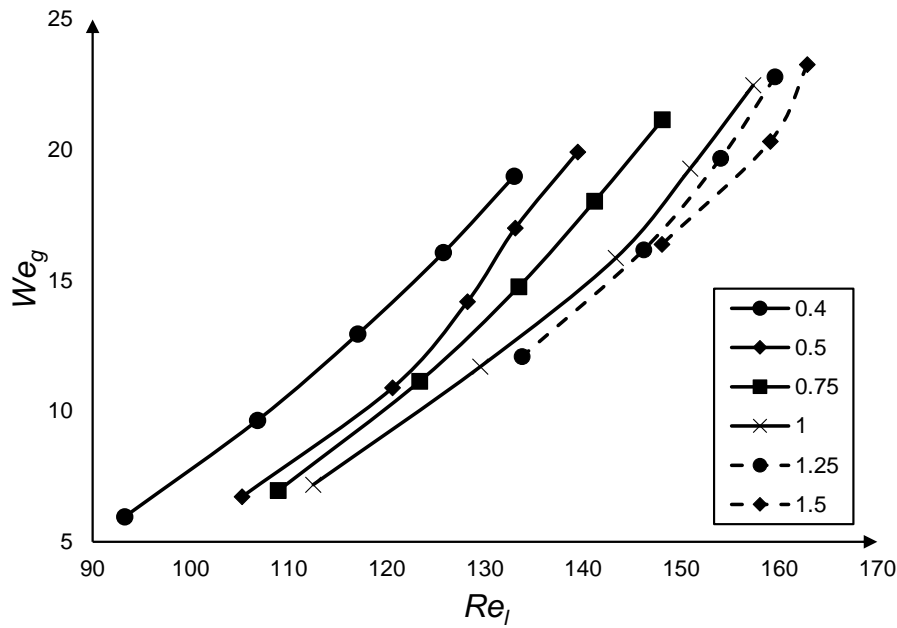


FIGURE 4.48 – Ligne de transition entre les régimes SD/T dans un plan (Re_l, We_g) . Les différentes lignes représentent plusieurs valeurs de D'_i . Le régime transitoire est à gauche de chacune d'entre elle, et le régime stationnaire dynamique à droite.

4.5.6 Conclusion

Dans cette partie, les résultats généraux obtenus à l'aide de la simulation numérique ont été présentés. Les deux parties précédentes (§ 4.3 et § 4.4) ayant décrit l'écoulement liquide dans les deux régimes (SD/T), nous avons développé ici des études complémentaires portant notamment sur les domaines de stabilité et la limite entre ces domaines, dépendant des différents paramètres du procédé.

En outre, la géométrie (notamment D'_i et H') a une importance particulière dans l'étude de la transition stable/instable.

Dans le chapitre suivant, les résultats des modèles développés sur le jet de liquide sont présentés. L'objectif est de comprendre l'origine de la fragmentation du jet et de proposer un modèle pertinent pour l'électro-aérospray.

Chapitre 5

Modélisation de la rupture du jet liquide

Dans ce chapitre, une étude du jet en aérospray et électro-aérospray est effectuée. L'objectif de ces travaux est de modéliser le comportement d'un jet liquide, de propriétés données, soumis des contraintes de nature différente. Les résultats numériques peuvent être utilisés pour prédire les caractéristiques des gouttes produites (taille, vitesse) à partir de la fragmentation du jet.

Dans leurs travaux, Gañán-Calvo *et al.* (2006) font l'hypothèse que le jet se fragmente suivant la loi de Rayleigh (1879) ($d_g \simeq 1.89 d_j$) en électro-aérospray, pour comparer les diamètres de jet analytiques avec les diamètres de goutte mesurés. Cette approximation est étayée par Berri (2018) qui ne trouve aucune différence dans les distributions des gouttelettes entre l'aérospray et l'électro-aérospray.

Nous avons présenté, dans le chapitre précédent (§ 3.2.3), les étapes de développement du modèle, avec les choix des référentiels et de géométrie effectués. Dans un premier temps, les résultats du premier modèle de jet isolé sont présentés et analysés (§ 5.1). Ensuite, une contrainte de gaz est exprimée et ajoutée au modèle, dont les résultats sont présentés dans la partie suivante (§ 5.2). Enfin, l'influence du potentiel appliqué est discutée dans le paragraphe (§ 5.3).

5.1 Cas 1 : Sans contrainte

Dans cette partie, les résultats du modèle développé au paragraphe § 3.2.3 sont détaillés. La pression à la surface du jet est nulle, et aucune contrainte n'est appliquée.

Nous utilisons plusieurs types de graphiques pour caractériser le modèle ou le jet (dans cette partie et dans la suite) :

- Rayon relatif $r - r_j$: l'instabilité se développe autour du rayon initial r_j .
 - En fonction de la longueur du jet, pour représenter le développement spatial des perturbations ;
 - En fonction du temps, afin d'analyser le développement temporel (voir Annexe D.3).
- Coefficient r_g/r_j : utilisé pour caractériser les gouttelettes produites
 - En fonction du temps, pour vérifier la régularité de la fragmentation ;
 - En fonction d'un autre paramètre, et dans ce cas nous utilisons sa moyenne temporelle.
- Erreur quadratique ϵ_q : elle nous permet de vérifier que le modèle se comporte comme attendu théoriquement.

5.1.1 Repère fixe

Dans ce modèle, la vitesse axiale du jet est non nulle. L'objectif est d'étudier la rupture du jet en considérant l'intérieur de l'éjecteur.

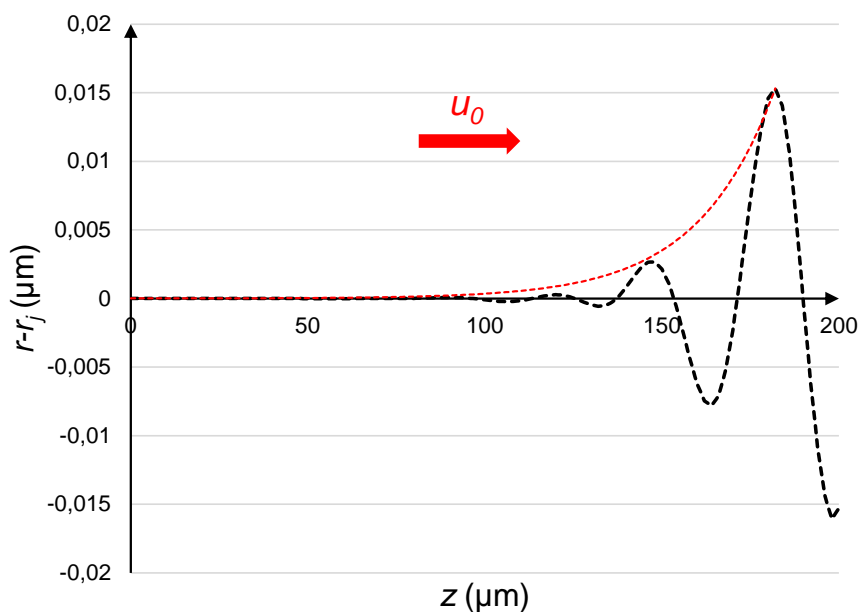


FIGURE 5.1 – (Modèle en repère fixe) Rayon du jet r en fonction de la hauteur z . Les pointillés indiquent l'enveloppe du rayon, et la flèche indique le transport de celui-ci vers la sortie du domaine.

Lorsqu'aucune contrainte de gaz n'est présente à la surface du jet, celui-ci se brise selon les résultats présentés Figure 5.1. Il est possible d'observer un développement sinusoïdal exponentiel du rayon du jet centré $r - r_j$ en fonction de la cote z (l'aspect exponentiel est illustré avec a courbe rouge pointillée).

Afin d'utiliser au mieux la méthode ALE, qui n'admet pas les changements de topologie d'un fluide lors du calcul, il est nécessaire que l'erreur quadratique ϵ_q soit majorée (voir Figure 5.2) : en effet, le développement des instabilités sur le jet mobile est représenté par une convection des perturbations. Autrement dit, il faut qu'elles soient déplacées vers la sortie du jet avant que le rayon atteigne une certaine valeur seuil r_{\max} .

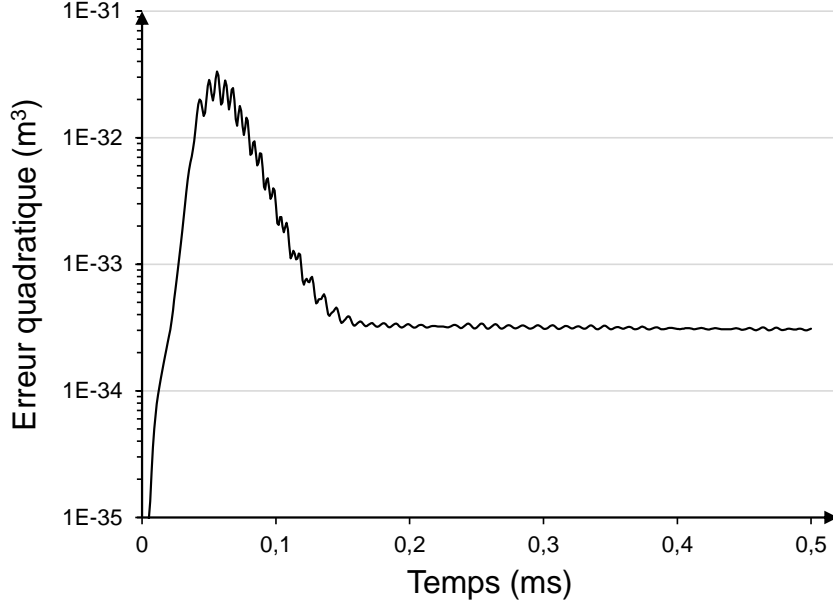


FIGURE 5.2 – (Modèle en repère fixe) Allure de ϵ_q en fonction du temps. L'erreur quadratique est bornée car les perturbations sont convectées.

Afin de développer un modèle pertinent dans ce cas, une étude a été faite sur le temps d'arrêt t_a de la simulation. La Figure 5.3 présente les résultats de cette étude. Le seuil de 10% a été choisi pour limiter la déformation du maillage et ne simuler que les perturbations surfaciques.

Les temps d'atteinte du critère (identique pour les simulations) varie en fonction de la vitesse du jet u_0 . Nous pouvons expliquer ce phénomène de seuil, observé Figure 5.3 pour $u_0 \simeq 4.5$ m.s⁻¹ : si u_0 est trop faible, alors les perturbations se développent sur le jet sans être convectées. Dans ce cas de figure, le temps d'atteinte du critère correspond au temps caractéristique de développement des gouttes. Si l'on considère que les perturbations évoluent exponentiellement :

$$r_j(t) = (1 + \epsilon e^{\omega t})r_j \quad (5.1)$$

alors le temps d'arrêt de la condition s'écrit :

$$t_a = \frac{1}{\omega} \ln \left(\frac{0.01}{\epsilon} \right) \quad (5.2)$$

Autrement dit, ϵ étant l'amplitude sans dimension des perturbations initiales sur la vitesse du fluide (et fixée par le modèle à $10^{-\alpha}$, $\alpha = \mathcal{O}(1)$), on peut écrire

$$t_a = \mathcal{O} \left(\frac{1}{\omega} \right) \quad (5.3)$$

Ce temps d'arrêt « naturel » est représenté comme le niveau $[0, 4.5 \text{ m.s}^{-1}]$ dans la courbe Figure 5.3. Il s'agit d'un phénomène dont l'étude est réservée pour le modèle effectué en repère

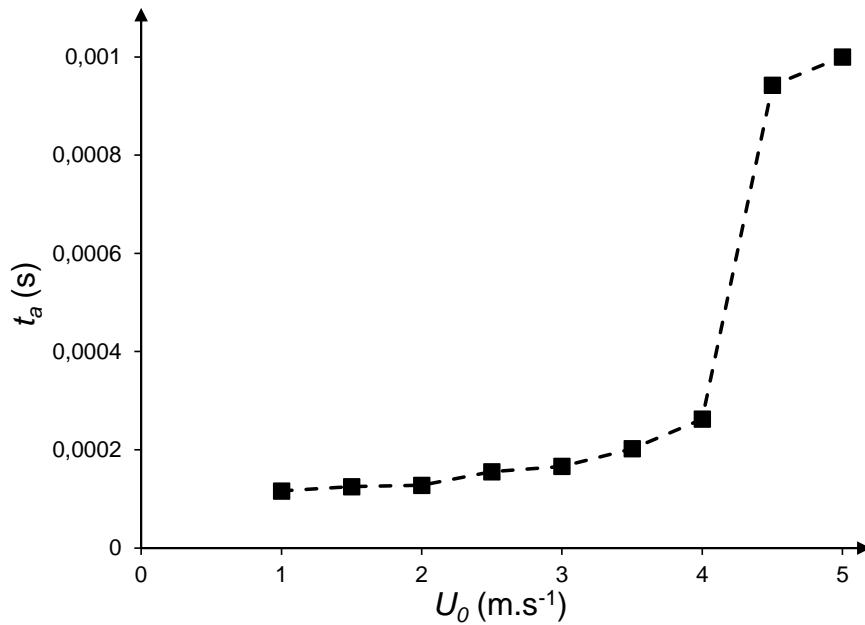


FIGURE 5.3 – (Modèle en repère fixe) Temps d'arrêt t_a vérifiant la condition éq (3.52) en fonction de la vitesse du jet.

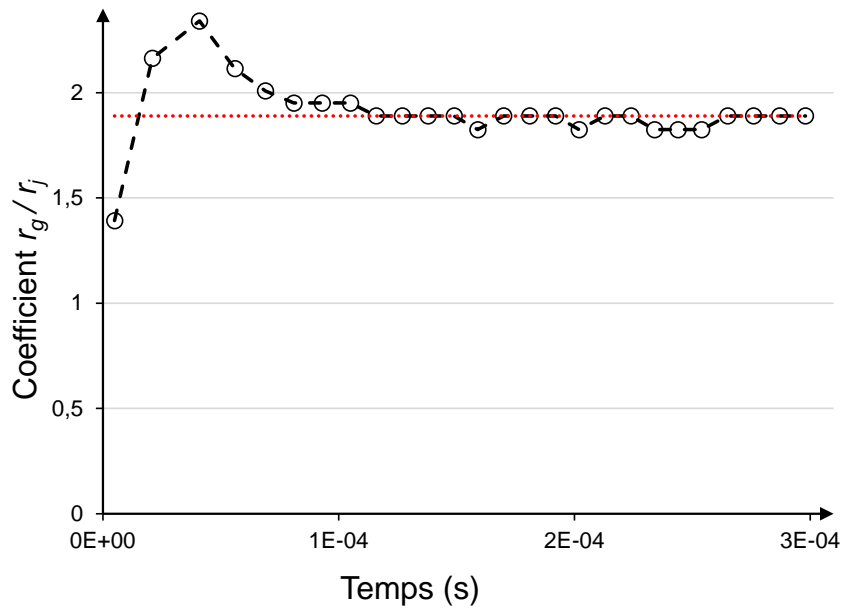


FIGURE 5.4 – (Modèle en repère fixe) Coefficient r_g/r_j des gouttes produites au fur et à mesure du temps, calculés en fonction de leur fréquence de production. La droite en pointillés rouges représente la valeur théorique 1.89 de Rayleigh (1879).

« local » : dans le modèle en repère « fixe », le but est d'avoir un temps d'arrêt supérieur au temps fixé de l'étude afin de pouvoir observer le jet en amont de la formation des gouttes.

C'est pourquoi nous travaillons à une vitesse $u_0 \geq 4.5 \text{ m.s}^{-1}$, qui convecte bien les perturbations vers la sortie du domaine. Cependant, une vitesse trop élevée du jet ne permet pas de constater le développement des instabilités (la surface du jet) reste droite et les perturbations

n'ont pas le temps de croître.

Le modèle développé produit le résultat général présenté Figure 5.4. Dans cette figure, le coefficient r_g/r_j des gouttes sont tracés en fonction du temps, en utilisant l'équation les reliant avec les longueurs d'ondes λ des instabilités développées :

$$\frac{4}{3}\pi r_g^3 = \pi r_j^2 \lambda \quad (5.4)$$

5.1.2 Repère local

Dans cette sous-partie, l'étude de la fragmentation dans un référentiel « local » (celui du jet en mouvement) est effectuée. Le domaine est présenté Figure 3.14 (Droite). Il est possible de considérer cette étude comme un cas particulier du précédent ($u_0 = 0 \text{ m.s}^{-1}$).

La Figure 5.5 illustre l'allure de la fonction $r(z)$ lors du développement des instabilités. Celles-ci forment un motif régulier et sinusoïdal. Cependant, on peut remarquer qu'aux deux extrémités du jet, les perturbations semblent moins se développer. Nous interprétons cela par le fait que la vitesse axiale est nulle en ces points.

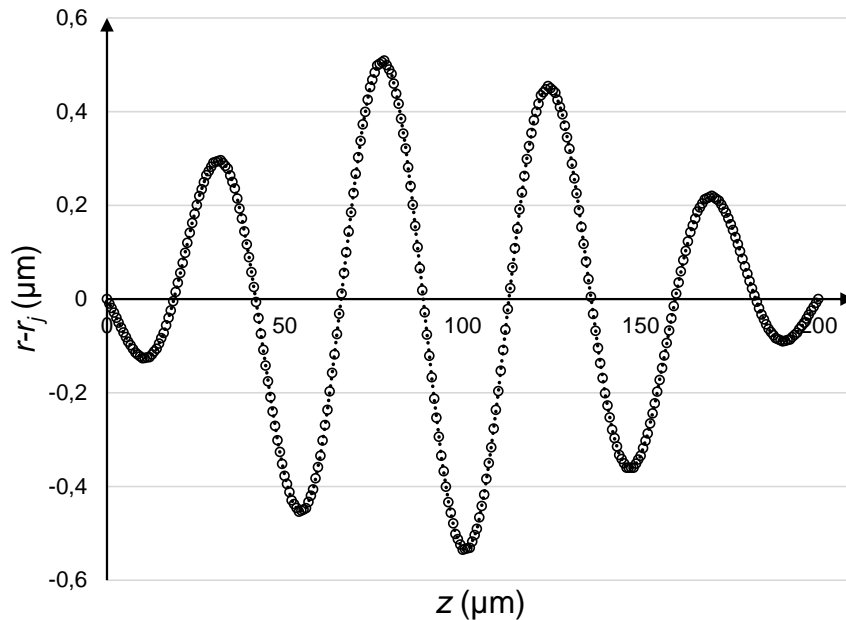


FIGURE 5.5 – (Modèle en repère local) Rayon du jet centré $r - r_j$ en fonction de la hauteur z du jet. Le critère d'arrêt est fixé à $0.5 \mu\text{m}$.

Longueur du domaine

Lors de l'élaboration du modèle, nous avons réalisé une étude de dépendance de la fragmentation du jet (taille de gouttes produites, longueur d'onde des instabilités, temps d'atteinte du critère) en fonction de la longueur du domaine. Cette dépendance du modèle à ce paramètre doit être maîtrisée, pour ne pas créer artificiellement des longueurs d'ondes « forcées » par une longueur fixe.

Les résultats de cette étude sont présentés Figure 5.6. L'axe de gauche représente les temps d'atteinte du critère, en millisecondes, tracés en losanges. L'axe de droite représente les longueurs d'ondes des perturbations développées à la surface du jet, avec la prédiction λ_R de Rayleigh (1879)

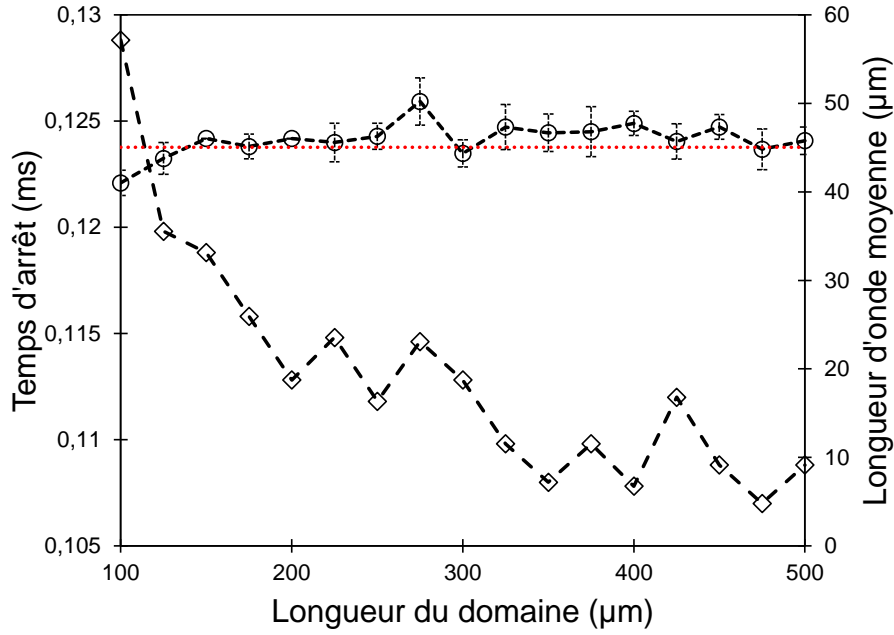


FIGURE 5.6 – (Modèle en repère local) (Losanges, gauche) Temps d’arrêt de la simulation par atteinte du critère éq. (3.52) en fonction de la longueur du domaine considéré ; (Cercles, droite) Longueurs d’ondes moyennes obtenues. La droite en pointillée rouge représente la prédiction théorique de longueur d’onde de Rayleigh (1879).

(droite rouge pointillée), égale à $\lambda_R = 9.01 r_j$. Par exemple, la configuration du résultat présenté à la Figure 5.5 fait partie de cette étude, et correspond à la longueur $200 \mu\text{m}$. Les écarts-types de chaque distribution de longueur d’onde sont également indiqués.

On constate une variation du temps d’arrêt t_a en fonction de la longueur L . Cependant, cette variation est relativement faible (par exemple, elle est de 4% entre $L = 200 \mu\text{m}$ et $L = 400 \mu\text{m}$). La longueur d’onde des instabilités λ apparaît au contraire presque indépendante de la longueur du domaine L , et en accord avec les résultats théoriques.. Ce résultat permet de vérifier la robustesse du modèle développé et sa faible dépendance à L .

Pour la suite, nous avons utilisé la valeur $L = 200 \mu\text{m}$ comme valeur globale pour le domaine d’étude.

Le développement de l’erreur quadratique ϵ_q est illustré à la Figure 5.7. On remarque que ce résultat est en corrélation avec l’hypothèse d’écriture du rayon $r(z)$ selon un développement exponentiel de l’instabilité :

$$r_j(t) = (1 + \epsilon e^{i(\omega t + kz)})r_j \quad (5.5)$$

En combinant les équations (5.5) et (3.51), on obtient la formulation de ϵ_q suivante :

$$\epsilon_q = \int_0^L r_j^2 \epsilon^2 e^{2i(\omega t + kz)} dz \quad (5.6)$$

$$= r_j^2 \epsilon^2 \frac{e^{2i\omega t}}{2ik} (e^{2ikL} - 1) \quad (5.7)$$

et donc, en passant au logarithme (en notant A une constante arbitraire) :

$$\ln(\epsilon_q) = 2i\omega t + A \quad (5.8)$$

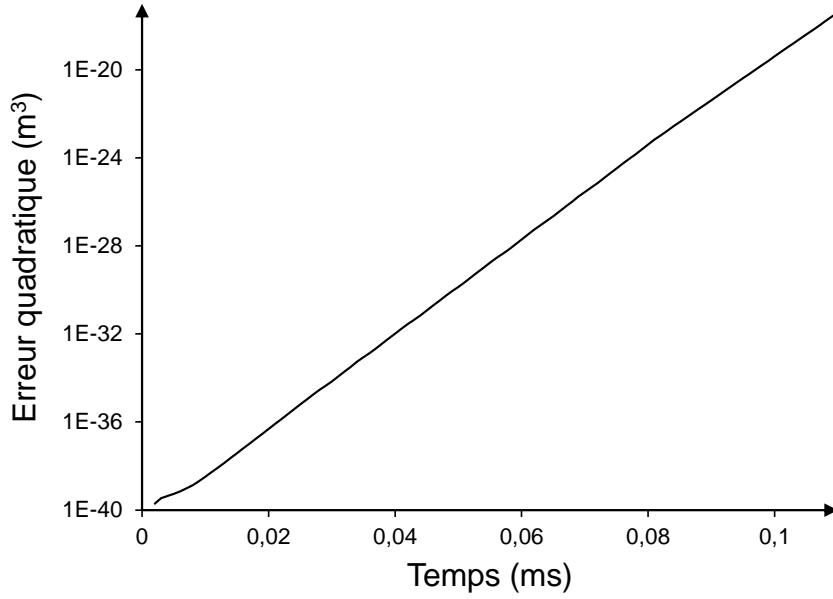


FIGURE 5.7 – (Modèle en repère local) Allure de ϵ_q en fonction du temps. L'erreur quadratique est à pente logarithmique constante.

Nous retrouvons bien dans le résultat du modèle ALE que le logarithme de ϵ_q est bien affine par rapport au temps (voir Figure 5.7). De plus, la comparaison de la pente de cette droite peut être réalisée *via* la dérivation de l'équation (5.8) :

$$\frac{\partial}{\partial t} \ln(\epsilon_q) = 2i\omega \quad (5.9)$$

L'application numérique effectuée avec l'analyse de la droite représentant ϵ_q Figure 5.7 donne la valeur $2i\omega \simeq 4.6 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$. Pour conclure le raisonnement, il faut revenir à l'analyse de stabilité linéaire (en annexe D.1), qui indique les taux de développements des instabilités ω' en fonction de leur nombre d'onde k . En notant $\omega_0 = \sqrt{\sigma/\rho r_j^3}$, on peut adimensionner la valeur de $i\omega$ obtenue avec le modèle ALE :

$$\omega' = \frac{i\omega}{\omega_0} \simeq \frac{2.30 \times 10^5}{7.48 \times 10^5} \quad (5.10)$$

$$\simeq 0.307 \quad (5.11)$$

Soit une valeur approchée du maximum $\omega'_{\max} \sim 0.343$ du modèle théorique de Rayleigh (1879). Dans ce modèle, le fluide est considéré inviscide ($\mu_l = 0$). Un ajout de la viscosité réduit ce terme ω'_{\max} , ce qui est cohérent avec notre résultat.

5.2 Cas 2 : Avec pression de gaz

Dans cette partie, l'objectif est d'imposer au jet une contrainte due à un écoulement parallèle d'air, lui-même dû à un gradient de pression. La figure 5.8 décrit l'allure de la pression (en Pa) en fonction de la hauteur du jet liquide, pour une différence de pression entre la chambre et l'extérieur de $\Delta P_g = 0.3$ bar. L'ordre de grandeur de vitesse de l'écoulement de gaz dans ces conditions est de 50 m.s^{-1} .

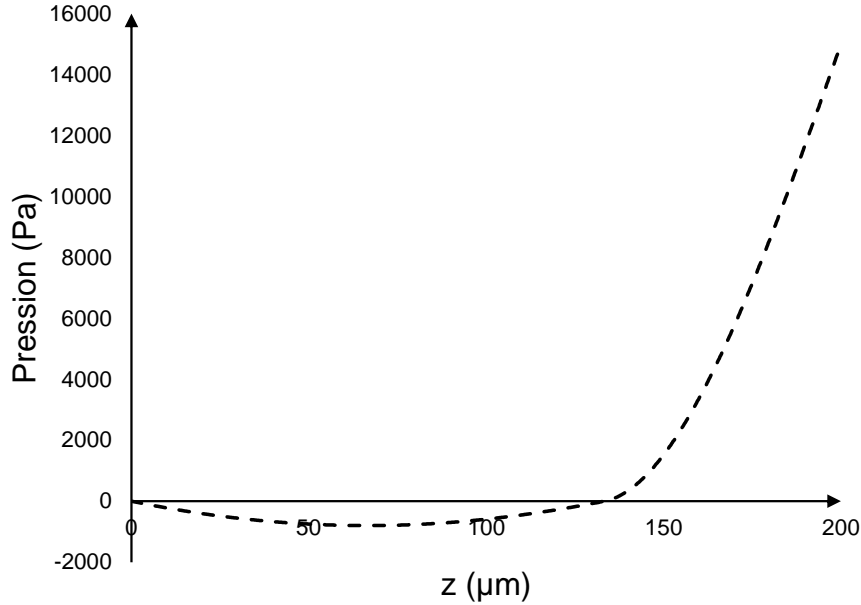


FIGURE 5.8 – Allure de la pression sur la longueur du jet pour $\Delta P_g = 0.3$ bar, obtenu à partir d'un modèle de cône d'aérospray (profil axial de pression).

5.2.1 Description de la contrainte

On écrit typiquement l'expression d'une contrainte de cisaillement τ_v (en Pascal) comme :

$$\tau_v = \mu \frac{\partial U}{\partial r} \quad (5.12)$$

Nous utilisons cette formule pour exprimer la contrainte τ_g appliquée par le gaz sur le liquide. Il est possible de simplifier cette expression, en considérant que la vitesse est continue à l'interface, et qu'elle est variable dans la couche limite de gaz :

$$\tau_g = \mu_g \frac{\partial w}{\partial r} \quad (5.13)$$

$$\sim \mu_g \frac{w_g - w_l}{\delta_g} \quad (5.14)$$

où $w_g - w_l$ est la vitesse relative entre l'air et l'eau, et $\delta_g \simeq l/\sqrt{\text{Re}_g}$ l'épaisseur de la couche limite dans l'air (l est une longueur typique de l'écoulement et Re_g le nombre de Reynolds de l'écoulement gaz).

Afin d'implémenter cette force dans le modèle, il est nécessaire de l'exprimer en contribution faible. L'expression de \vec{F} est :

$$\vec{F} = \int \vec{\sigma} \cdot \vec{n} \, dS \quad (5.15)$$

où $\bar{\sigma}$ est le tenseur des contraintes générées par l'ajout du gaz.

$$\bar{\sigma} \cdot \vec{n} = \begin{pmatrix} \sigma_{rr} & \sigma_{rz} \\ \sigma_{zr} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_r \\ n_z \end{pmatrix} \quad (5.16)$$

$$= \begin{pmatrix} \sigma_{rr}n_r + \sigma_{rz}n_z \\ \sigma_{zr}n_r + \sigma_{zz}n_z \end{pmatrix} \quad (5.17)$$

On néglige les coefficients σ_{rr} et σ_{zz} (on cherche à modéliser les déformations et non pas les rotations), ce qui nous permet d'écrire la contrainte gazeuse sous la forme :

$$\begin{aligned} \sigma_{rz} = \sigma_{zr} = \tau_g &= \mu_g \frac{w_g}{\delta_g} \\ &= \frac{\mu_g w_g \sqrt{\text{Re}_g}}{l} \end{aligned} \quad (5.18)$$

Nous souhaitons caractériser l'influence de la contrainte tangentielle due au gaz à la surface du liquide. Nous exprimons cette contrainte comme :

$$\vec{F} = \|\vec{F}\| \vec{T} \quad (5.19)$$

La contrainte peut enfin être implémentée en contribution faible, à la surface du jet de liquide, comme une projection sur l'espace des fonctions tests.

5.2.2 Repère fixe

La Figure 5.9 présente le résultat obtenu avec l'implémentation de la pression de gaz (Figure 5.8) dans le modèle à repère fixe. Dans cette configuration, la pression de gaz est fixée à $\Delta P_g = 3 \times 10^3$ Pa.

Nous observons dans cet exemple que le rayon moyen des gouttelettes est inférieur à celui correspondant à la théorie de Rayleigh (1879). En effet, alors que celle-ci prévoit un rayon moyen de $9.45 \mu\text{m}$ (pour un rayon de jet de $5 \mu\text{m}$), nous obtenons un rayon moyen de $8.90 \mu\text{m}$, soit environ 5.80 % plus faible. En d'autres termes, le maximum de ω/ω_0 est atteint pour $kh \simeq 0.83$.

Une trop forte augmentation de cette contrainte conduit le modèle à produire des gouttes trop rapidement (et donc ne permet pas d'obtenir des valeurs moyennes de gouttes produites fiables). En effet, il apparaît qu'une pression trop forte à la surface du jet réduit la longueur de rupture (*break-up length*). Pour cette raison, nous avons dû adapter en fonction des modèles la vitesse du jet dans le repère fixe, afin de régler la convection des instabilités vers la sortie du domaine.

La Figure 5.10 représente le coefficient r_g/r_j (égal à 1.89 dans le cas sans contrainte) en fonction de la pression de gaz appliquée à l'interface liquide/gaz. Comme détaillé ci-dessus, nous avons dû calibrer le modèle en fonction des pressions appliquées, dans le sens où l'instabilité se développe plus ou moins rapidement. Les différents symboles sur la figure représentent plusieurs valeurs de vitesses u_0 du jet.

Ce modèle nous permet de conclure que l'ajout d'une pression extérieure à la surface du jet permet de réduire la taille des gouttes, par exemple en la faisant passer de $r_g = 9.45 \mu\text{m}$ dans le cas sans contrainte à $r_g = 7.90 \mu\text{m}$ avec une pression appliquée de $\Delta P_g = 0.3$ bar.

5.2.3 Repère local

Dans ce paragraphe, nous étudions la fragmentation du jet dans le référentiel « local ». La contrainte est présentée de plusieurs manières :

- Soit en terme de pression à la surface du jet.
- Soit en formulation faible comme présenté au premier paragraphe de cette partie.

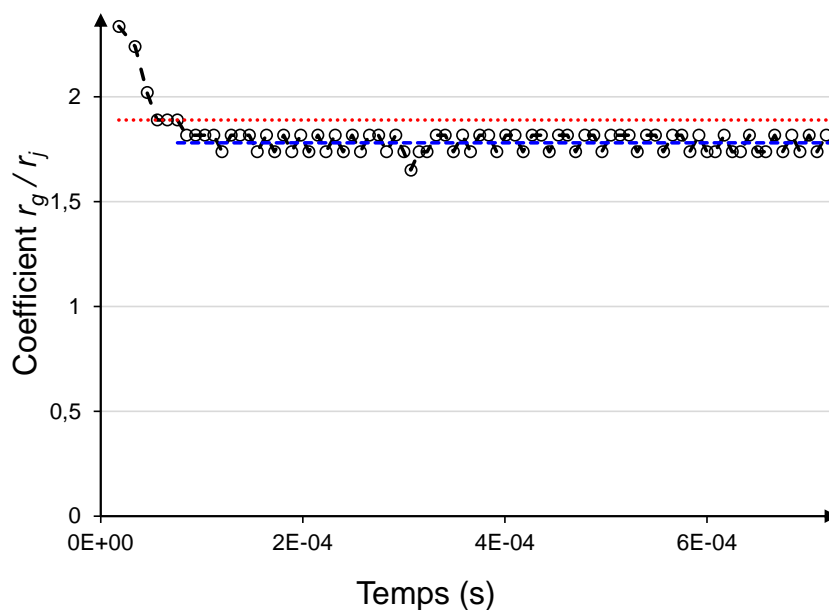


FIGURE 5.9 – (Modèle en repère fixe) Rayons équivalents des gouttes produites au fur et à mesure du temps, calculés en fonction de leur fréquence de production. La droite en pointillés rouge représente la valeur théorique de Rayleigh, et celle en pointillés bleus la valeur moyenne obtenue.

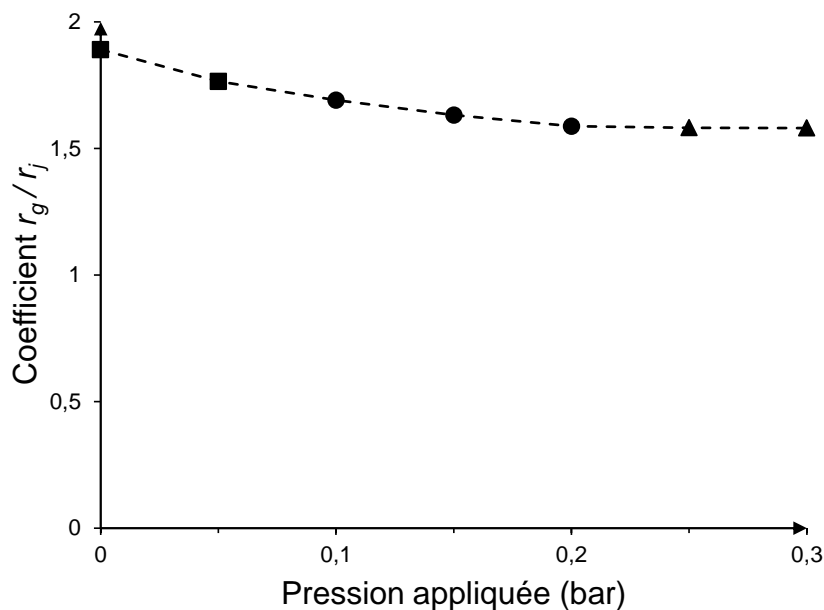


FIGURE 5.10 – Coefficient r_g/r_j en fonction de la pression appliquée à l'interface. Les différents symboles représentent les vitesses de jet utilisées, respectivement $u_0 = 5, 7$ et 9 m.s^{-1} pour les carrés, cercles et triangles.

5.2.3.1 Pression constante à la surface du jet

La Figure 5.11 illustre l'influence de la pression sur la taille des gouttelettes produites. Dans ce modèle, la pression appliquée est constante sur toute la surface.

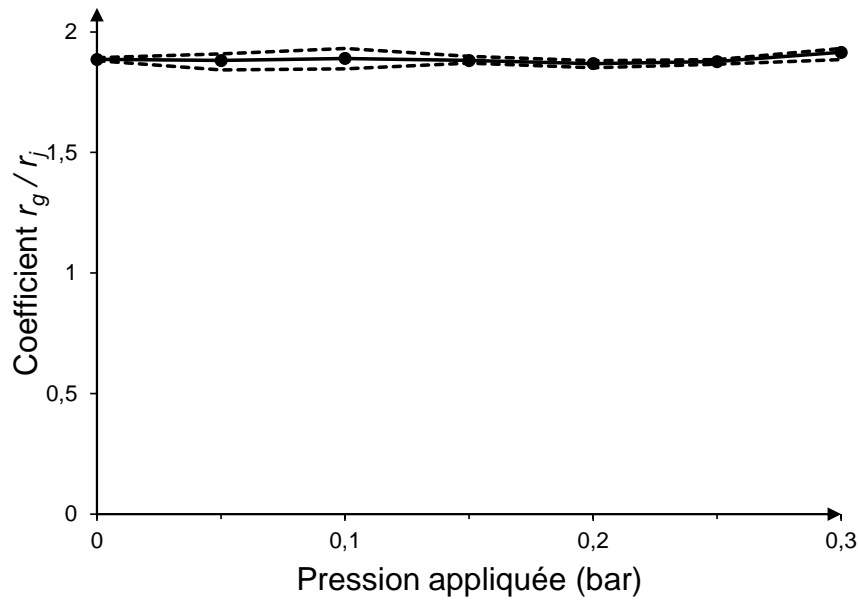


FIGURE 5.11 – Valeur du coefficient r_g/r_j en fonction de la pression appliquée ΔP_g . La droite continue représente les valeurs moyennes obtenues en utilisant plusieurs valeurs de bruit initial, et les lignes en pointillées représentent l’enveloppe « min/max » des valeurs obtenues (4 simulations pour chaque valeur de pression).

Dans cette figure, les valeurs moyennes sur quatre simulations sont représentées par la ligne continue et les cercles pleins. Les pointillés représentent les valeurs minimales et maximales obtenues pour différents bruits initiaux (l’amplitude initiale du bruit est identique dans ce cas).

Nous remarquons un effet limité de la pression sur la taille des gouttelettes, par rapport à la prédiction de Rayleigh (1879) de $r_g/r_j \simeq 1.89$. Il n’y a pas de tendance à proprement parler, ce qui peut s’expliquer par le fait que le modèle ne tient pas en compte la vitesse du jet.

5.2.3.2 Pression convectée

La Figure 5.12 présente l’effet de la pression appliquée ΔP_g sur le même coefficient r_g/r_j , sous la même forme que la Figure 5.11.

Dans cette configuration, la pression est en mouvement et est convectée : au lieu d’être constante sur la surface $p(z) = \text{cst}$, la fonction est transportée $p(z) = p_{\text{anal}}(z - u_0 t)$, où p_{anal} est la pression analytique illustrée à la Figure 5.8 et u_0 est la vitesse vu jet, fixée à 10 m.s^{-1} .

Nous ne remarquons là encore pas une influence significative de la pression de gaz appliquée sur l’interface sur les tailles de gouttelettes produites. Aucune tendance n’est remarquable.

5.2.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons présenté deux modèles du jet liquide, sous la présence d’une contrainte/pression de gaz extérieure. Le premier modèle consiste à simuler le jet dans un repère fixe, et d’analyser les gouttes émises au fur et à mesure du temps. Le second modélise une portion de jet en mouvement (repère local), et nous analysons les longueurs d’ondes des instabilités développées.

Ces deux modèles ne sont pas en accord parfait : dans l’un, le coefficient r_g/r_j dépend de la pression d’air (passant de 1.89 pour une pression nulle à 1.58 pour $\Delta P_g = 0.3 \text{ bar}$), et dans

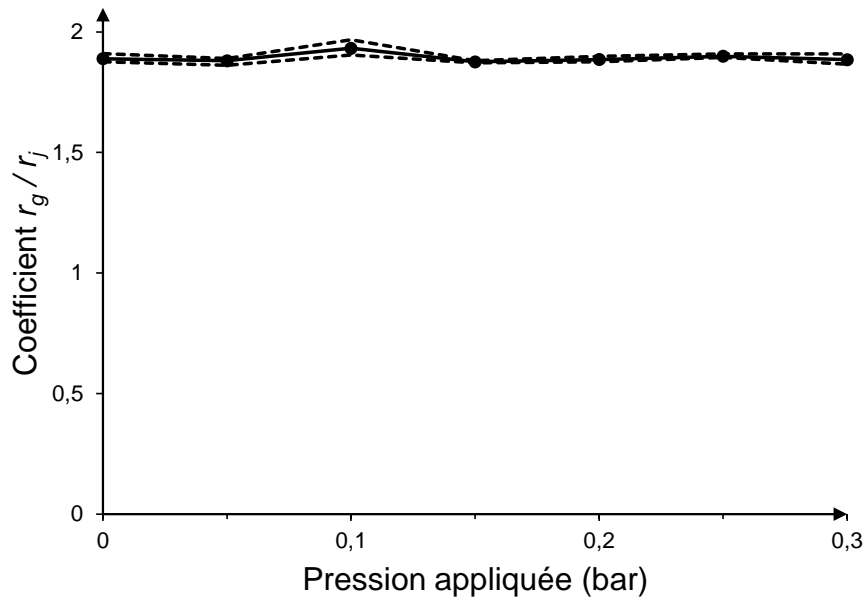


FIGURE 5.12 – Valeur du coefficient r_g/r_j en fonction de la pression appliquée ΔP_g . La droite continue représente les valeurs moyennes obtenues en utilisant plusieurs valeurs de bruit initial, et les lignes en pointillées représentent l'enveloppe « min/max » des valeurs obtenues (4 simulations pour chaque valeur de pression).

l'autre nous n'observons aucune tendance de ΔP_g sur r_g/r_j . Plusieurs conclusions peuvent être tirées de cette étude :

- Le diamètre des gouttes produites peut s'approximer dans une certaine mesure par la formule de Rayleigh (1879), $d_g \simeq 1.89d_j$,
- Le jet liquide se fragmente de manière régulière dans le temps,
- Nous n'observons pas de phénomène de gouttelettes satellites, qui rendrait le spray poly-modal (plusieurs tailles moyennes de gouttelettes principales).

5.3 Cas 3 : Avec potentiel électrique

Dans cette partie, l'objectif est d'étudier l'influence de l'électricité sur la fragmentation du jet. Plusieurs méthodes sont développées dans cette optique. Dans un premier temps, nous rappelons le contexte expérimental et analytique de cette étude. Ensuite, nous abordons l'application des modèles précédents en ajoutant une pression (la pression électrostatique). Ensuite, nous développons un autre modèle qui tient en compte le champ électrique.

5.3.1 Contexte

Les premières études expérimentales des gouttes produites ont été effectuées par Basset (1888a). Elles sont analysées un siècle plus tard par Schneider *et al.* (1967), Taylor (1969). Ces analyses distinguent l'équation de dispersion en fonction du mode de rupture m .

Pour $m = 0$ (rupture du jet axisymétrique), l'équation de dispersion est :

$$\left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2 = \underbrace{(1 - k^2 r_j^2) k r_j \frac{I_1(k r_j)}{I_0(k r_j)}}_{\text{Terme capillaire}} - \underbrace{k r_j \Gamma \left(1 - k r_j \frac{K_1(k r_j)}{K_0(k r_j)}\right)}_{\text{Terme électrique}} \quad (5.20)$$

où ω_0 est la pulsation caractéristique, r_j le rayon du jet et $k = 2\pi/\lambda$ le nombre d'onde des perturbations. Les fonctions I_p et K_p sont les fonctions modifiées de Bessel (voir annexe D.1). L'électricité est représentée dans le facteur Γ (qui représente le rapport entre l'action électrique et celle de la tension de surface) avec :

$$\Gamma = \frac{\epsilon_0 V_0^2}{\gamma r_j \ln(D_0/r_j)} \quad (5.21)$$

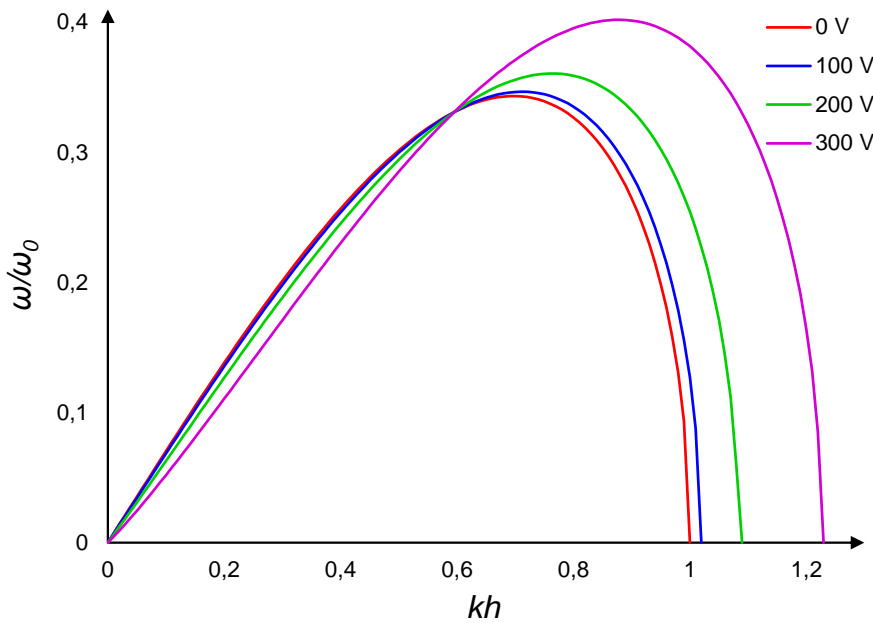


FIGURE 5.13 – Différentes courbes d'instabilités pour plusieurs valeurs de tension V_0 appliquées, calculées avec l'équation 5.20 (Huebner et Chu, 1971).

La Figure 5.13 illustre les différentes courbes de perturbations obtenus en augmentant la tension du jet V_0 . Sur cette figure, la courbe rouge correspond au cas idéal de Rayleigh (1879).

On observe que l'électricité modifie la courbe, et en particulier, modifie son maximum. Pour rappel, la valeur du maximum est le taux de développement temporel de la perturbation, et l'argument du maximum correspond à la longueur d'onde de celles-ci. Cette longueur d'onde peut être directement convertie en coefficient de taille de goutte par rapport au diamètre du jet. Par exemple, pour $V_0 = 0$ V, l'argument du maximum est environ $kr_j \simeq 0.7$, correspondant à un rapport $r_g/r_j = 1.89$. Dans le cas où $V_0 = 300$ V, l'argument du maximum est $kr_j \simeq 1.02$, et le rapport devient $r_g/r_j = 1.67$.

5.3.2 Application à l'électro-aérospray

Dans le cas de l'électro-aérospray, il est possible de prouver que les gouttelettes sont bien produites au voisinage proche de l'éjecteur, avec deux arguments principaux complémentaires :

1. Berri (2018) montre que le courant produit par le spray est proportionnel à la différence de potentiel entre la buse et l'éjecteur ($I \propto \Delta V$). En particulier, le courant du spray est nul lorsque la buse et l'éjecteur sont à la même tension. Dans ce cas, les gouttelettes ne sont pas chargées.
2. Nous prouvons que le champ électrique est très faible au voisinage de l'orifice de l'éjecteur lorsque $\Delta V = 0$ V. Voir en Annexe D.2.

Ces deux assertions permettent d'affirmer que les gouttelettes sont bien produites et chargées au voisinage proche de l'éjecteur. En effet, leur charge électrique est proportionnelle à la différence de potentiel buse-éjecteur ΔV .

5.3.3 Modèles développés

Dans ce paragraphe, nous présentons le modèle développé dans le cas où une contrainte électrique est ajoutée, ainsi que les résultats des simulations.

5.3.3.1 Pression analytique

Dans ce premier modèle, nous calculons la pression électrostatique analytique appliquée à la surface du jet, et l'appliquons en addition de la pression de gaz comme à la partie précédente, dans le modèle à repère fixe (§ 5.2.2).

Sous l'hypothèse que la surface du jet de liquide est au même potentiel électrique, nous pouvons calculer le champ électrique dans l'éjecteur autour du jet (formule d'un condensateur cylindrique) :

$$\vec{E} = \frac{\Delta V}{r \ln(R_o/r_j)} \vec{n} \quad (5.22)$$

Dans cette équation, on appelle \vec{n} le vecteur normal à la surface du jet. À la surface du jet, la pression électrostatique p_e vaut donc :

$$p_e = -\frac{1}{2} \epsilon_0 \|\vec{E}\|^2 \quad (5.23)$$

$$= -\frac{\epsilon_0 \Delta V^2}{2r_j^2 \ln(R_o/r_j)^2} \quad (5.24)$$

L'application numérique de cette équation, en prenant $\Delta V = 100$ V, $r_j = 5 \mu\text{m}$ et $R_o = 100 \mu\text{m}$, donne une valeur approchée de $p_e \simeq -0.16$ bar. Nous pouvons remarquer que cette pression relative est négative, et peut venir compenser la pression de gaz appliquée autour du liquide.

5.3.3.2 Champ électrique calculé

La Figure 5.14 illustre le domaine de résolution des équations gouvernant l'écoulement fluide (pour la partie jet) et le potentiel électrique (pour la partie air), pour le second modèle résolu.

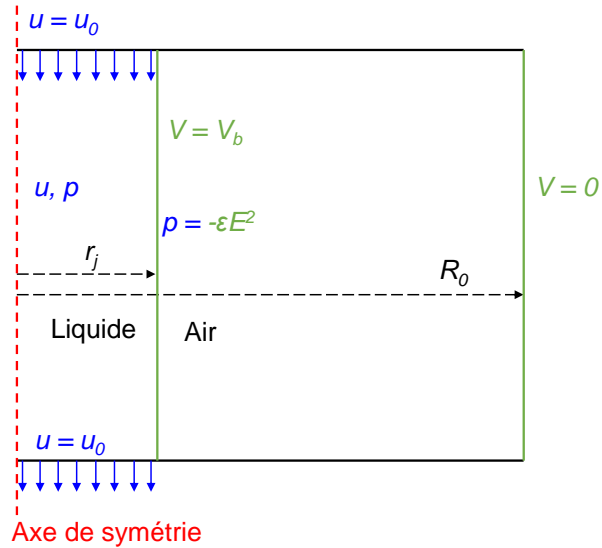


FIGURE 5.14 – Schéma représentant le domaine d'étude dans le modèle de jet électrisé.

Dans ce modèle, uniquement l'écoulement liquide est résolu. Dans le gaz, nous calculons le champ électrique créé entre le jet et la paroi de l'éjecteur. La pression d'air est implémentée comme au paragraphe § 5.2.2 et l'effet électrique sous forme de contrainte, de façon similaire à la contrainte développée au paragraphe § 5.2.1.

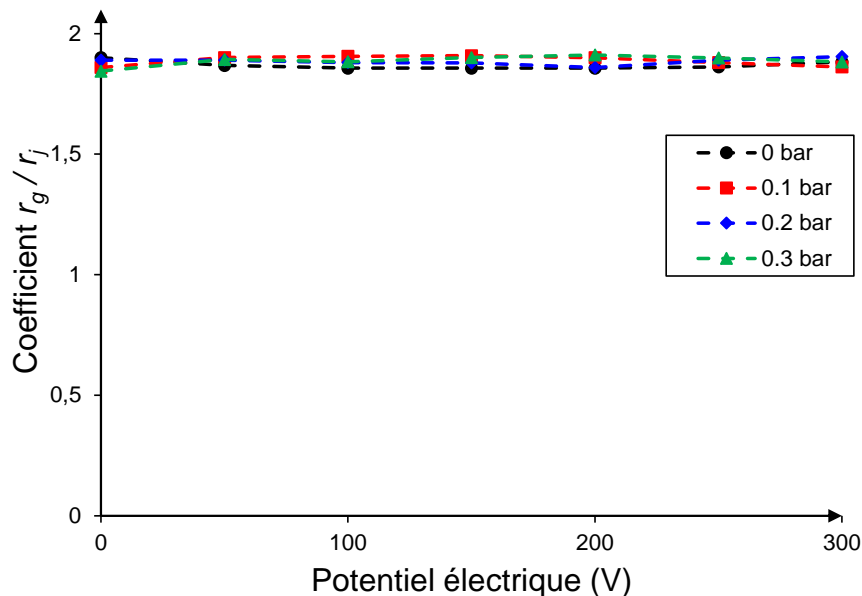


FIGURE 5.15 – Résultats des modèles sous l'effet d'une pression d'air et d'une contrainte électrique.

La Figure 5.15 illustre les résultats du modèle. Chaque point sur ce graphique provient de la

moyenne d'au moins quinze gouttelettes produites. Nous observons que le coefficient r_g/r_j varie peu, en restant dans un intervalle autour de la valeur 1.89 de Rayleigh (1879).

Dans cette partie, nous avons étudié le cas d'un jet liquide en présence d'électricité. Analytiquement, l'action électrostatique peut être considérée comme pression, qui motive le jet à se fragmenter, mais qui est compensée par une pression de gaz dans le cas de l'électro-aérospray.

5.4 Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons examiné la fragmentation du jet en électro-aérospray. L'objectif était de déterminer s'il était possible d'assimiler la rupture du jet à une fragmentation classique, dite Rayleigh (1879). Il s'agit d'une approximation classique, effectuée en *flow focusing* et en *electro flow focusing* par exemple, par Gañán-Calvo *et al.* (2006), pour relier les résultats théoriques aux données expérimentales de tailles de gouttes.

Dans un premier temps, nous avons présenté les étapes et le contexte de nos travaux. Nous avons implémenté un premier modèle dans le cas standard, et bien trouvé le coefficient de $r_g/r_j = 1.89$ attendu, ce qui a permis de valider l'approche et le paramétrage du modèle. Ensuite, nous avons réfléchi à la manière d'introduire une contrainte active à la surface du jet (pour étudier l'effet de l'écoulement de gaz coaxial, ainsi que de l'électricité). Plusieurs méthodes ont été proposées, dans chaque repère d'étude. En conclusion, nous pouvons affirmer que les contraintes ajoutées à la surface du jet modifient peu les tailles des gouttes produites, et qu'il s'agit d'une approximation raisonnable pour une comparaison expérimentale.

Chapitre 6

Conclusion

6.1 Discussion générale

Les travaux de recherche présentés dans ce mémoire sont motivés par les besoins de l'entreprise DBV Technologies, qui envisage d'utiliser le procédé d'électro-aérospray pour la production des patches Viaskin® Milk. Dans cette optique, nous avons étudié ce procédé et l'influence de la configuration sur les différents modes et régimes obtenus, en utilisant principalement la modélisation et la simulation numérique.

6.1.1 Complémentarité avec les expériences de Berri (2018)

Ces travaux ont été complémentaires aux recherches expérimentales de Berri (2018) à DBV Technologies. En effet, la décomposition spatiale des phénomènes peut être schématisée comme sur la Figure 6.1 (à gauche). Cette décomposition des phénomènes est cône/jet/spray/dépôt.

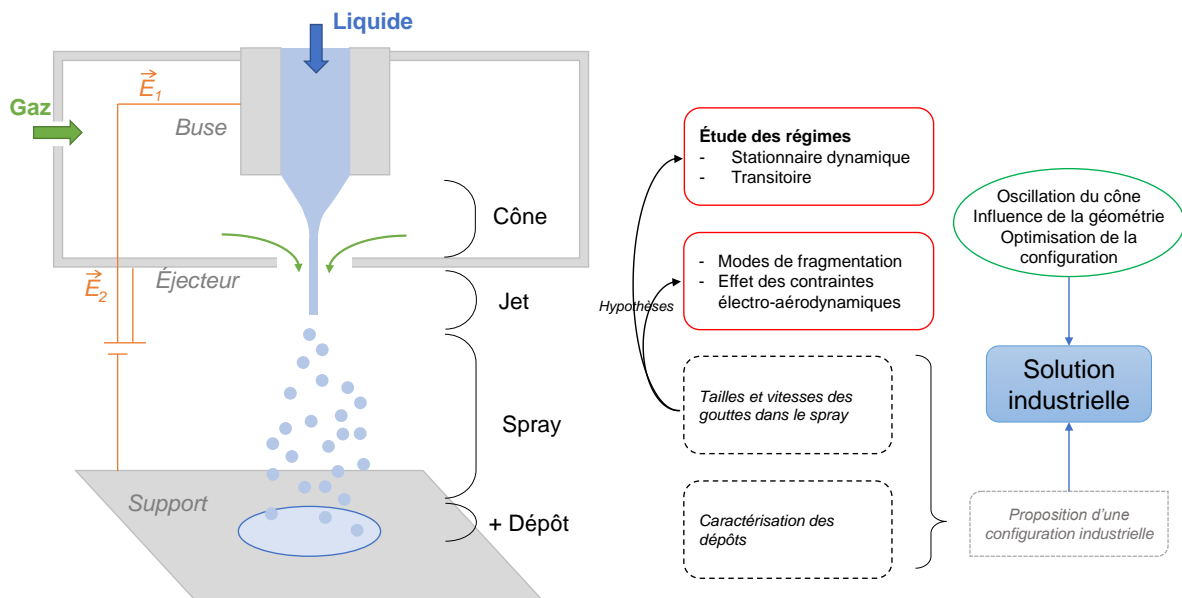


FIGURE 6.1 – Schéma illustrant les différentes études numériques et expérimentales en électro-aérospray.

Avec le montage expérimental développé, Berri (2018) s'est focalisé sur le spray et ses ca-

ractéristiques (tailles et vitesses des gouttes), ainsi que sur le dépôt obtenu (diamètre, dosage, étude au microscope à balayage), visible en rectangles pointillés sur la Figure 6.1. Il a proposé en conclusion de ses études paramétriques une configuration précise pour les paramètres géométriques et physiques, qui permet d’obtenir un dépôt sec à un débit liquide fixé $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$ (rectangle gris). Globalement, l’objectif guidant le choix des différents paramètres était la minimisation de la taille moyenne des gouttelettes d_g (tout en gardant une distribution monomodale). Cependant, certains des choix géométriques, par exemple le diamètre intérieur de la buse D_i , ont été effectués arbitrairement, aucune dépendance significative n’ayant été constaté sur les distributions des diamètres de gouttes.

De plus, un paramètre crucial n’a pas été exploré dans cette étude : le débit liquide Q_l . Nous avons montré dans nos travaux de simulation que ce paramètre avait un impact direct sur la stabilité du cône de liquide (donc du spray). Concrètement, aucune mention de l’aspect oscillant du spray n’est décrite, à part la pulsation visible à l’œil nu pour une valeur de H trop élevée ($550 \mu\text{m}$). Dans le paragraphe (§ 4.4.2), nous avons montré qu’en effet, augmenter H pouvait mener à une croissance sensiblement élevée de la période d’oscillation du cône T . L’œil nu n’étant pas suffisant pour détecter des périodes d’oscillations inférieures à $T_{\text{oeil}} = 1/30 \text{ Hz} \simeq 33.3 \text{ ms}$, il est fortement probable que la transition spray continu/pulsé observé pour un H plus élevé que $550 \mu\text{m}$ soit due à l’atteinte de ce seuil T_{oeil} et que le spray soit oscillant même pour un H inférieur.

La Figure 6.2 représente le comportement de la période T attendue en fonction du paramètre H , selon l’équation (3.3) développée dans le chapitre 3 où nous avons surtout étudié l’influence de Q_l . Les valeurs des paramètres sont celles de Berri (2018).

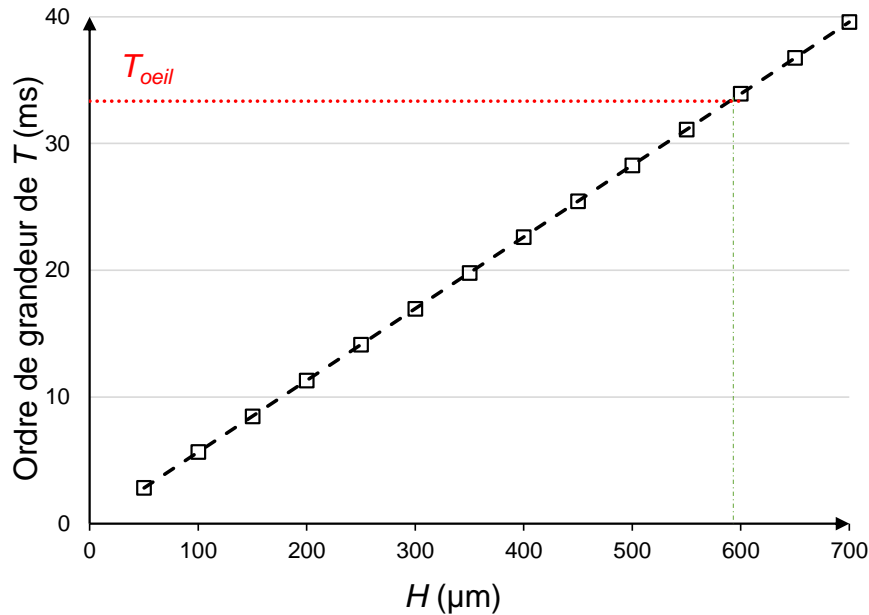


FIGURE 6.2 – Ordre de grandeur attendu de la période d’oscillation du cône T en fonction de la distance buse/éjecteur H , d’après l’équation (3.3) de proportionnalité.

En outre, il est également possible de prouver qu’il existait un phénomène d’oscillation du spray non présenté dans Berri (2018), dans certaines configurations. En effet, nous avons effectué un traitement des données brutes obtenues par diffraction laser (PDA, *Phase Doppler Anemometry*), détaillé en annexe E, qui valide cette hypothèse. Sans étudier plus particulièrement les tailles et vitesses des gouttelettes dans le spray, nous nous sommes intéressés aux différents temps d’acquisition du système expérimental, et avons trouvé des fréquences particulières pouvant cor-

respondre aux oscillations du cône de liquide.

Il est possible de développer nos connaissances en traitant les données obtenues encore plus en détail (voir le paragraphe concernant les perspectives, § 6.2). En annexe E, plusieurs pistes précises sont développées mais beaucoup d'autres sont à étudier. La modélisation étant effectuée sur des hypothèses réalisées à partir des résultats expérimentaux, elle a permis de résoudre plusieurs problématiques, mais a également levé plusieurs questions. Continuer ce travail expérimental permettrait de prouver la validité du modèle et de ses résultats.

Pour conclure ce paragraphe, nous pouvons affirmer que malgré une certaine distance *a priori* entre les expériences numériques et pratiques, ces travaux de thèse ont contribué à répondre à une série de questions posées à l'issue du travail de Berri (2018), *via* la modélisation et la simulation. En effet, nous avons examiné les différents régimes d'écoulement du cône de liquide, qui influent directement sur le comportement du spray. Nous avons également prouvé que les paramètres géométriques ont un effet sur la stabilité du cône et le diamètre du jet (notamment le diamètre intérieur de la buse D'_i). Il est donc possible d'optimiser le procédé industriel en ajustant certains paramètres. En particulier, nous pouvons proposer d'augmenter le débit liquide Q_l , car il est probable que le spray oscille à 3 ml.h^{-1} . Une suggestion est d'augmenter ce paramètre afin qu'il dépasse le seuil de transition entre les régimes Q_{\min} , soit environ 6 ou 7 ml.h^{-1} . Ainsi, le cône de liquide en sortie de buse étant stable, les gouttes produites peuvent être plus lentes et régulières (réflexion abordée au paragraphe § 4.4.4.2.1). Cette suggestion, quoi que paradoxale, est encore à vérifier avec l'expérience (le matériel actuellement utilisé par DBV Technologies ne permettant pas d'augmenter ce paramètre au delà de 4.5 ml.h^{-1}), mais peut le cas échéant se révéler très utile pour la fabrication des patches, en diminuant drastiquement le temps de sprayage requis. La plus grande limite actuellement à une augmentation de débit liquide est la contrainte de production d'un dépôt sec sur le patch. En effet, un Q_l élevé est souvent associé expérimentalement à un dépôt humide. Une étude numérique et expérimentale serait pertinente pour comprendre l'influence de la taille des gouttes sur le dépôt.

6.1.2 Modèles électriques

Dans le chapitre 3, nous proposons deux modèles physiques pour implémenter l'effet électrique dans l'étude, pour modéliser l'écoulement en électro-aérospray. Ces modèles physiques sont déjà construits à partir d'hypothèses plutôt lourdes, afin d'être capable de pouvoir simuler l'interface en utilisant la méthode de champ de phase.

Un modèle alternatif serait de considérer un écoulement à interface nette, et de résoudre pour chacun des fluides des équations différentes (approche conducteur/diélectrique pour le couple liquide/gaz). Cependant, nous avons choisi d'utiliser la méthode de détection d'interface par champ de phase, et utilisons une fonctionnelle ϕ qui décrit cette interface diffuse par son isoniveau $\phi = 0$. Il n'est pas possible de séparer les deux domaines liquide et gazeux et de résoudre différentes équations dans chacun de ceux-ci. Pour cette raison, nous avons proposé deux approches principales pour aborder le problème électrique.

- Diélectrique/Diélectrique, où le champ électrique est calculé *via* l'équation de Maxwell-Gauss, et où il y a plusieurs itérations de calculs. La charge électrique est obtenue en approximant la charge surfacique, donnée par les conditions de passage à l'interface, sur une certaine épaisseur. Cette charge est ensuite réintégré dans l'équation de Maxwell-Gauss, pour vérifier la cohérence physique du champ \vec{E} .
- Conducteur/Conducteur, où le champ électrique est calculé *via* l'équation de conservation du courant. L'équation de Maxwell-Gauss est ensuite utilisée pour obtenir la charge électrique q_v , qui est nécessaire pour implémenter la force de Lorentz $q_v \vec{E}$ dans le modèle.

Dans le chapitre sur le cône de liquide, nous présentons au paragraphe § 4.3.4 les résultats obtenus en simulant le second modèle (conducteur/conducteur). Ces résultats suggèrent que la présence d'électricité permet de développer la taille de la cellule de recirculation s_R . Nous pouvons interpréter l'action de charge électrique à la surface du liquide comme une accélération du liquide à l'intérieur du cône, proche de cette surface. Le débit entraîné Q_r augmente et c'est ce facteur qui permet d'augmenter la taille de recirculation. Ce résultat implique également que la tension pourrait avoir un effet de décalage, ou *shift*, de la ligne de transition entre les régimes Stationnaire Dynamique/Transitoire. À même débit liquide Q_l , nous pouvons nous attendre à ce qu'une augmentation de ΔV déstabilise le cône de liquide. Une étude numérique ou expérimentale supplémentaire est nécessaire pour valider cette conclusion.

6.2 Perspectives

De nombreuses pistes restent encore à explorer pour développer les connaissances de l'électro-aérospray, et trouver une configuration optimale qui permet l'industrialisation de celui-ci. Dans cette partie, nous proposons plusieurs perspectives et travaux ultérieurs, par exemple le traitement des données expérimentales déjà recueillies (§ 6.2.1), l'étude du courant en fonction du débit liquide (§ 6.2.2) ou encore la simulation de la trajectoire des gouttelettes dans le spray (§ 6.2.3).

6.2.1 Traitement des données PDA

Dans ce manuscrit, il y a eu plusieurs mentions des résultats des expériences de Berri (2018), obtenues par vélocimétrie laser. Un traitement supplémentaire des données obtenues peut se révéler tout à fait pertinent, dans le sens où nos travaux ont posé des questions sur le procédé. Dans l'Annexe E, nous abordons plusieurs réponses qu'un traitement simple a apporté, mais beaucoup de résultats peuvent encore être interprétés de ces données.

Par exemple, nous pouvons citer de manière non-exhaustive plusieurs points précis pouvant être étudiés, comme l'évolution temporelle du spray, la vitesse des gouttes en fonction de la période T , ou encore la possibilité d'étude de la charge des gouttes.

Évolution temporelle du spray

Lors des premières expériences avec le dispositif présenté au paragraphe § 3.1.2, nous avons constaté que le spray n'était pas stable dans le temps, et une évolution temporelle (sur un temps de l'ordre de quelques minutes ou heures) était observée sur la période d'oscillation. Nous avons réglé ce phénomène non désiré en mettant en place un protocole d'initialisation strict, qui a permis une répétabilité de l'expérience.

Berri (2018) utilise un autre protocole dans ses travaux. Dans son cas, les mesures par vélocimétrie laser sont effectuées trois fois pour chaque configuration, à quelques minutes d'intervalle. Cela permet d'obtenir trois échantillons, de dix secondes chacun, représentatif du paramétrage étudié. L'auteur argumente que « l'écart-type entre les mesures d'une même configuration était généralement faible (moins de 1-2 %) ». Cependant, une analyse rapide des données brutes expérimentales montrent une variation dans le temps des profils de vitesses des gouttelettes (voir Figure 6.3). Il s'agit d'un point sur lequel il est possible d'améliorer la compréhension, à des fins industrielles, en se demandant quelles sont les propriétés variables, les causes physiques de ces variations, les conséquences sur le procédé et la répétabilité du sprayage pour la fabrication des patches.

Vitesse des gouttes en fonction de la période T

Nous prouvons en Annexe E qu'un phénomène d'oscillation du spray pouvait être remarqué dans certaines configurations. Une étude future possible peut être d'analyser le profil de vitesse axiale le long du spray lors d'une variation du paramètre H (qui induit une variation de T), afin de pouvoir répondre à une question posée dans le Chapitre 4 au paragraphe § 4.4.4.2.1. En effet, à débit liquide Q_l constant, si le cône pulse moins rapidement, on peut s'attendre à ce que les gouttelettes émises aient une taille ou une vitesse plus élevées. Une analyse de plusieurs configurations, en parallèle d'une analyse des temps d'acquisition et du δt , peut se révéler pertinente.

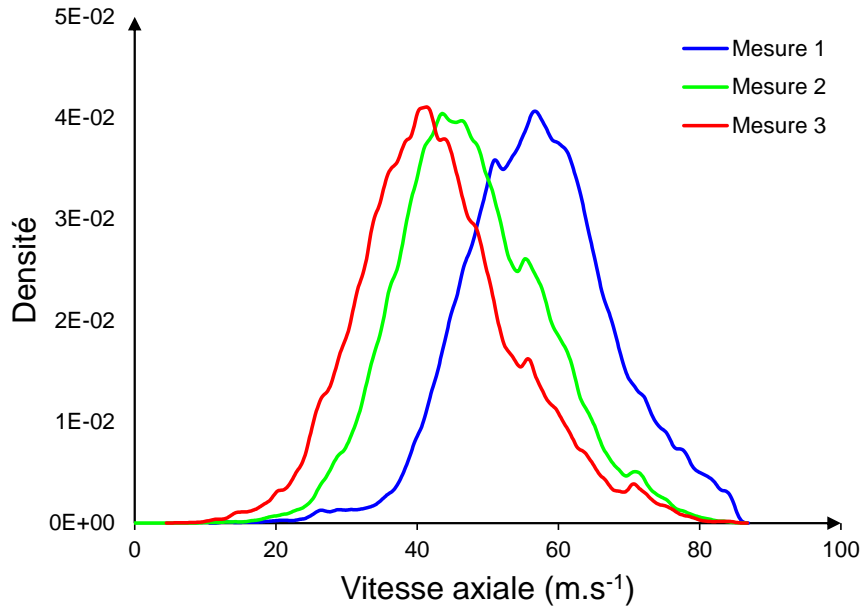


FIGURE 6.3 – Profils des densités de probabilités des vitesses mesurées trois fois à quelques minutes d’intervalle pour la même configuration ($H = 150 \mu\text{m}$, $D_o = 250 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $\Delta P_g = 0.5 \text{ bar}$).

Charge des gouttes

Dans le procédé d’électro-aérospray, la charge des gouttelettes est d’une importance prédominante. Surtout dépendante de la différence de tension buse-éjecteur ΔV et des paramètres géométriques, elle est difficile à contrôler. Elle a un effet notable sur le spray, notamment à cause de la charge volumique d’espace qu’elle engendre et de la force de Lorentz, qui fait que plus les gouttes sont chargées, plus elles vont suivre les lignes de champ électrique.

Pour une distribution standard des tailles des gouttes, il peut être pertinent de s’interroger sur la répartition de la charge totale du spray (approximée à l’aide du courant I et du temps de vol). En effet, il est possible d’effectuer une comparaison avec la charge théorique de Rayleigh (1882) :

$$q_R = 8\pi\sqrt{\gamma\epsilon_0 r_g^3} \quad (6.1)$$

Pour une gouttelette de formulation liquide de $d_g = 12 \mu\text{m}$, cette charge limite vaut environ $q_R \simeq 2.23 \times 10^{-13} \text{ C}$. Il s’agit de la charge maximale théorique que peut supporter une gouttelette avant que les instabilités se développent à sa surface et la fasse se briser en un chapelet de plus petites gouttes.

Si nous simplifions une distribution de tailles de gouttes obtenue en PDA en approximant d_g pour toute la distribution, on obtient que chaque gouttelette est chargée à 73 % de cette charge limite :

$$\frac{q_g}{q_R} = \frac{IV_g}{q_R Q_l} \simeq 73 \% \quad (6.2)$$

où V_g représente le volume de la gouttelette et le courant I est approximé à 150 nA.

Il s’agit d’un résultat étonnamment élevé. En effet, sachant que la charge limite est théorique, en pratique la gouttelette peut se fragmenter en deçà de ce seuil (Shrimpton, 2005), surtout dans un spray où elle est soumise à des forces extérieures qui peuvent également développer certaines oscillations.

L'hypothèse initiale, d'affirmer que toutes les gouttelettes sont chargées uniformément, semble douteuse. Il est donc pertinent de réfléchir à la distribution de la charge, par exemple si la charge d'une gouttelette q_R est proportionnelle à son rayon ($\mathcal{O}(r_g)$), à sa surface ($\mathcal{O}(r_g^2)$), ou son volume ($\mathcal{O}(r_g^3)$).

6.2.2 Courant du spray

Le courant électrique exprime le flux de charge électrique passant dans le spray à chaque instant. La détermination de lois analytiques permettant son calcul a été l'objet de recherches intensives en électrospray (Fernandez de La Mora et Loscertales, 1994; Gañán-Calvo *et al.*, 1997; Hartman, 1998). C'est une variable qui permet de bien caractériser le spray, qui varie selon les propriétés physiques des fluides, mais aussi selon le débit liquide. Il transcrit la charge totale d'espace du spray, l'angle du cône de spray (qui influe par exemple sur le diamètre du dépôt dans notre application). Par exemple, en électrospray, les lois sur qui peuvent en être dérivées, dans le cas d'un liquide conducteur et peu visqueux, sont (Gañán-Calvo *et al.*, 1997) :

$$I \sim Q_l^{1/2} \quad d_j \sim Q_l^{1/3} \quad (6.3)$$

Ces ordres de grandeurs, proposés par Gañán-Calvo *et al.* (1997) (qui varient selon la valeur d'un critère physique), permettent de prédire l'influence du débit liquide sur le courant électrique et le diamètre de jet en électrospray.

Les valeurs expérimentales du courant en électro-aérospray sont inférieures ($\mathcal{O}(10^{-7}$ A)) à celles de l'électrospray ($\mathcal{O}(10^{-6}$ A)). Les perspectives d'études du procédé d'électro-aérospray, surtout d'un point de vue de la modélisation, peuvent consister à comparer les lois analytiques éq. (6.3) et définir si elles peuvent être utilisées pour notre application.

De même, il peut être pertinent d'étudier l'influence du débit liquide Q_l sur le courant I et de voir si, dans le régime transitoire en électro-aérospray, on trouve une allure discontinue de I (similairement à la période d'oscillation τ). Le cas échéant, cela voudrait dire que la calibration de Q_l est encore plus importante, si elle a un effet sur la charge.

6.2.3 Trajectoires des gouttelettes

6.2.3.1 Motivation

Dans le cadre de l'étude de l'électro-aérospray, il est également pertinent d'étudier le spray, et plus particulièrement la trajectoire des gouttelettes et le temps de vol. En effet, il s'agit de la zone spatiale la plus simple à étudier (que ce soit à l'oeil nu ou avec une caméra), étant donné qu'elle n'est pas confinée. Beaucoup de résultats expérimentaux existent sur le spray en électro-aérospray (Gañán-Calvo *et al.*, 2006; Berri, 2018), et tout particulièrement les mesures de tailles et vitesses des gouttes dans différentes zones du spray.

Un autre intérêt de la modélisation des trajectoires des gouttes est de prédire l'allure du dépôt produit. Par exemple, il est possible de définir plusieurs indicateurs de caractérisation du dépôt, comme son diamètre ou la densité surfacique de matière. La simulation peut également être utilisée pour détecter des motifs spécifiques de dépôts, par exemple des anneaux.

La Figure 6.4 illustre le résultat obtenu avec une première étude de suivi de particules. Plusieurs approximations, nécessaires à la modélisation, ont été effectuées, mais l'objectif de travaux futurs serait d'implémenter un modèle le plus réaliste possible.

Dans cette première étude, nous avons implémenté le spray sous la forme d'un couplage faible. Dans un premier temps, nous effectuons le calcul du champ électrique entre la chambre (non représentée sur la figure) et la cible (surface bleue). Ensuite, nous calculons la trajectoire

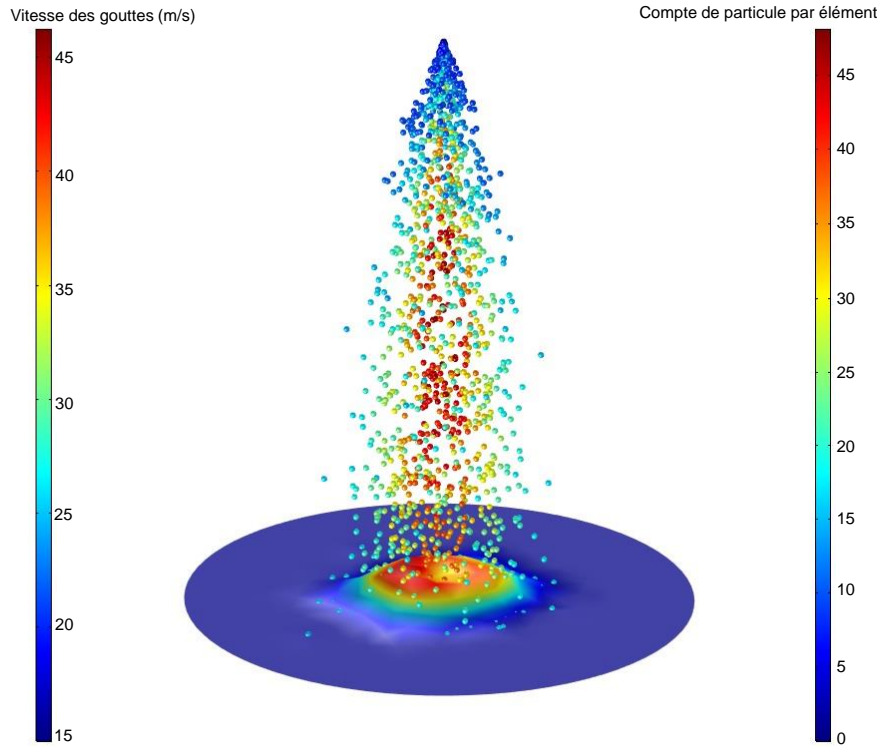


FIGURE 6.4 – Spray et dépôt simulés à l’aide d’un premier modèle. $r_g = 6 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $Q_g = 0.42 \text{ L.min}^{-1}$, $V_e = 6 \text{ kV}$, $d_{e-d} = 45 \text{ mm}$, $I = 100 \text{ nA}$. La direction du gaz est défini analytiquement par un cône d’angle 35° , et les gouttelettes ont une vitesse initiale dans un cône d’angle 25° . La cible (surface bleue) a un diamètre de 40 mm .

temporelle des particules soumises à plusieurs forces :

$$m_g \vec{a} = \underbrace{m_g \vec{g}}_{\text{Pesanteur}} + \underbrace{q_g \vec{E}}_{\text{Lorentz}} + \underbrace{6\pi\mu_g r_g (\vec{v}_g - \vec{v})}_{\text{Frottements fluides}} \quad (6.4)$$

Nous présentons au paragraphe suivant une liste non-exhaustive d’améliorations possibles du modèle.

6.2.3.2 Pistes d’études

Plusieurs pistes d’améliorations peuvent être développées dans le cadre de ce modèle :

- Améliorer le champ de vitesse de gaz, soit de manière analytique, soit en couplant l’étude du suivi de particules à une étude monophasique du gaz en sortie de chambre.
- Évaluer l’impact des oscillations du cône sur le spray. En effet, cela pourrait permettre d’observer l’influence de τ sur le spray et le dépôt formé par les gouttes
- Introduire la notion de rebond dans le modèle. Dans les travaux de Berri (2018), on remarque sur quelques dépôts une forme de couronne (dépôt secondaire) autour du dépôt principal. Cela pourrait permettre d’analyser l’impact de la vitesse du gaz sur le lieu d’arrivée définitif des gouttelettes
- Établir une loi comportementale sur l’évaporation des gouttes dans le spray, en prenant en compte le gradient de température entre le substrat et la chambre.

- Mieux quantifier la charge des gouttelettes et l'effet de la charge d'espace sur le spray total, soit en appliquant la loi de répulsion de Coulomb sur chacune des particules, soit en créant un champ électrique modifié par une charge d'espace globale (et en utilisant le principe de superposition).
- Étudier la fréquence d'occurrence de la fission de Coulomb (la fragmentation d'une goutte trop chargée) et l'aspect comportemental du spray en présence de cette instabilité.
- Introduire la notion de dispersion de la distribution de taille des gouttelettes, pour se rapprocher plus de la réalité et ainsi pouvoir étudier plus finement les trajectoires des gouttes plus petites et plus grandes que la moyenne.

6.3 Synthèse des travaux

La production de patchs pharmaceutiques par spray est une solution de fabrication efficace pour déposer le principe actif. Actuellement, le procédé industriel utilisé est l'électrospray, qui utilise de la haute tension pour atomiser les gouttelettes. À DBV Technologies, cette technique a été développée depuis une dizaine d'années sur des machines de production de tests ou cliniques, et vient d'être récemment implémentée sur une machine commerciale (dont les patchs produits sont destinés à la vente). Fonctionnel pour la production du patch Viaskin® Peanut, l'électrospray est soumis à des contraintes pour la production du patch Viaskin® Milk. En effet, la conductivité électrique de la formulation liquide contenant les protéines de lait est environ cinq fois plus élevée que la formulation destinée à produire les patchs anti-allergie aux arachides. Pour rester dans un mode de l'électrospray stable, une des solutions est de réduire le débit liquide de sprayage Q_l . Cette solution représente industriellement un recul en terme d'efficacité et de rendement.

Pour cette raison, il a été suggéré de compenser une partie de l'énergie électrique par une énergie pneumatique afin de diminuer la dépendance du procédé aux propriétés du liquide. Il s'agit d'une suggestion fondée sur les résultats de Gañán-Calvo *et al.* (2006), qui décrit la technique d'*electro-flow focusing* ainsi que ses avantages par rapport aux techniques de *flow focusing* et d'*electrospray*. C'est cette technique qui a donné son nom à l'électro-aérospray, le procédé étudié dans le cadre de cette thèse.

L'objectif des travaux de thèse était d'étudier le procédé d'électro-aérospray *via* la modélisation et la simulation numérique, afin de développer les connaissances sur ce sujet. Ces travaux ont été effectués de manière complémentaire à la thèse expérimentale de Berri (2018).

Après avoir décrit le contexte dans lequel se situait l'étude de ce procédé de fabrication d'un médicament pour le traitement des allergies alimentaires, dans l'industrie pharmaceutique (chapitre d'Introduction), nous avons effectué une revue bibliographique sur les différents phénomènes étudiés dans le cône, le jet, et le spray (chapitre 2). Les applications des différents procédés cités ci-dessus ainsi que les différentes méthodes de caractérisation existantes ont été expliquées. Nous avons décomposé l'étude de ces procédés de type cône-jet en fonction de la longueur caractéristique de chaque zone spatiale d'écoulement.

Dans le chapitre 3, nous avons présenté les différents outils expérimentaux et numériques utilisés dans cette étude. Plus particulièrement, nous avons développé une chambre spécifique permettant une observation optimale du cône de liquide en aérospray. Un protocole précis a été établi, comportant des critères de tolérances strictes d'initialisation afin d'assurer la reproductibilité de l'expérience. Par la suite, nous avons détaillé les nombres adimensionnels permettant de caractériser les écoulements fluides. La modélisation du cône de liquide est effectuée en utilisant une méthode de champ de phase, qui fait partie des méthodes diphasiques à interfaces diffuses. Deux approches ont été proposées pour l'ajout d'une composante électrique dans ce modèle. Le détail des paramètres numériques est ensuite abordé, et notamment le maillage de discrétisation de domaine, ainsi que les solveurs utilisés. Nous abordons ensuite la problématique de la modélisation du jet liquide, pour prédire la rupture de celui-ci et ainsi être capable de prévoir les tailles des gouttelettes produites. En conclusion de ce chapitre, nous parlons de l'implémentation logicielle et physique des modèles.

Le chapitre 4 est consacré à la présentation de la première partie des résultats obtenus dans ce travail de thèse. En guise de préliminaires, les différents indicateurs permettant de caractériser les différents régimes sont définis, et les études numériques portant sur les paramètres du modèle permettent de valider l'approche pour ceux-ci. Nous examinons ensuite l'écoulement du cône de liquide en aérospray, dans le régime stationnaire dynamique. La dépendance de la cellule de recirculation aux paramètres géométriques et fluidiques est étudiée. Nous confrontons avec

succès les résultats des simulations, notamment l'influence du débit liquide, avec les résultats de la littérature analytiques (Montanero *et al.*, 2011) et numériques (Herrada *et al.*, 2008). L'effet de la pression de gaz appliquée dans la chambre est caractérisée. Notre étude permet également de faire le lien avec le chapitre suivant et de calculer l'ordre de grandeur du diamètre de jet liquide en sortie de l'éjecteur. L'influence de la différence de potentiel buse-éjecteur ΔV est également explorée, en utilisant le premier modèle proposé. Nous montrons que l'ajout d'électricité augmente la taille de la cellule de recirculation, résultat en accord avec la réflexion proposée. Dans la suite du chapitre, nous abordons les phénomènes présents quand le cône est pulsé : le régime transitoire de l'aérospray. Nous définissons les oscillations capillaires du ménisque lors d'une pulsation, et analysons son effet sur la période τ . Nous proposons un modèle de prédiction du nombre d'oscillations capillaires n_o en fonction du nombre de Reynolds de l'écoulement liquide Re_l . La dernière partie du chapitre aborde plusieurs problématiques générales, et plus particulièrement celle de la ligne de transition entre les deux régimes Stationnaire Dynamique/Transitoire. Nous montrons que les paramètres géométriques identifiés ont une importance particulière sur cette transition.

Les modèles développés pour la simulation de la fragmentation du jet liquide en aérospray et électro-aérospray sont présentés au chapitre 5. Premièrement, nous expliquons les différents choix effectués, notamment sur les repères d'études choisis. Les simulations de deux modèles, un en référentiel mobile et le second en référentiel local, sont en excellente corrélation avec la théorie de Rayleigh (1879) dans le cas sans contrainte. Nous simulons ensuite l'ajout d'une contrainte de gaz qui permet de conclure que le coefficient de Rayleigh $r_g/r_j = 1.89$ constitue une approximation valable dans l'étude de l'aérospray pour une pression de gaz $\Delta P_g < 0.5$ bar. L'effet de l'électricité est également exploré dans la dernière partie du chapitre, et nous observons que l'ajout d'un potentiel électrique à la surface du jet (en plus d'une pression de gaz) ne semble pas avoir un effet notable sur la valeur du coefficient r_g/r_j .

Au regard des différentes études numériques effectuées, nous pouvons proposer une solution industrielle, où tout du moins une étude expérimentale à effectuer pour trouver la configuration optimale (en reprenant des valeurs non adimensionnées) :

- Diamètre de l'éjecteur : nous avons exploré $D_o = 200 \mu\text{m}$. Les prochains résultats géométriques sont relatifs à cette valeur. De manière générale, il faut choisir D_o pour que la pression dans la zone autour du cône de liquide soit homogène, et en accord avec les méthodes d'usinages.
- Diamètre intérieur de la buse $D_i = 200 \mu\text{m}$. C'est une valeur :
 - Assez grande pour éviter un mouillage sur la surface inférieure de la buse, et donc limite l'influence de l'état de surface de celle-ci ;
 - Assez faible pour permettre une stabilité du cône (faible taille de recirculation s_R et temps caractéristique de l'oscillation capillaire t_c).
- Hauteur buse-éjecteur $H \in [150 \mu\text{m}, 200 \mu\text{m}]$. Ce paramètre, critique, est également l'un des plus difficiles à maîtriser expérimentalement. La gamme de valeurs proposées pour H correspond aux attentes industrielles :
 - Elle permet de rester dans un régime de *electro-flow focusing*, laminaire ;
 - C'est celle qui assure la plus grande stabilité du cône de liquide.
- Débit liquide $Q_l \in [5, 7 \text{ ml.h}^{-1}]$. Notre étude montre en effet que la valeur annoncée de 3 ml.h^{-1} est trop faible pour permettre au spray d'être stable (le cône de liquide oscille et produit des paquets de gouttes). La proposition faite, dans la continuité des travaux de modélisation, est d'augmenter Q_l afin d'atteindre le régime Stationnaire Dynamique, qui permet une production plus régulière de gouttelettes, *a priori* de taille équivalente.

- Différence de pression entre la chambre et l'extérieur $\Delta P_g = 0.3$ bar. Le rôle du gaz dans l'électro-aérospray est principalement de contraindre le cône de liquide et de former un jet fin. Une pression trop élevée peut perturber la stabilité de l'écoulement du cône (en sortie de buse), accélérer les gouttelettes émises, et éloigner celles-ci de la cible (le flux de gaz à trop haute vitesse vient s'écraser sur la surface plate et transporte les gouttelettes encore en vol). Une pression trop faible, au contraire, n'est pas suffisante pour former le cône de liquide en sortie de buse.
- Différence de potentiel buse-éjecteur $\Delta V \in [300, 400 \text{ V}]$. Les résultats de nos travaux ne suggèrent pas d'influence notable de ce paramètre en ce qui concerne la formation du cône. Nous proposons donc une valeur qui correspond au champ électrique préconisé par Berri (2018).

Annexes

Annexe A

Outils de traitement d'image

A.1 Démonstration de la mesure de hauteur utilisée

Lorsque l'on réalise un schéma simplifié de l'observation du cône (voir Figure A.1 gauche), on arrive très simplement à démontrer par trigonométrie les trois formules suivantes :

$$\begin{cases} \sin \alpha_1 = \frac{H_{\text{obs}}}{\sqrt{H^2 + R^2}} \\ \alpha_{\text{obs}} = \alpha_1 + \alpha_2 \\ \cos \alpha_2 = \frac{H}{\sqrt{H^2 + R^2}} \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

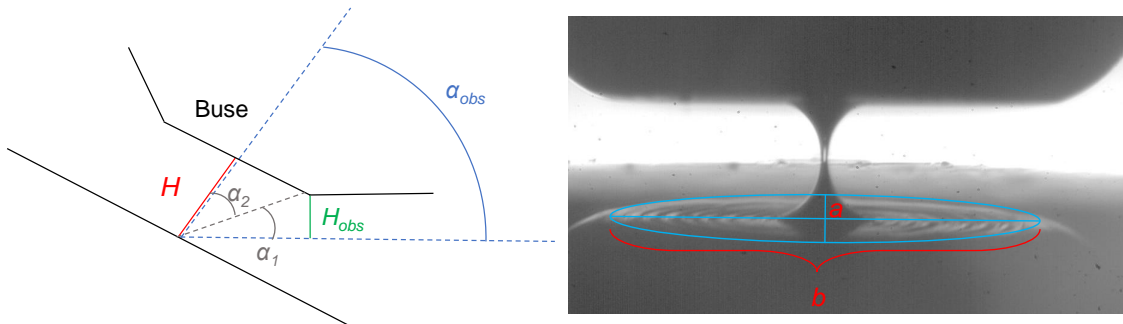


FIGURE A.1 – (Gauche) Schéma explicatif de la mesure de H ; (Droite) Observation de la réflexion de la buse.

Cependant, afin de pouvoir utiliser ces formules, il est nécessaire de prendre une longueur de référence. Cette référence provient de la réflexion de la buse sur l'éjecteur (voir Figure A.1 droite). On observe bien la réflexion d'un objet de taille connue. L'hypothèse consiste à dire que la longueur b est invariante selon l'angle d'observation (si celle-ci est bien réalisée perpendiculairement à la buse). Sous cette supposition, on peut écrire :

$$\cos \alpha_{\text{obs}} = \frac{a}{b} \quad (\text{A.2})$$

En utilisant cette propriété A.2 dans le système A.1 ci-dessus, on obtient une équation de polynôme du second degré. L'analyse de ce polynôme permet de trouver sa racine H^* , correspondant à la hauteur réelle entre la buse et l'éjecteur.

$$H^2(1 - x) - 2HH_{\text{obs}}\sqrt{1 - x} + H_{\text{obs}}^2(1 + 2x) - R^2x = 0 \quad (\text{A.3})$$

En notant $x = (a/b)^2$.

A.2 Correction gamma

Les différentes corrections appliquées à une image peuvent être expliquées à l'aide des diagrammes LUT (Look Up Table ou table de conversion). Ce type de graphique permet de convertir la valeur du pixel brute en une valeur qui sera affichée en sortie de la correction. Dans le cas d'un affichage sans traitement après l'acquisition, la courbe violette représentée Figure A.2.

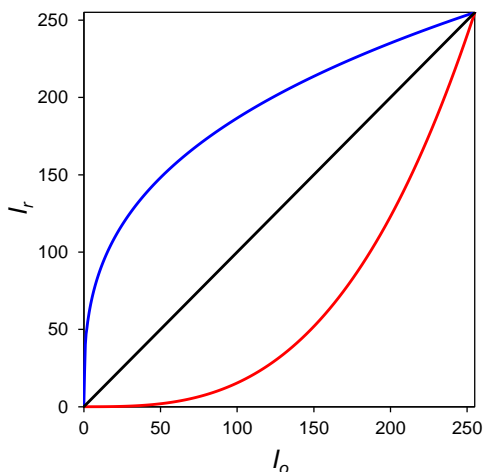


FIGURE A.2 – Représentation des différents types de fonctions gamma et de la fonction identité. Pour les courbes bleue, noire et rouge, γ vaut respectivement $1/3$, 1 et 3 .

La correction gamma consiste à appliquer une distorsion délibérée des valeurs de pixels à l'image obtenue. Elle permet de corriger la non-linéarité du capteur en répartissant l'échelle pour augmenter les nuances. Elle peut être effectuée aussi bien pour étaler les niveaux sombres ou les niveaux clairs. L'évolution de l'intensité affichée n'est plus linéaire avec celle mesurée. La sensibilité aux faibles variations d'intensité peut être diminuée ce qui va réduire la présence de bruit dans notre image si les plages de valeurs correspondantes sont resserrées. Il faut cependant être prudent, si la mauvaise plage de valeurs est étalée, le bruit peut être amplifié. On peut également à l'aide de cette correction augmenter le contraste dans certaines plages de valeurs de pixels sans toutefois perdre de détails.

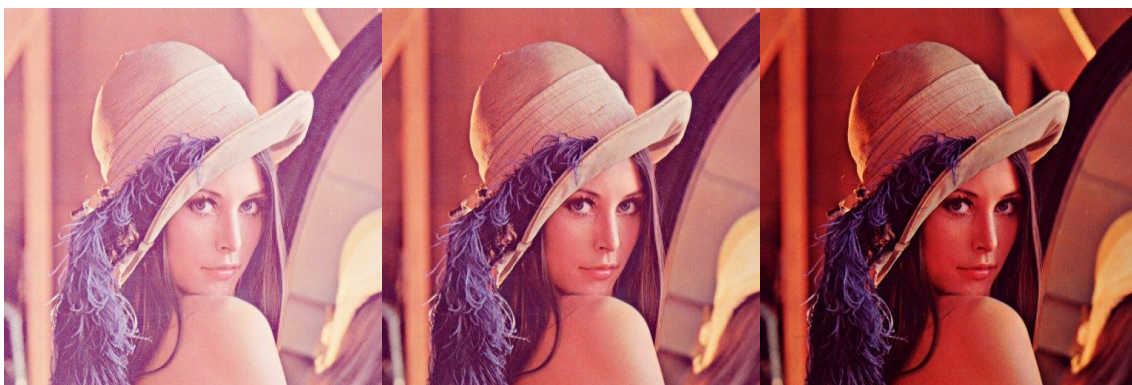


FIGURE A.3 – Exemple de correction gamma (de gauche à droite : $\gamma < 1$, $\gamma = 1$, $\gamma > 1$).

Avec une correction gamma qui est une transformation de LUT non linéaire, le type de courbes présentées Figure A.2 sont observées. Les deux types de corrections gammas sont présentées. La

correction présentée par la courbe rouge conduit à un étalement des niveaux clairs de l'image et un rétrécissement des niveaux foncés alors que la transformation présentée par la courbe bleue étale les niveaux foncés et regroupe les valeurs claires.

Ces transformations permettent d'améliorer la vision de détails pour une certaine plage de niveaux de gris (foncés ou clairs) mais perdent en contrepartie des détails dans une autre plage. La relation entre les intensités est décrite de la façon suivante :

$$I_r = k \times 255 \left(\frac{I_o}{255} \right)^\gamma \quad (\text{A.4})$$

où k est une constante de gain et γ est le coefficient caractéristique de la transformation (toujours positif). Si $\gamma > 1$, une évolution similaire à la courbe rouge est obtenue. Si $0 < \gamma < 1$, l'évolution sera du même type que la courbe bleue.

Sur la Figure A.3, l'image originale est présentée au centre. L'image à gauche a été corrigée avec un $\gamma > 1$ (courbe rouge). On observe bien un assombrissement de l'image et une perte de détails dans les zones sombres de l'image. L'image de droite, quant à elle, a subi une correction avec $\gamma < 1$ (courbe bleue). On observe un étalement des niveaux sombres de l'image. C'est pourquoi on distingue mieux les détails de l'image.

A.3 Présentation de la fonction *Reslice*

La mesure des périodes d'oscillation est fondée sur une fonction du logiciel de traitement d'image utilisé : la fonction *Reslice* d'IMAGEJ. Cette fonction permet de tracer l'évolution des valeurs d'une ligne sélectionnée le long d'une pile d'image. On définit donc une ligne (x_1, x_2) sur l'image, et l'application de cette fonction à une pile de N images produit en résultat une matrice $(x_1, x_2) \times (1, N)$.

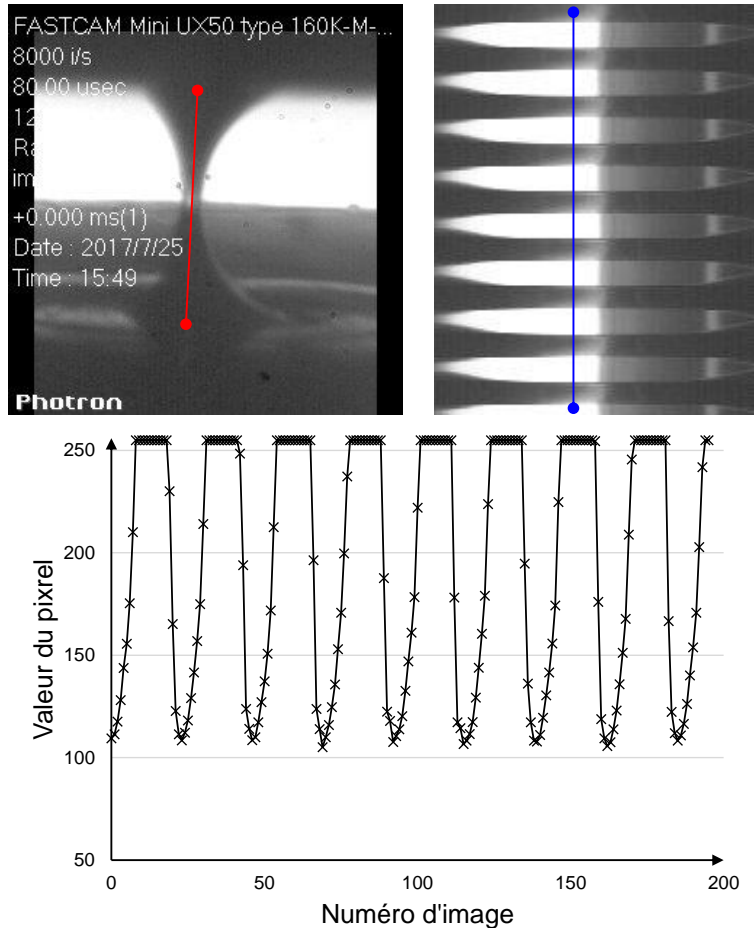


FIGURE A.4 – (Haut, gauche) Image classique du cône et segment (x_1, x_2) d'application du *Reslice* (en rouge). (Haut, droite) Image obtenue après cette fonction et segment où le profil est tracé (en bleu). (Bas) Évolution d'un pixel au fur et à mesure du temps.

La Figure A.4 (haut) illustre le fonctionnement de *Reslice*. Chaque ligne de cette nouvelle image correspond au tracé du segment sélectionné. Cette nouvelle image représente l'évolution des valeurs du pixel du segment au cours du temps. On observe, par exemple, plusieurs périodes d'oscillation du cône durant le temps de la vidéo (les bandes noires correspondent à la présence du jet de liquide).

Il est alors possible d'obtenir le profil des valeurs de pixel de cette nouvelle image, ce qui revient à étudier l'évolution temporelle d'un pixel (Figure A.4, bas). On exporte ensuite automatiquement ce graphe en format approprié, pour traitement par la macro écrite en VBA-Excel.

Annexe B

Études préliminaires aux expériences

B.1 Équivalence débit-pression de gaz dans le dispositif expérimental

Dans cette partie d'annexe, nous effectuons l'analogie entre les différentes variables p , u_g , Q_g en utilisant le théorème de Bernoulli pour l'écoulement incompressible d'un fluide parfait.

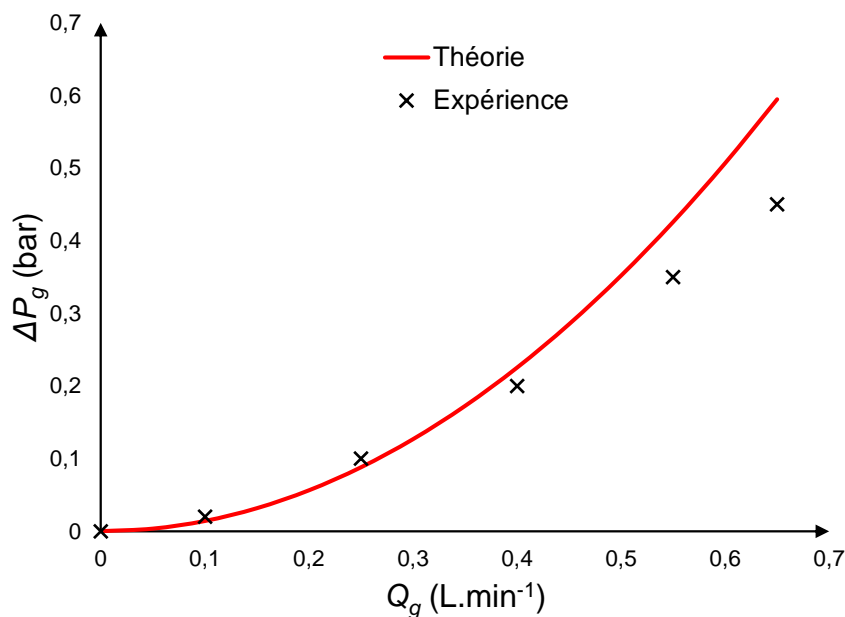


FIGURE B.1 – Graphe du couple débit Q_g /pression ΔP_g de gaz observé, pour $D_o = 200 \mu\text{m}$. La courbe rouge représente la pression théorique donnée par la relation (B.3).

Pour rappel, les hypothèses sont que la masse volumique du fluide est constante, que les effets visqueux sont négligeables et que l'on néglige les pertes de charges. L'application de ce théorème consiste à choisir deux points 1 et 2 :

1. Point dans la chambre pressurisée, où l'on suppose $u_1 \simeq 0$ et $p_1 = p_{\text{atm}} + \Delta P_g$;
2. Point à la sortie de l'éjecteur, où l'on suppose $u_2 = u_g$ et $p_2 = p_{\text{atm}}$

puis à utiliser la conservation d'énergie le long de l'écoulement (on néglige l'effet de la gravité) :

$$\frac{1}{2}\rho_g u_1^2 + p_1 = \frac{1}{2}\rho_g u_2^2 + p_2 + \Delta h \quad (\text{B.1})$$

où u est la vitesse moyenne du gaz en chaque point et Δh les pertes de charges de l'écoulement (qui sont généralement négligées) (Gañán-Calvo, 1998; Herrada *et al.*, 2008).

Cette relation est très pratique dans l'étude théorique et analytique du flow focusing, et souvent utilisée. Cependant, elle se fonde sur plusieurs approximations et est moins usitée pour un réglage fin des paramètres expérimental. En général, l'entrée en gaz est contrôlée en débit volumique Q_g (exprimé par exemple en L/min) (Herrada *et al.*, 2008; Vega *et al.*, 2010). Ainsi, on obtient la relation de Q_g avec le diamètre D_o de l'orifice dans le trou de l'éjecteur :

$$Q_g \simeq \frac{\pi}{4} D_o^2 u_g \quad (\text{B.2})$$

Ce qui permet d'obtenir en combinant les équations (B.1) et (B.2) :

$$\Delta P_g = \frac{8\rho Q_g^2}{\pi^2 D_o^4} \quad (\text{B.3})$$

On peut donc obtenir une équation reliant Q_g et ΔP_g (éq. (B.3)), que l'on peut confronter aux résultats expérimentaux préliminaires (voir Figure B.1).

B.2 Influence du positionnement de l'arrivée de gaz

Nous avons développé le dispositif d'aérospray utilisé dans les expériences, en s'inspirant de l'exemple du matériel de Berri (2018). Pour s'assurer de l'indépendance du flux de gaz dans l'éjecteur par rapport au positionnement de l'arrivée de gaz dans la chambre, nous avons effectué une étude de l'écoulement du gaz dans la chambre pressurisée *via* la simulation numérique.

La Figure B.2 illustre la géométrie utilisée dans cette étude. À gauche, la géométrie du plan original et la zone d'intérêt. À droite, les géométries simplifiées dessinées et où le mouvement fluide est étudié. Dans ces simulations, la présence de la buse est prise en compte (voir les images à droite).

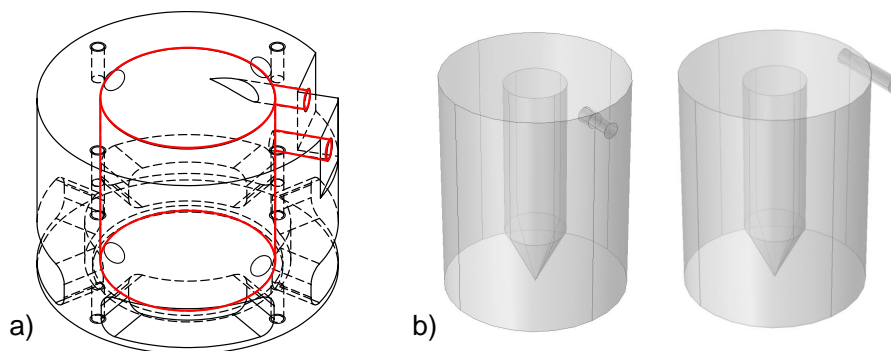


FIGURE B.2 – a) Plan du corps de la chambre (noir) et contours du volume où l'air est présent (rouge) ; b) Géométries simplifiées dans les deux configurations d'entrée de gaz.

Le système d'équations de Navier-Stokes est résolu sur l'ensemble du domaine. La pression de gaz est fixée en entrée à 0.2 bar dans ce modèle, et à 0 bar en sortie (pressions relatives), à la sortie de l'éjecteur. Une condition de non-glissement $\vec{u} = 0$ est appliquée sur les autres frontières. Le gaz utilisé dans ces simulations est de l'air ($\rho_g = 1.225 \text{ kg.m}^{-3}$, $\mu_g = 1 \times 10^{-5} \text{ Pa.s}$).

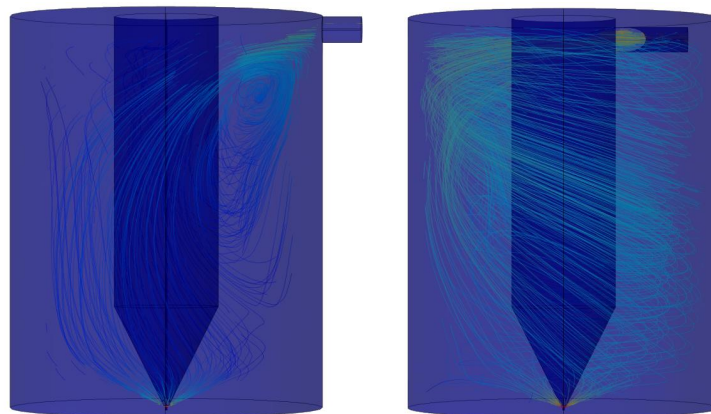


FIGURE B.3 – Résultats des simulations numériques. Le positionnement de l'arrivée de gaz est radial à gauche, et orthoradial à droite. Les couleurs des lignes d'écoulement sont en échelle logarithmique entre le minimum et le maximum.

Nous observons à la Figure B.3 les deux allures de trajectoires du gaz dans chaque configuration. Il est possible de constater que l'entrée radiale fait prendre au gaz une trajectoire qui contourne la buse, et fait apparaître une zone de recirculation (stagnation). L'entrée tangentielle fait tourner le gaz autour de la buse dans la chambre.

Afin de comparer plus précisément l'impact du choix de l'entrée de gaz sur l'écoulement au niveau de l'éjecteur, nous traçons Figure B.4 la vitesse axiale (adimensionnée par rapport à $V_0 = \sqrt{2\Delta P_g/\rho_g}$) en fonction de la coordonnée y (adimensionnée par rapport au rayon de l'orifice de l'éjecteur, ici noté $R = D_o/2$).

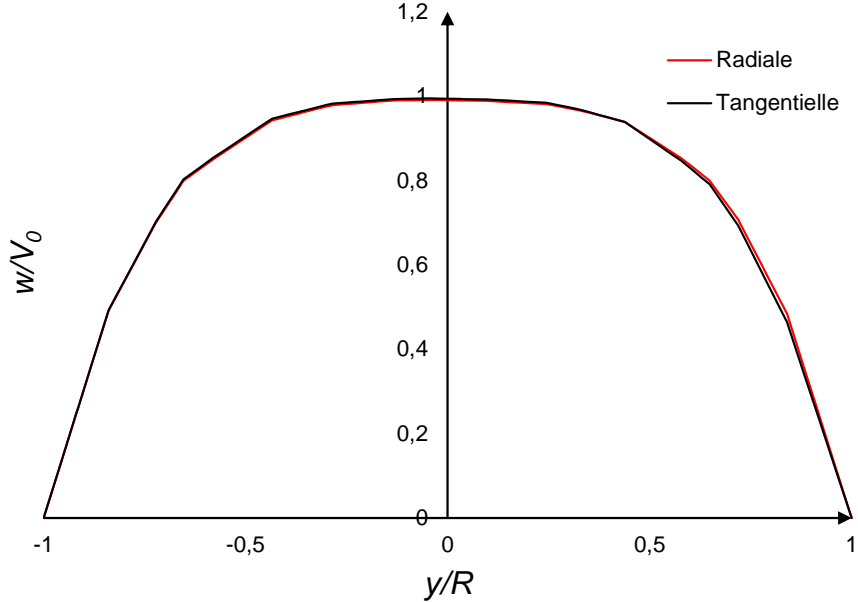


FIGURE B.4 – Profil de la vitesse axiale adimensionnée dans les deux cas étudiés.

Nous constatons qu'il n'y a pas de différence significative entre les deux configurations. Ce résultat permet de valider l'hypothèse d'indépendance de l'écoulement de gaz au voisinage du cône de liquide par rapport à la configuration d'entrée de gaz dans la chambre.

Il est possible de comparer ce résultat avec les résultats numériques et expérimentaux de Herrada *et al.* (2011) et Hsiao *et al.* (2015). En particulier, Herrada *et al.* (2011) étudient l'influence du *swirl*, défini à l'aide du paramètre S :

$$S = \frac{u_\theta}{u_z} \quad (\text{B.4})$$

Dans leurs travaux, ils prouvent que l'utilisation de swirl en flow focusing pouvait conduire à la formation de deux cellules de recirculation dans le cône de liquide. De même, ils montrent numériquement que S a un effet sur la stabilité du cône. Cependant, ils font varier ce paramètre S tout en gardant constante la vitesse totale $||\vec{U}||$. En pratique, ils diminuent ce faisant la vitesse axiale u_z , qui est prédominante dans l'action du gaz sur la surface du cône de liquide.

B.3 Analyse sonore du spray

Dans l'optique de détecter par différentes méthodes l'oscillation du spray dans le procédé d'aérospray en régime Transitoire, nous avons développé une méthode d'analyse sonore pour caractériser des oscillations, avant d'utiliser la caméra rapide. Cette méthode, bien qu'efficace ponctuellement, n'est pas adaptée à une automatisation expérimentale pour étudier l'influence des paramètres physiques sur le cône de liquide. Pour cette raison, nous utilisons dans ce manuscrit les résultats obtenus avec l'utilisation de la caméra rapide.

L'enregistrement est effectué avec un microphone de téléphone, de marque Samsung et de modèle Galaxy A5 (2017). Le son était enregistré en stéréo, à 48 kHz. Le format du fichier généré est .m4a, converti par la suite en .wav et traité avec le logiciel Audacity¹.

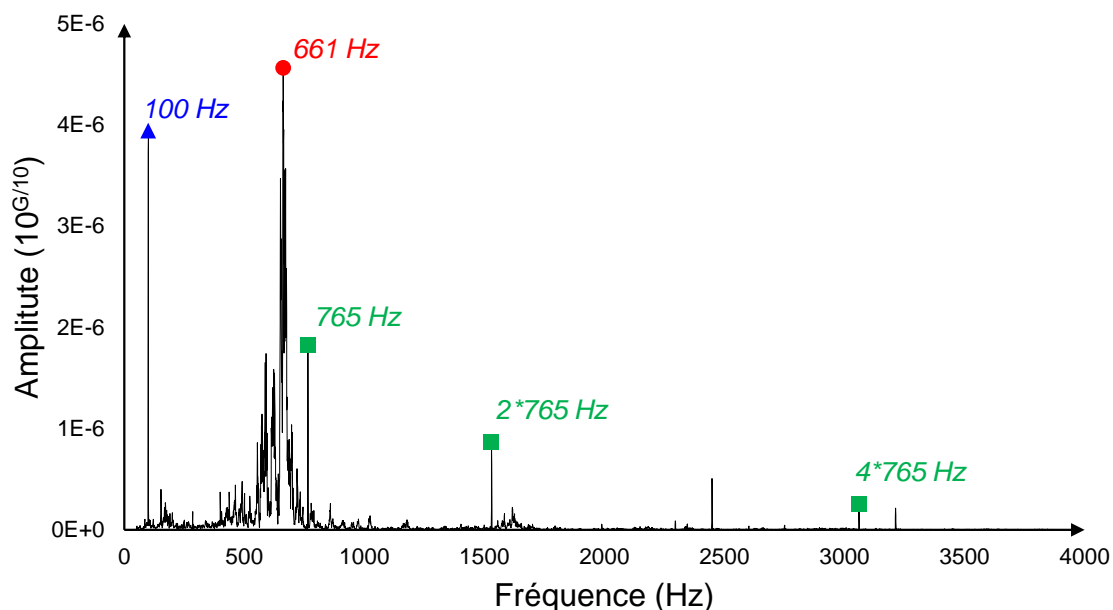


FIGURE B.5 – Spectre sonore enregistré en plaçant le micro au niveau du spray.

Le logiciel Audacity permet une analyse en fréquence du signal sonore. Le gain G (en dB) est exporté en .csv. La Figure B.5 présente un spectre fréquentiel typique obtenu lors des expériences. En ordonnée est tracée l'amplitude A du signal, obtenue avec la formule :

$$A = 10^{G/10} \quad (\text{B.5})$$

Il est possible de distinguer plusieurs fréquences particulières. Le but de notre étude est d'identifier ces valeurs remarquables, et de filtrer les fréquences provenant d'autres phénomènes que l'oscillation du spray.

Un enregistrement séparé des différents bruits de fond nous a permis d'isoler certaines valeurs de fréquences étant indépendantes du spray :

- La fréquence de 100 Hz est caractéristique de l'air ambiant (climatisation, débitmètre).
- La fréquence de 765 Hz, remarquable avec ses harmoniques sur la Figure B.5, provient du ventilateur de la caméra rapide.

1. <https://www.audacityteam.org/>

Ainsi, dans le cas présenté Figure B.5, la fréquence sonore la plus élevée, de 661 Hz, n'est observée qu'en présence du spray dans ce cas précis. Nous concluons qu'il s'agit bien d'un phénomène de son produit par le spray lors de l'oscillation du cône (et la pulsation du spray). De plus, cette fréquence correspond à une période $T = 1.51$ ms, valeur cohérente avec l'ordre de grandeur typique des périodes d'oscillation en régime transitoire.

Cette méthode d'analyse sonore du spray, bien qu'*a priori* efficace sur les tests effectués, n'est pas utilisée pour l'obtention des résultats présentés dans le chapitre 4. Plusieurs raisons motivent ce refus : l'aspect pratique, étant donné la présence d'étapes multi-plateformes (conversion + traitement du signal + tracé de l'amplitude) qui rendent difficile l'automatisation des tâches pour effectuer plusieurs traitements à la suite. De plus, le matériel utilisé, de qualité amateur (un téléphone portable n'est pas un matériel d'enregistrement professionnel), n'assure pas de conserver l'intégrité des données recueillies (traitement particulier, etc). Enfin, l'analyse sonore dans notre cas requiert de prendre du recul : notre étude n'a pas permis de déterminer la provenance de certaines fréquences (par exemple la fréquence remarquable aux environs de 2 500 Hz sur la Figure B.5).

Annexe C

Champ de phase

C.1 Équation de Cahn-Hilliard

Dans les procédés étudiés d'aérospray et d'électro-aérospray, l'intérêt est porté sur le comportement du liquide : comment les gouttes sont produites, à quelle vitesse et fréquence. Dans les niveaux d'écoulement considérés (cône et jet), le flux de gaz a une importance de premier ordre. En effet, c'est l'action du gaz qui permet de faire converger une goutte de liquide en un jet liquide, et contribue à la rupture de ce dernier.

Pour cette raison, les modèles développés tiennent compte de la présence des deux fluides liquide/gaz, et de leurs interactions à l'interface.

La longueur caractéristique de l'écoulement varie entre $l_h = 10^{-4}$ mètres (pour le cône de liquide en sortie de buse) et $l_h = 10^{-5}$ mètres (pour le jet et les gouttes). Au niveau moléculaire, l'interface peut se décrire comme une transition dont la taille caractéristique est $l_m = 10^{-9}$ mètres. Il existe donc un ratio d'environ $l_h/l_m \sim 10^5$ entre ces deux échelles, ce qui peut permettre de considérer un modèle mathématique de surface de discontinuité. Il s'agit d'une hypothèse commune en mécanique des fluides diphasiques.

Cependant, ce type de modèle à interface nette est souvent difficile à implémenter numériquement. En particulier, les conditions limites d'interface peuvent être singulières (Jamet, 2010). Pour cette raison, les méthodes à interface diffuse sont numériquement attractives. On peut citer les méthodes considérant une interface d'une largeur non nulle ϵ , fondées sur la théorie de van der Waals (1894a,b). Dans ces modèles ayant pour origines des lois thermodynamiques, les équations générales d'équilibres tiennent en compte des échanges d'énergie entre les deux phases d'une même espèce chimique à travers l'interface.

Cahn et Hilliard (1958, 1959) étendent ce dernier modèle au cas où les fluides considérés ne sont pas de la même espèce ou immiscibles (il n'y a pas de transfert de masse entre les phases). Dans notre étude de l'aérospray et d'électro-aérospray, nous nous situons dans ce cas de figure, et utilisons cette méthode de champ de phase (Phase Field).

Cette méthode utilise une fonction de phase $\phi : \Omega \rightarrow [-1, 1]$ qui décrit le milieu local en tout point du domaine.

L'idée ensuite, afin de coupler cette capture d'interface avec l'écoulement fluide, est de transporter cette variable ϕ à la vitesse \vec{u} des fluides. Dans une méthode classique, on utilise une équation de transport simple :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla \phi = s \quad (\text{C.1})$$

où s est une source de diffusion (gradient du potentiel chimique par la suite).

Nous utilisons ici une équation fondée sur les travaux de Cahn et Hilliard (1958, 1959), qui suppose que le flux massique est équivalent au potentiel chimique. Elle permet de traiter

efficacement des écoulements, notamment microfluidiques. En considérant l'énergie de mixage :

$$f_{\text{mix}}(\phi, \nabla\phi) = \frac{1}{2}\lambda|\nabla\phi|^2 + f_0(\phi) \quad (\text{C.2})$$

où λ est l'amplitude de cette énergie et f_0 une énergie du volume de liquide (usuellement une fonction double puit $f_0(\phi) = \lambda(\phi^2 - 1)^2/4\epsilon^2$). On écrit ensuite l'équation de Cahn-Hilliard (évolution de ϕ en supposant que le flux massique est proportionnel au gradient du potentiel chimique) (Yue *et al.*, 2004) :

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla\phi = \nabla \cdot \left[\Gamma \nabla \left(\frac{\delta f_{\text{mix}}}{\delta\phi} \right) \right] \quad (\text{C.3})$$

ou encore, en notant $\Gamma = \chi\epsilon^2$:

$$\frac{\partial\phi}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla\phi = \chi\epsilon^2\lambda\nabla^2 \left[-\nabla^2\phi + \frac{\phi(\phi^2 - 1)}{\epsilon^2} \right] \quad (\text{C.4})$$

L'optimisation du couplet de variables (χ, ϵ) est développée en annexe C.2.

C.2 Paramétrage numérique du champ de phase

Nous définissons une fonction $\phi : [0, 100] \rightarrow [-1, 1]$, initialement définie comme :

$$\begin{cases} x \in [0, 20] & \mapsto -1 \\ x \in [20, 100] & \mapsto 1 \end{cases} \quad (\text{C.5})$$

L'unité est le micron (pour que ce modèle de validation soit dans les mêmes ordres de grandeur que le modèle développé au chapitre 3), et la taille de maille est $h_{\max} = 3 \mu\text{m}$.

Nous résolvons l'équation de Cahn-Hilliard qui gouverne cette fonction (voir chapitre 3, éq. (3.18)). En une dimension, l'équation de Cahn-Hilliard est la suivante :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + u \frac{\partial \phi}{\partial x} = \frac{\Gamma \lambda}{\epsilon^2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \left[-\epsilon^2 \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \phi(\phi^2 - 1) \right] \quad (\text{C.6})$$

Une solution particulière de l'équation C.6 est :

$$\phi = \tanh \left(\frac{x}{\sqrt{2}\epsilon} \right) \quad (\text{C.7})$$

Les paramètres de cette équation sont reliés par différentes équations :

$$\lambda = \frac{3\gamma\epsilon}{\sqrt{8}} \quad (\text{C.8})$$

$$\Gamma = \chi\epsilon^2 \quad (\text{C.9})$$

On peut noter, que dans cette équation, Γ représente la mobilité, et γ la tension de surface. La relation C.8 est obtenue à l'aide de l'équation C.7, ainsi que de la définition du coefficient de tension de surface (Yue *et al.*, 2004).

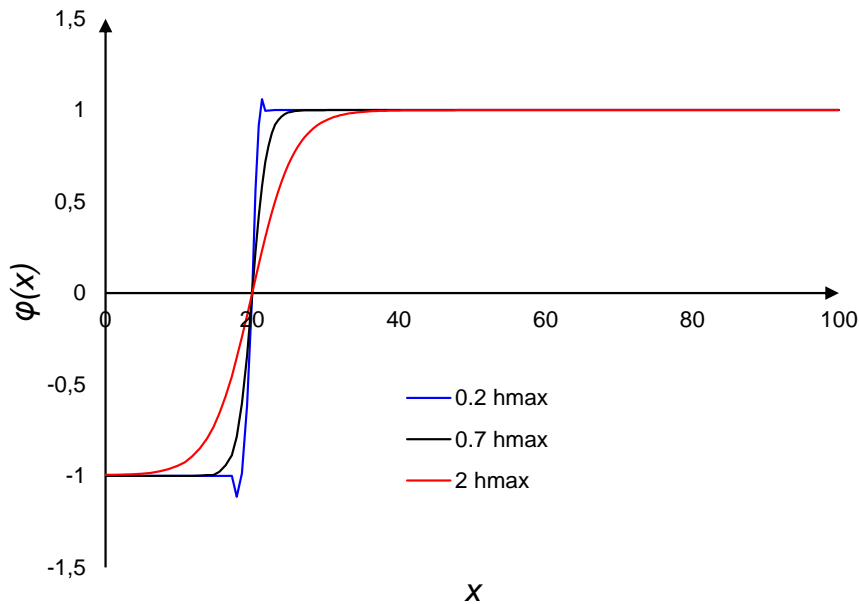


FIGURE C.1 – Fonction initialisée avec trois valeurs du paramètre ϵ différentes ($\chi = 1$).

De plus, la largeur capillaire de l'interface (l'intervalle où ϕ est comprise entre -0.9 et 0.9) est représentée par l'expression suivante :

$$l_c = 3\sqrt{2}\epsilon \quad (\text{C.10})$$

La fonction initiale est présentée Figure C.1, pour différentes valeurs de ϵ (le paramètre χ n'a pas d'influence sur l'initialisation de ϕ ici mais potentiellement sur son développement temporel). Nous constatons, en effet, que pour une valeur faible ($0.2 h_{\max}$), l'interface est étroite mais ϕ peut prendre des valeurs supérieures à 1 et inférieures à -1. Pour une plus forte valeur ($2 h_{\max}$), ce phénomène n'est pas observable mais l'interface est plus large.

Ce résultat est tout à fait cohérent avec l'expression de la largeur capillaire éq. (C.10). En effet, le coefficient de la largeur d'interface peut s'approximer à $3\sqrt{2} \simeq 4.24$. Pour cette raison, la valeur $0.2 h_{\max}$ donne une largeur de l'interface l_c inférieure à la taille de maille h_{\max} . Le compromis choisi est de retenir la valeur intermédiaire $\epsilon = 0.7h_{\max}$.

Le réglage de la mobilité χ est également un paramètre de la méthode champ de phase. Nous observons Figure C.3 que ce paramètre a une influence limitée dans notre cas, pour les trois valeurs fixées (0.5, 1, 2). En conclusion, nous retenons la valeur $\chi = 1$ pour le réglage de la mobilité.

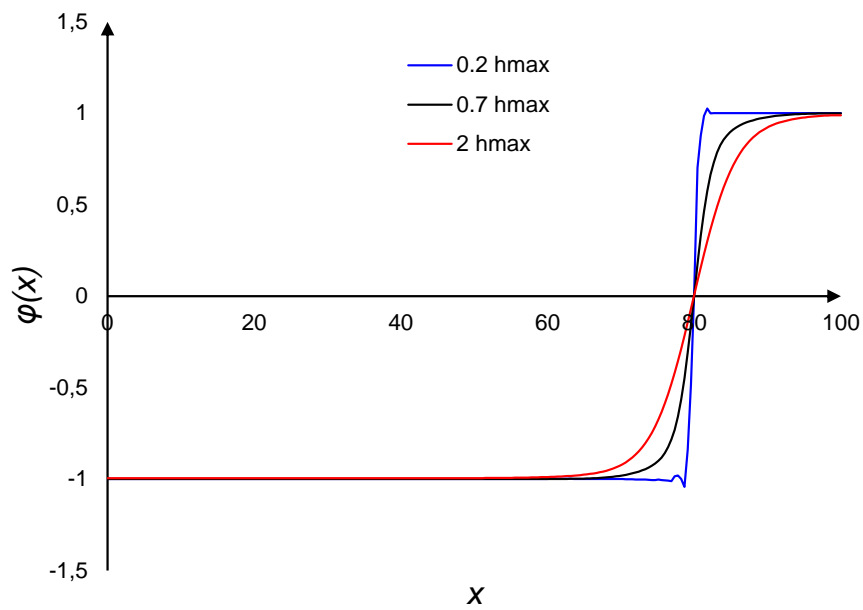


FIGURE C.2 – Fonction obtenue après le transport de ϕ le long de l'intervalle pour trois valeurs du paramètre ϵ différentes ($\chi = 1$).

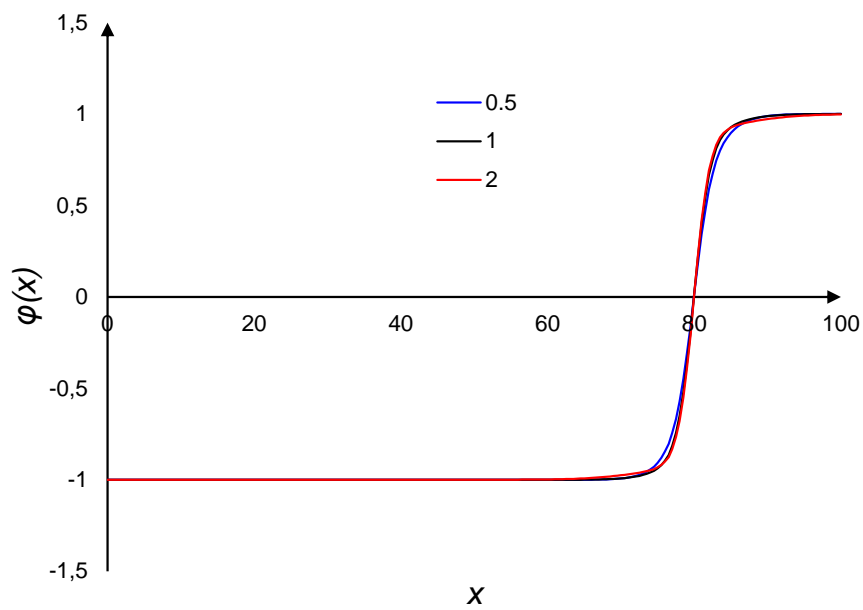


FIGURE C.3 – Fonction obtenue après le transport de ϕ le long de l'intervalle pour trois valeurs du paramètre χ différentes ($\epsilon = 0.7 h_{\max}$).

Annexe D

Études diverses sur le jet de liquide

Cet annexe présente plusieurs études ou méthodes effectuées dans le cadre de l'étude du jet en aérospray et électro-aérospray. Dans la partie § D.1, nous allons détailler les bases du calcul initié par Rayleigh (1879), qui permet de déterminer par une analyse de stabilité linéaire la valeur théorique des tailles de gouttes produites. Dans la partie § D.2, nous présentons le modèle utilisé dans notre réflexion au chapitre 5. Enfin, nous la partie D.3 aborde les traitements des données effectués pour analyser la fragmentation du jet.

D.1 Analyse de stabilité linéaire du jet

L'objectif de ce paragraphe est de présenter l'analyse de stabilité linéaire appliquée à un jet inviscide, théorie développée en 1879 par Rayleigh. Les différentes étapes de cette analyse sont :

1. Ecrire les équations entières gouvernant le phénomène, et les conditions limites ;
2. Trouver l'état de base ;
3. Soumettre l'état de base à une perturbation infinitésimale ;
4. Linéariser les équations (introduire les formes perturbées (3) dans les équations (1) et développer celles-ci par rapport à l'état de base (2), en fonction de l'amplitude de la perturbation ϵ . Négliger les termes en $\mathcal{O}(\epsilon^2)$;
5. Effectuer une hypothèse en effectuant une transformée de Fourier des fonctions étudiées. Résoudre les équations linéarisées (4) et obtenir une relation de dispersion ;
6. Analyser l'équation de dispersion et trouver les modes stables et instables.

Les notations diffèrent légèrement du reste du manuscrit, et sont détaillées au fur et à mesure.

Équations entières

Les équations gouvernant l'écoulement du fluide dans le jet sont le système de Navier-Stokes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial U_r}{\partial r} + \frac{\partial U_z}{\partial z} + \frac{U_r}{r} = 0 \\ \frac{\partial U_r}{\partial t} + U_r \frac{\partial U_r}{\partial r} + U_z \frac{\partial U_r}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial r} \\ \frac{\partial U_z}{\partial t} + U_r \frac{\partial U_z}{\partial r} + U_z \frac{\partial U_z}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial z} \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(D.1a)} \\ \text{(D.1b)} \\ \text{(D.1c)} \end{array}$$

Où les différentes variables P , U_r et U_z sont respectivement la pression et les composantes radiale et verticale de la vitesse (en coordonnées cylindriques). ρ est la densité du liquide.

A l'interface, le saut de pression de Laplace est également vérifié :

$$P - P_{atm} = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (4) \quad (D.2)$$

Où γ est le coefficient de tension superficielle, R_1 et R_2 les deux rayons de courbure locaux.

État de base

L'état de base est un jet droit cylindrique (colonne de liquide) :

- de rayon H_0 ;
- de hauteur infinie (hypothèse) ;
- de vitesse nulle $U_{r0} = U_{z0} = 0$;
- de pression $P_0 = P_{atm} + \frac{\gamma}{H_0}$.

La vitesse est ici supposée nulle. Par la suite, il sera prouvé qu'une vitesse verticale du jet non nulle modifie l'expression du taux de développement de l'instabilité ω .

État perturbé

On écrit les variables principales comme dans l'état de base en ajoutant une perturbation infinitésimale :

$$\begin{cases} U_r = 0 + \epsilon u_r(r, z, t) & (D.3a) \\ U_z = 0 + \epsilon u_z(r, z, t) & (D.3b) \\ P = P_0 + \epsilon p(r, z, t) & (D.3c) \\ H = H_0 + \epsilon h(z, t) & (D.3d) \end{cases}$$

Il est important de noter que dans l'expression de H , la fonction perturbatrice h ne dépend pas de r , par nature de H (distance entre l'axe de symétrie du jet et l'interface liquide/air).

Substitution dans les équations

On insère maintenant les formes perturbées dans les équations (1), (2) et (3) :

$$\begin{cases} \epsilon \left(\frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} + \frac{u_r}{r} \right) = 0 & (D.4a) \\ \epsilon \left(\frac{\partial u_r}{\partial t} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} \right) + \epsilon^2 \left(u_r \frac{\partial u_r}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_r}{\partial z} \right) = 0 & (D.4b) \\ \epsilon \left(\frac{\partial u_z}{\partial t} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} \right) + \epsilon^2 \left(u_r \frac{\partial u_z}{\partial r} + u_z \frac{\partial u_z}{\partial z} \right) = 0 & (D.4c) \end{cases}$$

Et, en négligeant les termes en $\mathcal{O}(\epsilon^2)$:

$$\begin{cases} \frac{\partial u_r}{\partial r} + \frac{\partial u_z}{\partial z} + \frac{u_r}{r} = 0 & (D.5a) \\ \frac{\partial u_r}{\partial t} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial r} & (D.5b) \\ \frac{\partial u_z}{\partial t} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} & (D.5c) \end{cases}$$

Relation de dispersion

Afin d'effectuer une analyse des modes de développement des perturbations, on écrit les transformées de Fourier selon z et t des fonctions u_r , u_z , p et h :

$$\begin{cases} u_r = \hat{u}_r(r) e^{i(kz+\omega t)} & \text{(D.6a)} \\ u_z = \hat{u}_z(r) e^{i(kz+\omega t)} & \text{(D.6b)} \\ p = \hat{p}(r) e^{i(kz+\omega t)} & \text{(D.6c)} \\ h = K e^{i(kz+\omega t)} & \text{(D.6d)} \end{cases}$$

L'insertion de ces expressions dans les équations (2') et (3') donne le système

$$\begin{cases} i\omega\hat{u}_r = -\frac{1}{\rho}\frac{\partial\hat{p}}{\partial r} & \text{(D.7a)} \\ \omega\hat{u}_z = -\frac{k}{\rho}\hat{p} & \text{(D.7b)} \end{cases}$$

Puis l'équation (1') nous donne

$$\frac{\partial\hat{u}_r}{\partial r} + \frac{\partial\hat{u}_z}{\partial z} + \frac{\hat{u}_r}{r} = \frac{i}{\rho\omega} \left(\frac{\partial^2\hat{p}}{\partial r^2} - k^2\hat{p} + \frac{1}{r}\frac{\partial\hat{p}}{\partial r} \right) = 0 \quad \text{(D.8)}$$

\iff

$$\boxed{\frac{\partial^2\hat{p}}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial\hat{p}}{\partial r} - k^2\hat{p} = 0} \quad (4) \quad \text{(D.9)}$$

Il s'agit d'une équation différentielle de Bessel modifiée en \hat{p} selon r . La théorie nous dit que les solutions de cette équation sont de la forme :

$$\hat{p}(r) = AI_0(kr) + BK_0(kr) \quad \text{(D.10)}$$

Or la fonction K_0 diverge en $kr = 0$: la pression étant bornée en $r = 0$, le coefficient B est nul et donc $\hat{p}(r) = AI_0(kr)$.

Utilisant la propriété $\frac{dI_0}{dr} = I_1$, le système (2')+(3') devient :

$$\begin{cases} \hat{u}_r = \frac{ik}{\rho\omega} AI_1(kr) & \text{(D.11a)} \\ \hat{u}_z = -\frac{k}{\rho\omega} AI_0(kr) & \text{(D.11b)} \end{cases}$$

Il peut être utile de rappeler l'expression du rayon du jet local : $H = H_0 + \epsilon K e^{i(kz+\omega t)}$, et, utilisant la propriété de continuité de la vitesse en $r = H$:

$$\left. \frac{\partial H}{\partial t} \right|_{z,t} = U_r|_{r=H(z,t)} \quad \text{(D.12)}$$

\iff

$$i\epsilon K\omega e^{i(kz+\omega t)} = \epsilon \frac{ik}{\rho\omega} AI_1(kH_0) e^{i(kz+\omega t)} \quad \text{(D.13)}$$

D'où l'expression de K :

$$K = \frac{kA}{\rho\omega^2} I_1(kH_0) \quad (\text{D.14})$$

L'étape suivante est d'égaliser les deux pressions à l'interface, utilisant la formule de Laplace ainsi que l'expression trouvée précédemment. D'une part :

$$P(H_0) = P_0 + \epsilon p(H_0, z, t) = P_{atm} + \frac{\gamma}{H_0} + \epsilon AI_0(kH_0) e^{i(kz+\omega t)} \quad (\text{D.15})$$

D'autre part, en utilisant la formulation de la courbure d'un jet utilisée dans la bibliographie :

$$\begin{aligned} P(H_0) &= P_{atm} + \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) = P_{atm} + \gamma \left(\frac{1}{H} - \frac{\partial^2 H}{\partial z^2} \right) \\ &= P_{atm} + \gamma \left(\frac{1}{H_0 + \epsilon K e^{i(kz+\omega t)}} + k^2 \epsilon K e^{i(kz+\omega t)} \right) \\ &= P_{atm} + \frac{\gamma}{H_0} - \frac{\epsilon K \gamma}{H_0^2} e^{i(kz+\omega t)} + \gamma k^2 \epsilon K e^{i(kz+\omega t)} \\ &= P_{atm} + \frac{\gamma}{H_0} - \gamma \epsilon \frac{kA}{\rho\omega^2} I_1(kH_0) \left(\frac{1}{H_0^2} - k^2 \right) e^{i(kz+\omega t)} \end{aligned} \quad (\text{D.16})$$

L'égalisation de ces deux quantités apporte la relation de dispersion régissant le taux de développement temporel de l'instabilité, ω :

$$(i\omega)^2 = \frac{\gamma k}{\rho H_0^2} (1 - k^2 H_0^2) \frac{I_1(kH_0)}{I_0(kH_0)} \quad (\text{D.17})$$

Analyse de la relation de dispersion

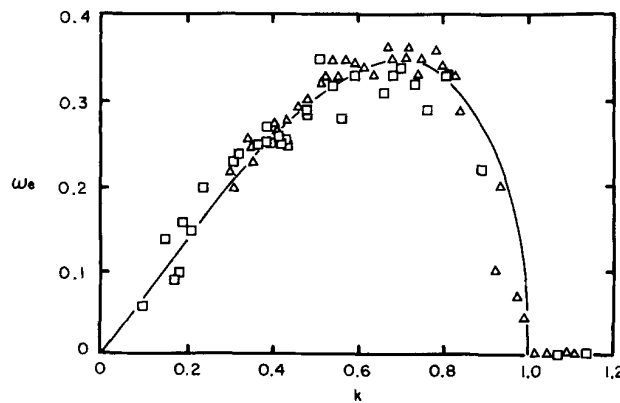


FIGURE D.1 – Taux de développement mis à l'échelle ω' en fonction du produit kH_0 . La ligne représente la théorie et les différents points des résultats d'expériences (Lafrance, 1975).

La perturbation ne va se développer que si $i\omega \in \mathbb{R}$, *i. e.* si la perturbation vérifie la condition :

$$kH_0 < 1 \quad (\text{D.18})$$

Le taux de développement mis à l'échelle $\omega' = i\omega / \sqrt{\frac{\gamma}{\rho H_0^3}}$ est tracé figure D.1.

On remarque que cette courbe, concave, admet un maximum sur $[0, 1]$, pour $kH_0 \sim 0.697$, ce qui se traduit en une longueur d'onde optimale de perturbation (qui se développe le plus vite) environ de :

$$\lambda_{opt} = 9.01H_0 \quad (\text{D.19})$$

D.2 Champ électrique au voisinage du jet

Cette annexe est consacrée à la présentation d'un modèle qui permet de calculer le champ électrique dans le procédé d'électro-aérospray. La géométrie étudiée est celle proposée par Berri (2018).

L'objectif de cet étude est d'analyser la valeur du champ électrique autour de l'éjecteur lorsque $\Delta V = 0$.

Nous plaçons la buse et l'éjecteur au même potentiel électrique, soit $V_b = V_e = 6$ kV. La cible est au potentiel de terre $V_c = 0$ V. L'équation résolue est l'équation de Maxwell-Gauss, qui gouverne le champ électrique :

$$\nabla \cdot \epsilon \vec{E} = 0 \quad (\text{D.20})$$

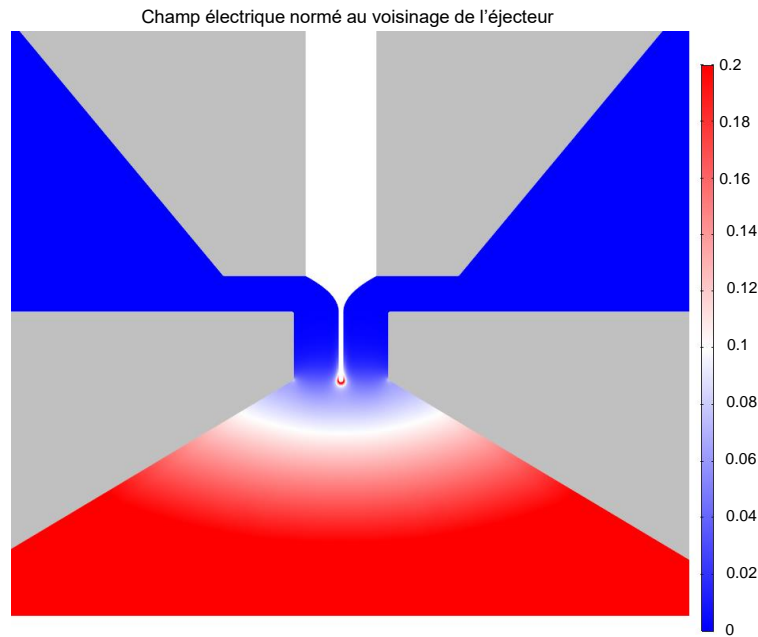


FIGURE D.2 – Champ électrique normé $\|\vec{E}\|/E_g$ simulé, dans le cas étudié. L'échelle de couleur à droite représente l'intervalle $[0, 0.2]$.

La distance entre la buse et l'éjecteur et celle entre l'éjecteur et la cible valent respectivement $H = 150 \mu\text{m}$ et $L_e = 35$ mm. Analytiquement, il est possible de définir un champ global attendu entre l'éjecteur et la cible :

$$E_g = \frac{V_e}{L_e} = \frac{6 \times 10^3 \text{ V}}{3.5 \times 10^{-2} \text{ m}} \simeq 1.71 \times 10^5 \text{ V.m}^{-1} \quad (\text{D.21})$$

La Figure D.2 présente les résultats de la simulation effectuée. Le modèle prend en compte un jet de longueur $300 \mu\text{m}$, mis au potentiel de la buse V_b . Le code couleur est représenté par l'échelle à droite de la figure. Nous avons fixé la limite relative de cette échelle à 0.2, pour gagner en visibilité. La buse et l'éjecteur sont représentés en gris.

Il est possible de constater qu'au voisinage du jet (dans l'éjecteur), le champ électrique est très faible (quelques pourcents du champ global E_g).

En conclusion de cette étude, nous pouvons affirmer que lorsque la buse et l'éjecteur sont au même potentiel, le champ électrique au voisinage de l'éjecteur est négligeable par rapport au champ entre l'éjecteur et la surface cible (à la masse).

D.3 Traitement des données de simulation du jet

Dans cette annexe, nous allons présenter les méthodes de traitement de données, développées afin d'analyser les différentes tailles de gouttes produites. Deux résultats sont analysés : le premier, spatial, dans le cas d'un repère local, et le second, temporel, dans le cas d'un repère fixe.

D.3.1 Modèles à repère « local »

Dans ce premier modèle, le référentiel d'étude suit le jet à une vitesse constante. Nous considérons que dans ce cas, le fluide a une vitesse nulle. Les instabilités se développent donc sur le domaine étudié, mais ne sont pas convectées le long de celui-ci.

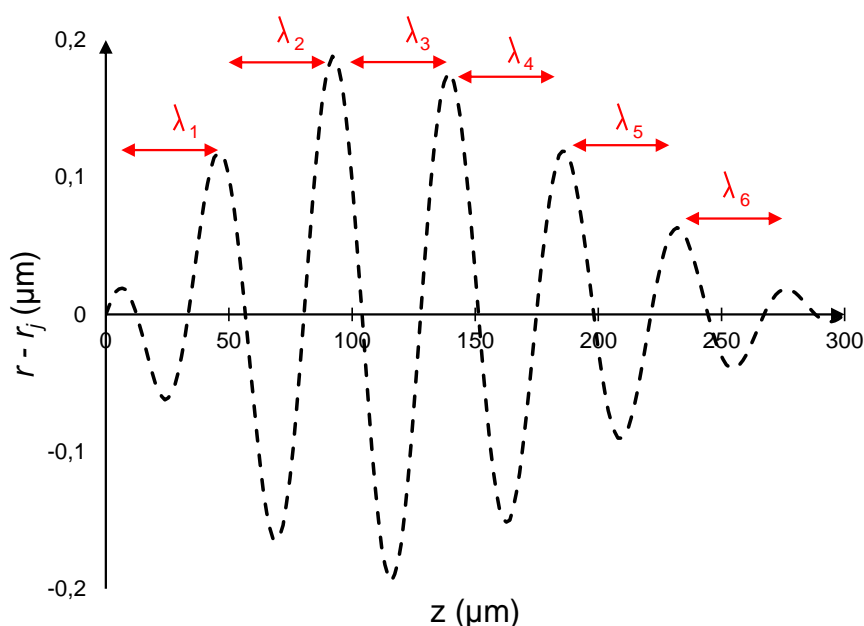


FIGURE D.3 – Exemple de donnée spatiale obtenue avec le modèle simulé.

La Figure D.3 illustre un exemple de résultat obtenu sur un domaine de longueur $L = 300 \mu\text{m}$. Nous traitons cette donnée sur Excel, en détectant les maxima locaux qui font apparaître une longueur d'onde λ :

$$\lambda = \frac{1}{N} \sum_i \lambda_i \quad (\text{D.22})$$

où chaque λ_i est calculé à partir de la différence $x_{i+1} - x_i$. Nous effectuons ce calcul plutôt que $(x_{N+1} - x_1)/N$ afin de détecter plus précisément les singularités qui peuvent se former dans certains cas.

D.3.2 Modèles à repère « fixe »

Dans le modèle à repère fixe, le principe est de simuler le jet qui convecte en continu les instabilités de surface. Par nature, pour un paramétrage fin de ce modèle, le critère d'arrêt n'est jamais atteint et les perturbations sont transportées, ce qui permet d'obtenir des statistiques plus précises sur les différentes gouttelettes produites. Le fluide a une vitesse $u_0 > 0$ non nulle dans ce cas.

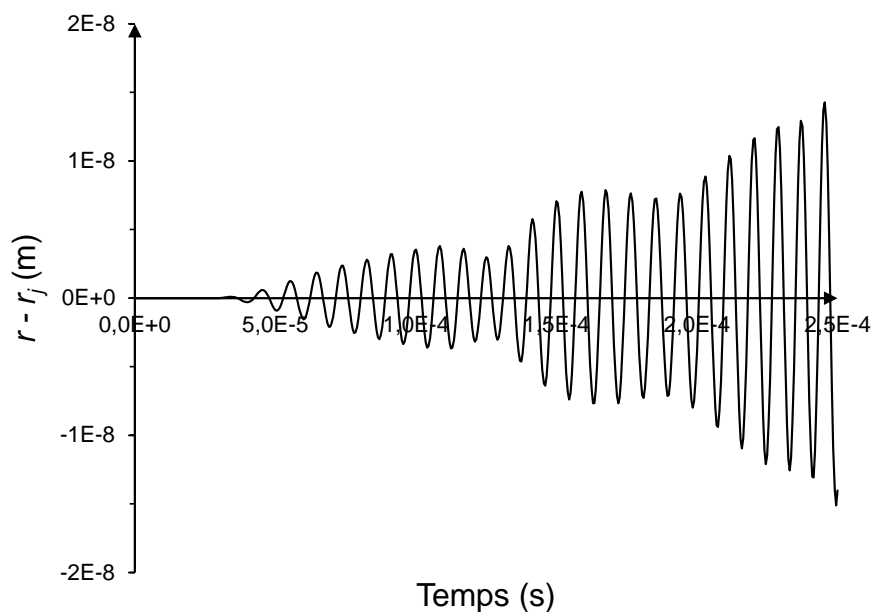


FIGURE D.4 – Exemple de donnée temporelle générée avec le modèle simulé. Dans cette configuration, aucune contrainte n'est appliquée sur la surface du jet.

La Figure D.4 présente le résultat temporel obtenu. Nous traitons les données sur Excel comme précédemment, en détectant les maxima t_i de la fonction. En calculant $\delta t_i = t_{i+1} - t_i$, nous pouvons obtenir la longueur d'onde de la perturbation développée, avec l'équation

$$\lambda_i = \delta t_i u_0 \quad (\text{D.23})$$

Nous pouvons ensuite déterminer la taille des gouttes produites avec la formule :

$$r_g^i = \sqrt[3]{\frac{3}{4} \lambda_i r_j^2} \quad (\text{D.24})$$

On peut noter que dans la configuration présentée Figure D.4, la vitesse u_0 , fixée à 5 m.s^{-1} , est légèrement inférieure à la vitesse optimale u_c , où l'enveloppe des instabilités serait constante. C'est pour cette raison que le critère d'arrêt $(r - r_j)/r_j > 4 \%$ est atteint dans un temps fini.

Annexe E

Traitement des données obtenues en PDA

Cette annexe a pour but de présenter quelques méthodes de traitement des données expérimentales (obtenues à DBV Technologies). Une fraction de ces données brutes a été utilisée par Berri (2018), mais beaucoup d'autres types de traitements restent à effectuer.

Deux analyses principales sont développées par la suite : la première, permettant d'étudier l'oscillation du cône, et la seconde, une vision globale de l'effet de la tension électrique sur les populations de taille des gouttelettes. Ces données expérimentales ont été obtenue avec le montage expérimental présenté par Berri (2018), utilisant la PDA (*Phase Doppler Anemometry*) afin de mesurer les tailles et vitesses de gouttes. En pratique, les données ont la forme d'un tableau avec quelques colonnes (temps d'acquisition, vitesse axiale, vitesse latérale, diamètre) et autant de lignes que de gouttelettes dans l'échantillon. Nous utilisons le logiciel R pour traiter ces données.

E.1 Période d'oscillation du cône

Dans cette partie, l'objectif est de prouver qu'il est possible de constater l'oscillation du cône de liquide en aérospray et électro-aérospray avec les données expérimentales.

Nous étudions la variable δt en fonction du temps. Cette variable est la différence entre le temps d'acquisition d'une gouttelette et la gouttelette suivante. Les Figures E.1 et E.2 montrent l'allure de δt lors d'une acquisition de dix secondes. Pour la clarté du graphique, l'ensemble des données n'est pas montré mais un échantillon suffisamment représentatif de l'allure des deux courbes. Deux configurations différentes sont utilisées : la première comportant une distance buse-éjecteur de $H = 150 \mu\text{m}$, et la seconde où $H = 350 \mu\text{m}$. Nous remarquons que sur la première Figure E.1, la répartition des valeurs de δt semble aléatoire. Cependant, sur la seconde Figure E.2, on remarque plusieurs valeurs particulières pour δt .

Les Figures E.3 et E.4 illustrent les densités de probabilités de δt dans chacun de ces deux cas. On remarque Figure E.3 que les différences de temps d'acquisition sont concentrées dans l'intervalle $[0, 3 \text{ ms}]$. Cependant, dans la Figure E.4, on distingue plusieurs pics : le premier, pour $\delta t < 0.2 \text{ ms}$, et plusieurs autres pour les multiples de 2.2 ms .

Nous interprétons ce résultat par la présence d'une pulsation dans le spray : l'écoulement est périodique et fait apparaître des fréquences remarquables. En accord avec les ordres de grandeurs de T , la période d'oscillation du cône, prédits par la modélisation, il est possible d'identifier les fréquences remarquables dans l'acquisition des gouttelettes et les fréquences de pulsation du cône de liquide.

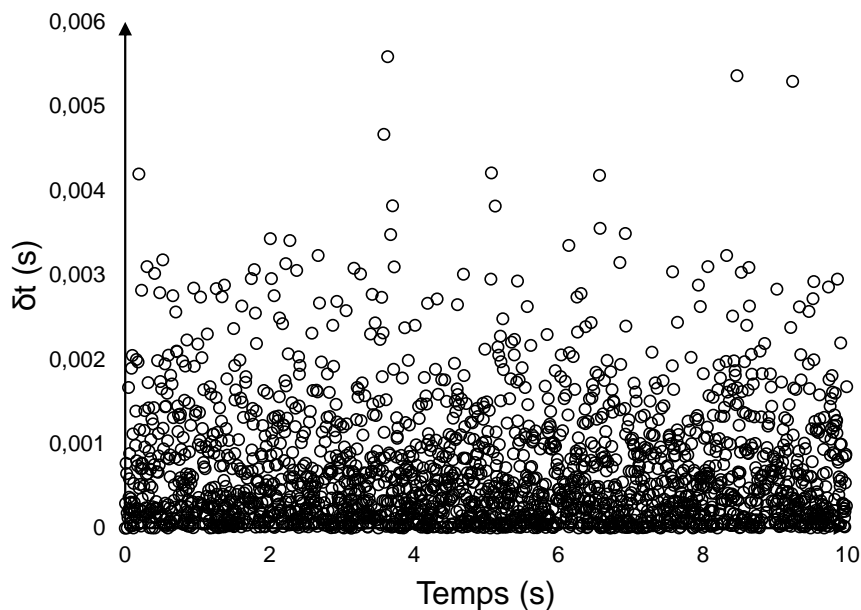


FIGURE E.1 – Illustration du différentiel du temps d’acquisition en fonction du temps pour une première configuration ($D_i = 300 \mu\text{m}$, $H = 150 \mu\text{m}$, $D_o = 400 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $Q_g = 0.9 \text{ L.min}^{-1}$).

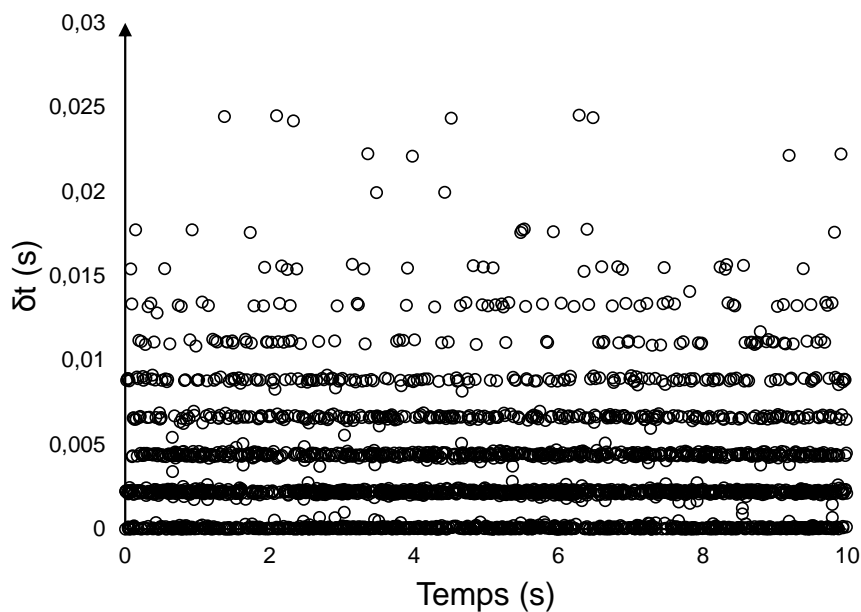


FIGURE E.2 – Illustration du différentiel du temps d’acquisition en fonction du temps pour une première configuration ($D_i = 300 \mu\text{m}$, $H = 350 \mu\text{m}$, $D_o = 400 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $Q_g = 0.9 \text{ L.min}^{-1}$).

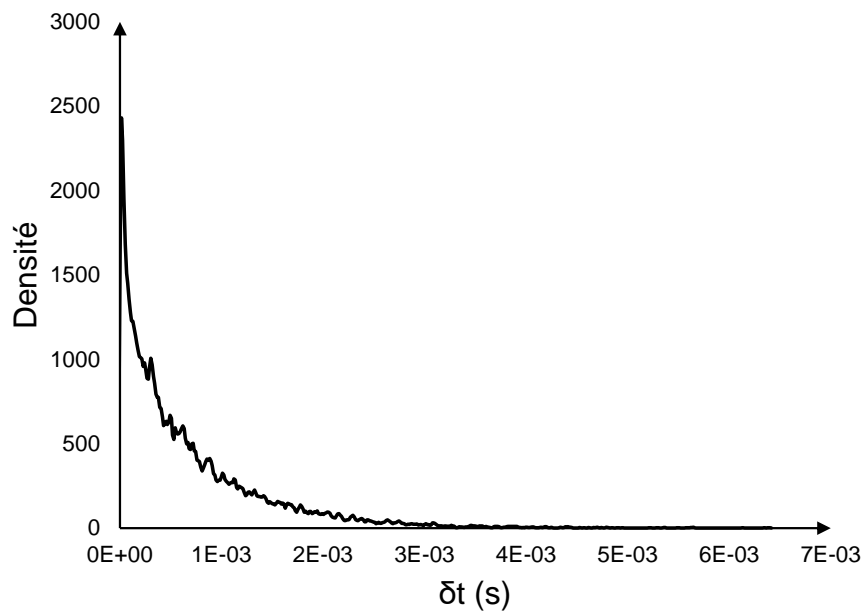


FIGURE E.3 – Densité de δt dans la première configuration ($D_i = 300 \mu\text{m}$, $H = 150 \mu\text{m}$, $D_o = 400 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $Q_g = 0.9 \text{ L.min}^{-1}$). Les données correspondent à la courbe Figure E.1.

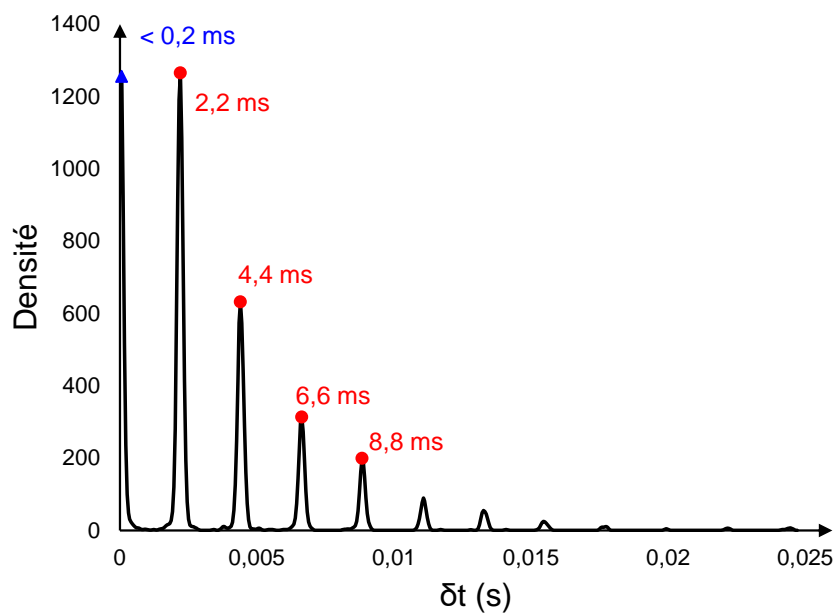


FIGURE E.4 – Densité de δt dans la seconde configuration ($D_i = 300 \mu\text{m}$, $H = 350 \mu\text{m}$, $D_o = 400 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $Q_g = 0.9 \text{ L.min}^{-1}$). Les données correspondent à la courbe Figure E.2.

Dans ce cas, nous pouvons synthétiser nos interprétations comme suivant :

- Le cône oscille au fur et à mesure du spray
 - Le spray est lui aussi pulsé
 - La période est T (par exemple 2.2 ms dans ce cas)
- Des paquets de gouttelettes sont émis tous les T ms
 - De temps en temps, l'appareil de mesure ne détecte pas **un** de ces paquets et fait apparaître un **double** de τ
 - De temps en temps, l'appareil de mesure ne détecte pas **deux** de ces paquets et fait apparaître un **triple** de T
 - De temps en temps, l'appareil de mesure ne détecte pas **trois** de ces paquets et fait apparaître un **quadruple** de T
 - etc.
- La valeur minimale de δt (< 0.2 ms), le premier pic dans la Figure E.4, provient :
 - Soit de la fréquence « machine » de l'appareil de mesure PDA de détection des gouttes,
 - Soit de la fréquence « physique », ou hydrodynamique, de fragmentation du jet et de création des gouttes.

*
* *

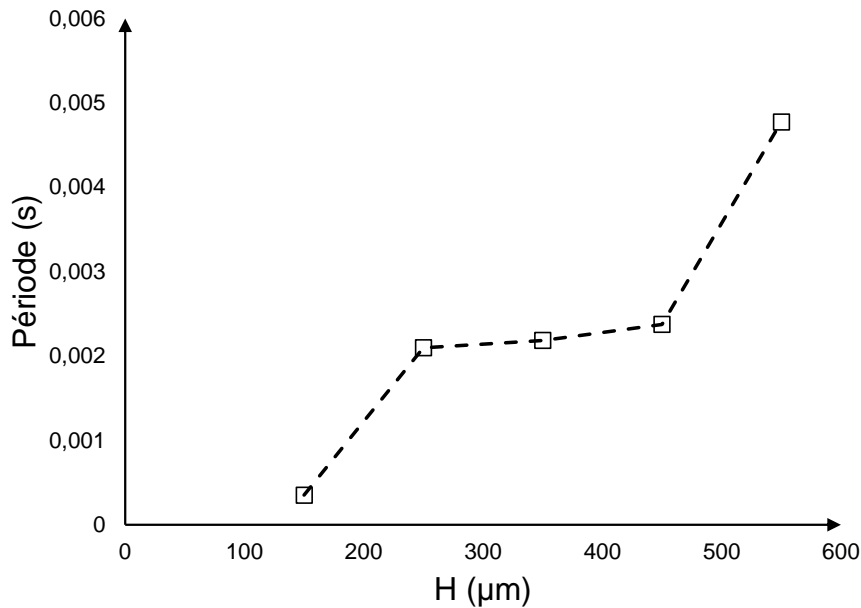


FIGURE E.5 – Période identifiée comme T en fonction de H . ($D_i = 300 \mu\text{m}$, $D_o = 400 \mu\text{m}$, $Q_l = 3 \text{ ml.h}^{-1}$, $Q_g = 0.9 \text{ L.min}^{-1}$).

L'analyse de plusieurs données expérimentales obtenues sur une étude paramétrique en fonction du paramètre géométrique H permet d'obtenir la Figure E.5. Nous observons que la période moyenne d'acquisition grandit en fonction de H , ce qui est tout à fait en corrélation avec notre réflexion proposée aux paragraphes § 4.5.1.1 et § 4.4.2.2. En effet, pour un H élevé, le mouillage du liquide sur la surface de la buse peut augmenter le temps caractéristique t_c . De plus, l'écoulement de gaz a un effet moindre sur la zone de liquide directement en sortie de buse.

E.2 Influence de la tension sur la population de taille des gouttes

Dans son manuscrit, Berri (2018) affirme que la plupart des expériences effectuées permettaient d'obtenir un spray « stable à l'œil nu » et « monodispersé ». Nous avons invalidé le premier point dans la partie précédente, ou nous avons mis en évidence un phénomène d'oscillations de l'échelle de quelques millisecondes dans des configurations décrites comme stables.

Pour l'aspect monodispersé, plusieurs définitions existent : la plus communément utilisée est définie par le NIST¹ en 2001 (Dapkunas *et al.*, 2001).

Une distribution de particules peut être considérée comme monodispersée si au moins 90 % de la distribution se situe à moins de 5 % de la taille médiane.

La Figure E.6 représente le pourcentage des gouttelettes incluent dans un intervalle de 5 % autour de la médiane, pour plusieurs configurations. La distance buse-éjecteur H et l'application de tension ΔV et V_e sont variés. Nous remarquons qu'aucune distribution n'atteint le critère de 90 %, ce qui signifie qu'il n'est pas possible de dire que l'aérospray et l'électro-aérospray produisent des sprays monodispersés au sens du NIST.

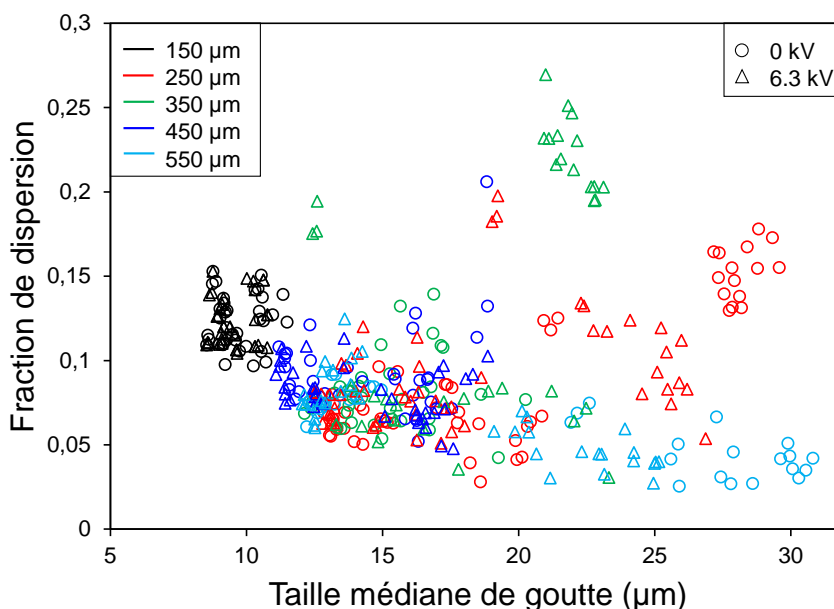


FIGURE E.6 – Pourcentage de gouttes autour de la taille médiane pour différentes configurations expérimentales d'électro-aérospray (H varie entre 150 μm et 550 μm).

La Figure E.7 illustre le coefficient de variation de chaque distribution :

$$\text{Coefficient de variation} = \frac{\text{Écart-type}}{\text{Moyenne}} \quad (\text{E.1})$$

Nous remarquons que plusieurs modes, ou régimes d'écoulement, peuvent éventuellement être identifiés :

- Le *Flow Blurring*, où les gouttelettes sont petites et la distribution de tailles relativement étroite.
- Le *Flow Focusing*, où il est possible d'identifier deux modes :

1. National Institute of Standards and Technology

- Le mode Stationnaire Dynamique (SD), où le coefficient de variation est le plus faible, quand le jet est stable et que les gouttelettes sont produites de manière assez régulière,
- Le mode Transitoire (T), qui a l'air de concerner la majorité des configurations expérimentales ici, où le cône de liquide oscille. Les gouttelettes sont éjectées de la chambre sous forme d'un nuage, ou de ligaments qui peuvent se fragmenter de manière moins régulières.

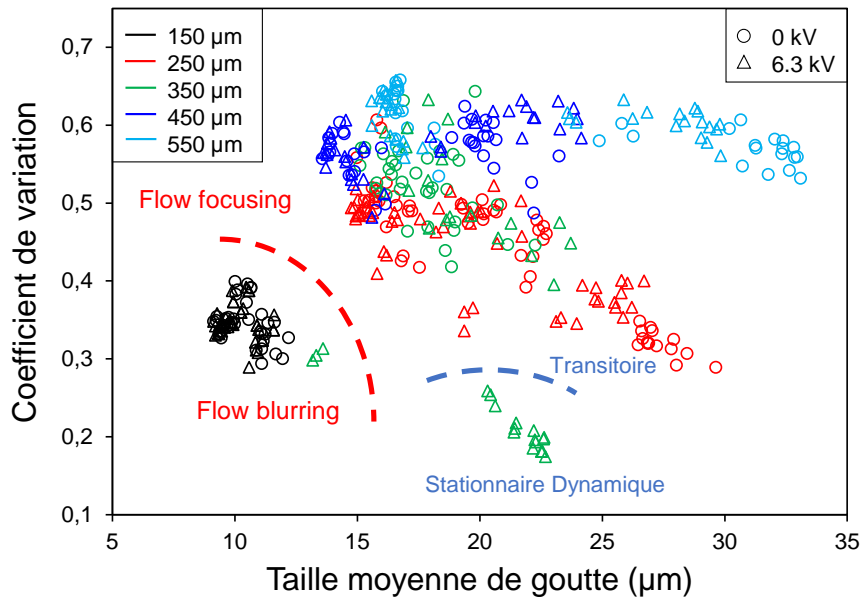


FIGURE E.7 – Coefficient de variation en fonction de la taille moyenne (H varie entre $150 \mu\text{m}$ et $550 \mu\text{m}$).

Nous interprétons ces résultats en cohérence avec les réflexions effectuées plus haut, notamment avec la courbe de Vega *et al.* (2010) Figure 4.42, qui met en évidence une valeur optimale H_{opt} qui permettrait la stabilité du cône de liquide pour un débit plus faible. Dans cet article, il prédit une valeur de $H_{\text{opt}}/D_o \sim 0.65$, et nous trouvons ici $H_{\text{opt}}/D_o \sim 0.88$. Cet écart peut potentiellement venir de l'incertitude expérimentale due aux tolérances mécaniques du dispositif.

Cette interprétation n'est pas définitive et devra faire l'objet d'études ultérieures. En effet, dans ce type de diagramme, des milliers de gouttelettes dans un même échantillon mesuré ne sont représentés que par un point qui prend en compte l'écart-type et la moyenne de la distribution, ce qui peut se révéler limitant et peut « masquer » des informations, par exemple de vitesses ou de temps d'acquisitions.

Bibliographie

- A. J. Acero, J. M. Montanero, C. Ferrera, M. A. Herrada, et A. M. Gañán-Calvo. Enhancement of the stability of the flow focusing technique for low-viscosity liquids. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 22(11) :115039, 2012. 68
- L. L. F. Agostinho. *Electrohydrodynamic Atomization in the Simple-Jet Mode- Out-scaling and Application*. TU Delft, Delft University of Technology, 2013. 12, 26
- S. L. Anna, N. Bontoux, et H. A. Stone. Formation of dispersions using « flow focusing » in microchannels. *Applied physics letters*, 82(3) :364–366, 2003. 12, 17, 18
- S. Arumuganathar, S. N. Jayasinghe, et N. Suter. Aerodynamically assisted jetting : a rapidly emerging microfabrication methodology. *Micro & Nano Letters*, 2(4) :78–84, 2007. 24
- ASME. Peerless type « m » odorizer. <http://igs.nigc.ir>, 1992. 18
- I. Babuška. Error-bounds for finite element method. *Numerische Mathematik*, 16(4) :322–333, 1971. 49
- A. Barrero, A. M. Gañán-Calvo, J. Davila, A. Palacio, et E. Gomez-Gonzalez. Low and high reynolds number flows inside Taylor cones. *Physical Review E*, 58(6) :7309, 1998. 16, 26
- A. Barrero, A. M. Gañán-Calvo, J. Davila, A. Palacios, et E. Gomez-Gonzalez. The role of the electrical conductivity and viscosity on the motions inside Taylor cones. *Journal of electrostatics*, 47(1) :13–26, 1999. 16
- A. B. Basset. *A treatise on hydrodynamics : with numerous examples. Vol I*, volume 1. Deighton, Bell and Company, 1888a. 21, 115
- A. B. Basset. *A treatise on hydrodynamics : with numerous examples. Vol II*, volume 2. Deighton, Bell and Company, 1888b. 21
- W. Becker, D. Brasseur, J.-L. Bresson, A. Flynn, A. A. Jackson, P. Lagiou, G. Mingrone, B. Moseley, A. Palou, H. Przyrembel, *et al.* Opinion of the scientific panel on dietetic products, nutrition and allergies on a request from the commission relating to the evaluation of allergenic foods for labelling purposes (request nr efsa-q-2003-016). *EFSA J*, 32 :1–197, 2004. 2
- N. Berri. *Deposition of pharmaceuticals by electro-aerodynamically assisted spraying (EAAS)*. PhD thesis, UCL, 2018. vii, 7, 13, 26, 28, 29, 30, 66, 68, 70, 98, 99, 103, 116, 119, 120, 121, 123, 125, 126, 128, 130, 139, 154, 157, 161
- F. Brezzi. On the existence, uniqueness and approximation of saddle-point problems arising from lagrangian multipliers. *Revue française d'automatique, informatique, recherche opérationnelle. Analyse numérique*, 8(R2) :129–151, 1974. 49

- J. W. Cahn et J. E. Hilliard. Free energy of a nonuniform system. i. interfacial free energy. *The Journal of chemical physics*, 28(2) :258–267, 1958. 42, 143
- J. W. Cahn et J. E. Hilliard. Free energy of a nonuniform system. iii. nucleation in a two-component incompressible fluid. *The Journal of chemical physics*, 31(3) :688–699, 1959. 42, 143
- Z. Z. Chong, S. H. Tan, A. M. Gañán-Calvo, S. B. Tor, N. H. Loh, et N.-T. Nguyen. Active droplet generation in microfluidics. *Lab on a Chip*, 16(1) :35–58, 2016. 11, 24
- M. Cloupeau et B. Prunet-Foch. Electrostatic spraying of liquids in cone-jet mode. *Journal of Electrostatics*, 22(2) :135–159, 1989. 15, 20
- F. Cruz-Mazo, J. Montanero, et A. Gañán-Calvo. Monosized dripping mode of axisymmetric flow focusing. *Physical Review E*, 94(5) :053122, 2016. 87
- F. Cruz-Mazo, M. Herrada, A. Gañán-Calvo, et J. Montanero. Global stability of axisymmetric flow focusing. *Journal of Fluid Mechanics*, 832 :329–344, 2017. 87
- S. J. Dapkunas, A. Jilavenkatesa, et L. Lum. Particle size characterization. *NIST, Gaithersburg, MD*, 2001. 161
- DBV Technologies. Document de référence, DBV Technologies. <https://www.dbv-technologies.com>, 2017. 5
- J. F. De La Mora. The effect of charge emission from electrified liquid cones. *Journal of Fluid Mechanics*, 243 :561–574, 1992. 39
- G. Dhatt, E. Lefrançois, G. Touzot, et al. *Finite element method*. John Wiley & Sons, 2012. 46
- V. Dioszeghy, L. Mondoulet, V. Dhelt, M. Ligouis, E. Puteaux, P.-H. Benhamou, et C. Dupont. Epicutaneous immunotherapy results in rapid allergen uptake by dendritic cells through intact skin and downregulates the allergen-specific response in sensitized mice. *The Journal of Immunology*, page 1003134, 2011. 3
- C. Dubuisson, S. La Vieille, et A. Martin. Allergies alimentaires : état des lieux et propositions d'orientations. 2002. 1
- J. Eggers et E. Villermaux. Physics of liquid jets. *Reports on progress in physics*, 71(3) :036601, 2008. 20
- P. Ehouarn. *Pulvérisation électro-hydrodynamique de liquide stabilisée par décharges électriques pour le traitement d'effluents particulaires*. PhD thesis, Paris 11, 2001. 12
- J. B. Fenn, M. Mann, C. K. Meng, S. F. Wong, et C. M. Whitehouse. Electrospray ionization—principles and practice. *Mass Spectrometry Reviews*, 9(1) :37–70, 1990. 11, 15, 23, 26
- J. Fernandez de La Mora. The fluid dynamics of Taylor cones. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 39 : 217–243, 2007. 11, 16, 23, 26
- J. Fernandez de La Mora et I. G. Loscertales. The current emitted by highly conducting Taylor cones. *Journal of Fluid Mechanics*, 260 :155–184, 1994. 15, 39, 99, 125
- T. P. Forbes et E. Sisco. Chemical imaging of artificial fingerprints by desorption electro-flow focusing ionization mass spectrometry. *Analyst*, 139(12) :2982–2985, 2014. 25

- T. P. Forbes, T. M. Brewer, et G. Gillen. Desorption electro-flow focusing ionization of explosives and narcotics for ambient pressure mass spectrometry. *Analyst*, 138(19) :5665–5673, 2013. 13, 25
- J. Fromm. Numerical calculation of the fluid dynamics of drop-on-demand jets. *IBM Journal of Research and Development*, 28(3) :322–333, 1984. 22
- A. Gañán-Calvo. Device and method for creating spherical particles of uniform size, Mar. 6 2001. US Patent 6,197,835. 97
- A. Gañán-Calvo et A. Barrero. A novel pneumatic technique to generate steady capillary micro-jets. *Journal of Aerosol Science*, 30(1) :117–125, 1999. 11, 22, 70, 71
- A. M. Gañán-Calvo. Cone-jet analytical extension of Taylor’s electrostatic solution and the asymptotic universal scaling laws in electrospraying. *Physical review letters*, 79(2) :217, 1997a. 26, 39
- A. M. Gañán-Calvo. On the theory of electrohydrodynamically driven capillary jets. *Journal of Fluid Mechanics*, 335 :165–188, 1997b. 26, 39
- A. M. Gañán-Calvo. Generation of steady liquid microthreads and micron-sized monodisperse sprays in gas streams. *Physical Review Letters*, 80(2) :285, 1998. 13, 17, 18, 19, 23, 39, 53, 68, 75, 87, 138
- A. M. Gañán-Calvo. The surface charge in electrospraying : its nature and its universal scaling laws. *Journal of Aerosol Science*, 30(7) :863–872, 1999. 39
- A. M. Gañán-Calvo. Enhanced liquid atomization : From flow-focusing to flow-blurring. *Applied physics letters*, 86(21) :214101, 2005. 18, 94, 96, 97
- A. M. Gañán-Calvo. Electro-flow focusing : The high-conductivity low-viscosity limit. *Physical review letters*, 98(13) :134503, 2007. 23, 24, 99
- A. M. Gañán-Calvo et A. Barrero. A global model for the electrospraying of liquids in steady cone jet mode. *J. Aerosol Sci.*, 27, 1996. 14
- A. M. Gañán-Calvo et J. M. Montanero. Revision of capillary cone-jet physics : Electrospray and flow focusing. *Physical Review E*, 79(6) :066305, 2009. 13, 14, 21, 26, 99
- A. M. Gañán-Calvo, J. Davila, et A. Barrero. Current and droplet size in the electrospraying of liquids. scaling laws. *Journal of Aerosol Science*, 28(2) :249–275, 1997. 11, 16, 26, 125
- A. M. Gañán-Calvo, J. M. López-Herrera, et P. Riesco-Chueca. The combination of electrospray and flow focusing. *Journal of fluid Mechanics*, 566 :421–445, 2006. 7, 11, 13, 23, 24, 26, 39, 103, 118, 125, 128
- A. M. Gañán-Calvo, C. Ferrera, M. Torregrosa, M. A. Herrada, et M. Marchand. Experimental and numerical study of the recirculation flow inside a liquid meniscus focused by air. *Microfluidics and nanofluidics*, 11(1) :65–74, 2011. 19, 78, 79
- S. Gasser. Rapport de correspondance interne DBV Technologies. 2016. 12, 15
- T. Gohil, R. H. McGregor, D. Szczerba, K. Burckhardt, K. Muralidhar, et G. Székely. Simulation of oscillatory flow in an aortic bifurcation using fvm and fem : A comparative study of implementation strategies. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 66(8) : 1037–1067, 2011. 46

- J. M. Gordillo, M. Pérez-Saborid, et A. M. Gañán-Calvo. Linear stability of co-flowing liquid–gas jets. *Journal of Fluid Mechanics*, 448 :23–51, 2001. 11, 13, 23, 53, 54
- J. Grifoll et J. Rosell-Llompart. Efficient lagrangian simulation of electrospray droplets dynamics. *Journal of Aerosol Science*, 47 :78–93, 2012. 12
- S. Groom, G. Schaldach, M. Ulmer, P. Walzel, et H. Berndt. Adaptation of a new pneumatic nebulizer for sample introduction in icp spectrometry. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 20(3) :169–175, 2005. 30
- R. S. Gupta, E. E. Springston, M. R. Warriar, B. Smith, R. Kumar, J. Pongracic, et J. L. Holl. The prevalence, severity, and distribution of childhood food allergy in the united states. *Pediatrics*, pages peds–2011, 2011. 2
- C. Haralambopoulos et P. Ryan. Adhesive matrix type transdermal patch and method of manufacturing same, Sept. 28 1999. US Patent 5,958,447. 6
- R. P. A. Hartman. *Electrohydrodynamic atomization in the cone-jet mode*. TU Delft, Delft University of Technology, 1998. 11, 16, 17, 20, 21, 26, 39, 52, 125
- I. Hayati, A. I. Bailey, et T. F. Tadros. Mechanism of stable jet formation in electrohydrodynamic atomization. *Nature*, 319(6048) :41–43, 1986. 15, 16
- I. Hayati, A. I. Bailey, et T. F. Tadros. Investigations into the mechanism of electrohydrodynamic spraying of liquids : II. Mechanism of stable jet formation and electrical forces acting on a liquid cone. *Journal of colloid and interface science*, 117(1) :222–230, 1987. 16
- P. He, H. Kim, D. Luo, M. Marquez, et Z. Cheng. Low-frequency ac electro-flow-focusing microfluidic emulsification. *Applied Physics Letters*, 96(17) :174103, 2010. 24
- M. A. Herrada, A. M. Gañán-Calvo, A. Ojeda-Monge, B. Bluth, et P. Riesco-Chueca. Liquid flow focused by a gas : jetting, dripping, and recirculation. *Physical Review E*, 78(3) :036323, 2008. 19, 42, 62, 67, 72, 73, 74, 75, 78, 87, 97, 129, 138
- M. A. Herrada, V. N. Shtern, et J. M. López-Herrera. Two-cell circulation in a liquid meniscus driven by a swirling gas jet. *Physics of Fluids*, 23(1) :012003, 2011. 97, 140
- T.-C. Hsiao, S.-H. Huang, C.-W. Hsu, C.-C. Chen, et P.-K. Chang. Effects of the geometric configuration on cyclone performance. *Journal of Aerosol Science*, 86 :1–12, 2015. 140
- A. L. Huebner et H. N. Chu. Instability and breakup of charged liquid jets. *Journal of Fluid Mechanics*, 49(02) :361–372, 1971. 20, 21, 115
- T. J. Hughes, L. P. Franca, et M. Balestra. A new finite element formulation for computational fluid dynamics : V. circumventing the babuška-brezzi condition : a stable petrov-galerkin formulation of the stokes problem accommodating equal-order interpolations. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 59(1) :85–99, 1986. 50
- J. C. Ijsebaert, K. B. Geerse, J. C. M. Marijnissen, J.-W. J. Lammers, et P. Zanen. Electrohydrodynamic atomization of drug solutions for inhalation purposes. *Journal of Applied Physiology*, 91(6) :2735–2741, 2001. 24
- D. Jamet. Diffuse interface models in fluid mechanics. 2010. 143
- A. Jaworek et A. Krupa. Classification of the modes of ehd spraying. *Journal of Aerosol Science*, 30(7) :873–893, 1999. 26

- S. N. Jayasinghe. Biophysics Group UCL, 2010. 19
- S. N. Jayasinghe et N. Suter. Aerodynamically assisted jetting : a pressure driven approach for processing nanomaterials. *Micro & Nano Letters*, 1(1) :35–38, 2006. 11, 24
- D. L. Jeanmaire, G. A. Hawkins, et R. Sharma. Continuous inkjet printhead with selectable printing volumes of ink, June 10 2003. US Patent 6,575,566. 22
- S. M. Jones, S. H. Sicherer, A. W. Burks, D. Y. Leung, R. W. Lindblad, P. Dawson, A. K. Henning, M. C. Berin, D. Chiang, B. P. Vickery, *et al.* Epicutaneous immunotherapy for the treatment of peanut allergy in children and young adults. *Journal of Allergy and Clinical Immunology*, 139(4) :1242–1252, 2017. 3
- H. Kim, D. Luo, D. Link, D. A. Weitz, M. Marquez, et Z. Cheng. Controlled production of emulsion drops using an electric field in a flow-focusing microfluidic device. *Applied Physics Letters*, 91(13) :133106, 2007. 24
- P. M. Knupp. Winslow smoothing on two-dimensional unstructured meshes. *Engineering with Computers*, 15(3) :263–268, 1999. 56
- P. Lafrance. Nonlinear breakup of a laminar liquid jet. *The Physics of Fluids*, 18(4) :428–432, 1975. 152
- M. H. Land, E. H. Kim, et A. W. Burks. Oral desensitization for food hypersensitivity. *Immunology and Allergy Clinics*, 31(2) :367–376, 2011. 3
- O. Lastow et W. Balachandran. Numerical simulation of electrohydrodynamic (EHD) atomization. *Journal of electrostatics*, 64(12) :850–859, 2006. 16, 17
- H. P. Le. Progress and trends in ink-jet printing technology. *Journal of Imaging Science and Technology*, 42(1) :49–62, 1998. 22
- O. Louisnard. Cours de mécanique des fluides. 2012. 41
- M. Malo et C. Renault. Inégalité isopérimétrique. <https://perso.univ-rennes1.fr>, 2012. 20
- V. Mamet, P. Namy, et J.-M. Dedulle. Numerical modeling of flow focusing : Quantitative characterization of the flow regimes. *Physics of Fluids*, 29(9) :093606, 2017. 61
- V. Mamet, M. Matton, S. Gasser, P. Namy, et J.-M. Dedulle. Capillary oscillations in the transient mode of flow focusing : Comparison between experimental measurements and numerical results. *En préparation*, 2019. 61
- P. Marmottant et E. Villermaux. On spray formation. *Journal of fluid mechanics*, 498 :73–111, 2004. 23
- L. Martín-Banderas, M. Flores-Mosquera, P. Riesco-Chueca, A. Rodríguez-Gil, Á. Cebolla, S. Chávez, et A. M. Gañán-Calvo. Flow focusing : a versatile technology to produce size-controlled and specific-morphology microparticles. *Small*, 1(7) :688–692, 2005. 24, 25
- J. M. Montanero, N. Rebollo-Muñoz, M. A. Herrada, et A. M. Gañán-Calvo. Global stability of the focusing effect of fluid jet flows. *Physical Review E*, 83(3) :036309, 2011. 67, 73, 78, 87, 97, 129
- J. A. Nollet. *Recherches sur les causes particulières des phénomènes électriques*. Guerin, 1749. 15, 23

- J. A. F. Plateau. *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*, volume 2. Gauthier-Villars, 1873. 20
- N. R. Rabbani et P. C. Seville. The influence of formulation components on the aerosolisation properties of spray-dried powders. *Journal of controlled release*, 110(1) :130–140, 2005. 6
- L. J. W. S. Rayleigh. On the capillary phenomena of jets. *Proc. R. Soc. London*, 29(196-199) : 71–97, 1879. 11, 20, 40, 103, 106, 107, 108, 109, 111, 113, 114, 115, 118, 129, 149
- L. J. W. S. Rayleigh. Xx. on the equilibrium of liquid conducting masses charged with electricity. *The London Philosophical Magazine and Journal of Science*, 14(87) :184–186, 1882. 15, 124
- J. Rosell-Llompарт et J. Fernandez de La Mora. Generation of monodisperse droplets 0.3 to 4 microns in diameter from electrified cone-jets of highly conducting and viscous liquids. *Journal of Aerosol Science*, 25(6) :1093–1119, 1994. 11, 26
- J. Rosell-Llompарт et A. Gañán-Calvo. Method for producing an aerosol, 2000. WO 00/76673. 97
- J. Rosell-Llompарт et A. M. Gañán-Calvo. Aerosol created by directed flow of fluids and devices and methods for producing same, Aug. 3 2006. US Patent App. 10/649,376. 97
- J. Rosell-Llompарт et A. M. Gañán-Calvo. Turbulence in pneumatic flow focusing and flow blurring regimes. *Physical Review E*, 77(3) :036321, 2008. 19, 21, 22, 23, 53, 66, 97, 98
- H. A. Sampson. Peanut oral immunotherapy : is it ready for clinical practice? *The Journal of Allergy and Clinical Immunology : In Practice*, 1(1) :15–21, 2013. 3
- J. M. Schneider, N. R. Lindblad, C. D. Hendricks Jr, et J. M. Crowley. Stability of an electrified liquid jet. *Journal of Applied Physics*, 38(6) :2599–2605, 1967. 21, 115
- J. Shrimpton. Dielectric charged drop break-up at sub-Rayleigh limit conditions. *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical insulation*, 12(3) :573–578, 2005. 124
- V. Shtern et A. Barrero. Striking features of fluid flows in Taylor cones related to electrosprays. *Journal of aerosol science*, 25(6) :1049–1063, 1994. 16
- T. Si, F. Li, X.-Y. Yin, et X.-Z. Yin. Modes in flow focusing and instability of coaxial liquid–gas jets. *Journal of Fluid Mechanics*, 629 :1–23, 2009. 17, 18, 22, 23, 53
- W. A. Sirignano. *Fluid dynamics and transport of droplets and sprays*. Cambridge university press, 1999. 9
- K. Tang et A. Gomez. Generation by electrospray of monodisperse water droplets for targeted drug delivery by inhalation. *Journal of aerosol science*, 25(6) :1237–1249, 1994a. 24
- K. Tang et A. Gomez. On the structure of an electrostatic spray of monodisperse droplets. *Physics of Fluids*, 6(7) :2317–2332, 1994b. 24
- L. Tatoulian, P. Ehouarn, et P. Clémenceau. Rapport interne DBV Technologies, 2010. 53, 54
- G. Taylor. Disintegration of water drops in an electric field. *RPS*, 280(1382) :383–397, 1964. 11, 12, 14
- G. Taylor. Electrically driven jets. *Proceedings of Royal Society*, 313(1515) :453–475, 1969. 11, 21, 115

- S. Tomotika. On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 150(870) :322–337, 1935. 20
- A. S. Utada, A. Fernandez-Nieves, H. A. Stone, et D. A. Weitz. Dripping to jetting transitions in coflowing liquid streams. *Physical review letters*, 99(9) :094502, 2007. 22
- J. van der Waals. Thermodynamische theorie der kapillarität unter voraussetzung stetiger dichteänderung. *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, 13(1) :657–725, 1894a. 143
- J. van der Waals. The thermodynamic theory of capillarity under the hypothesis of a continuous variation of density. *Journal of Statistical Physics*, 20(2) :200–244, 1894b. 143
- L.-M. Vandezande. La désensibilisation allergique par voie sublinguale. *La revue de la médecine générale*, 2007. 3
- E. J. Vega, J. M. Montanero, M. A. Herrada, et A. M. Gañán-Calvo. Global and local instability of flow focusing : The influence of the geometry. *Physics of Fluids*, 22(6) :064105, 2010. 23, 70, 94, 95, 96, 97, 138, 162
- E. Villermaux. Fragmentation. *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 39 :419–446, 2007. 20
- E. Villermaux, P. Marmottant, et J. Duplat. Ligament-mediated spray formation. *Physical review letters*, 92(7) :074501, 2004. 23
- C. Weber. Zum zerfall eines flüssigkeitsstrahles. *ZAMM-Journal of Applied Mathematics and Mechanics/Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik*, 11(2) :136–154, 1931. 20
- O. Wilhelm. *Electrohydrodynamic spraying-Transport, mass and heat transfer of charged droplets and their application to the deposition of thin functional films*. PhD thesis, Diss., Eidgenössische Technische Hochschule ETH Zürich, Nr. 15406, 2004, 2004. 26
- F. A. Williams. Spray combustion and atomization. *The Physics of Fluids*, 1(6) :541–545, 1958. 18
- A. M. Winslow. Numerical solution of the quasilinear poisson equation in a nonuniform triangle mesh. *Journal of computational physics*, 1(2) :149–172, 1966. 56
- H.-D. Xi, H. Zheng, W. Guo, A. M. Gañán-Calvo, Y. Ai, C.-W. Tsao, J. Zhou, W. Li, Y. Huang, N.-T. Nguyen, et al. Active droplet sorting in microfluidics : a review. *Lab on a Chip*, 17(5) :751–771, 2017. 24, 25
- S. Xu, Z. Nie, M. Seo, P. Lewis, E. Kumacheva, H. A. Stone, P. Garstecki, D. B. Weibel, I. Gitlin, et G. M. Whitesides. Generation of monodisperse particles by using microfluidics : control over size, shape, and composition. *Angewandte Chemie*, 117(5) :734–738, 2005. 24
- X. Yang, J. J. Feng, C. Liu, et J. Shen. Numerical simulations of jet pinching-off and drop formation using an energetic variational phase-field method. *Journal of Computational Physics*, 218(1) :417–428, 2006. 72
- P. Yue, J. J. Feng, C. Liu, et J. Shen. A diffuse-interface method for simulating two-phase flows of complex fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, 515 :293–317, 2004. 43, 144, 145
- R. Zahoor. *Simulation Of Gas Focused Liquid Jets*. PhD thesis, Univerza v Novi Gorici, 2018. 87

- J. Zeleny. The electrical discharge from liquid points, and a hydrostatic method of measuring the electric intensity at their surfaces. *Physical Review*, 3(2) :69, 1914. 11, 15, 23, 26
- J. Zeleny. Instability of electrified liquid surfaces. *Physical review*, 10(1) :1, 1917. 11, 15, 23, 26

Résumé

Afin de lutter contre les allergies alimentaires, la société pharmaceutique DBV Technologies propose un patch épicutané permettant un traitement efficace, la plateforme Viaskin [®]. Pour envisager de nouveaux moyens de production de ce patch, nous avons étudié dans cette thèse le procédé d'électro-aérospray (EAS). Pour cela, nous avons développé des modèles numériques des différentes parties spatiales de l'EAS.

Dans un premier temps, nous étudions le cône de liquide formé à la sortie de buse d'EAS, en développant tout d'abord un modèle sans électricité d'aérospray (AS). L'approche diphasique est traitée à l'aide de la méthode de champ de phase (dite à interface diffuse), dans laquelle l'équation de Cahn-Hilliard gouverne la fonctionnelle d'interface. Deux régimes principaux sont identifiés : le régime Stationnaire Dynamique, où le cône de liquide est stable, et le régime Transitoire, où sa dynamique est périodique. Dans ce second régime, les résultats du modèle ont montré une évolution discontinue de la période d'oscillation du cône en fonction du débit liquide. Nous avons corrélé ce phénomène avec des oscillations capillaires du cône, et comparé avec succès les résultats des simulations numériques aux résultats expérimentaux.

Dans un second temps, la fragmentation du jet de liquide produit par le cône est étudiée numériquement, et comparée aux résultats d'analyses de stabilité linéaire produites dans la littérature. Le modèle proposé est une méthode utilisant un maillage mobile, à interface nette. Nous avons montré que la taille des gouttelettes produites variait peu en fonction de la pression de gaz appliquée, ou du potentiel électrique appliqué au jet.

L'ensemble des travaux permet de comprendre les phénomènes physiques sous-jacents à l'EAS, et à sélectionner dans une optique industrielle les modes optimaux de fonctionnement.

Mots clés : Modélisation, Mécanique des fluides, Simulation numérique, Electro-aérospray

Abstract

In order to fight against food allergies, the pharmaceutical company DBV Technologies offers an epicutaneous patch for effective treatment, the Viaskin [®] textregistered platform. To consider new ways of producing this patch, we studied in this thesis the electro-aerospray (EAS) process. For this, we have developed numerical models of the different spatial parts of the EAS.

First, we study the cone of liquid formed at the nozzle exit of EAS, first developing a model without electricity of aerospray (AS). The two-phase approach is processed using the so-called diffuse interface phase field method, in which the Cahn-Hilliard equation governs the interface functional. Two main regimes are identified : the Stationary Dynamic flow regime, where the liquid cone is stable, and the Transient regime, where its motion is periodic. In this second regime, the results of the model showed a discontinuous evolution of the oscillation period of the cone as a function of the liquid flow. We have correlated this phenomenon with capillary oscillations of the cone, and successfully compared the results of the numerical simulations to the experimental results.

In a second time, the fragmentation of the liquid jet produced by the cone is studied numerically, and compared to the results of linear stability analyzes produced in the literature. The proposed model is a method using a mobile mesh, with a net interface. We have shown that the size of droplets produced varies little according to the applied gas pressure, or the electrical potential applied to the jet.

All of this work improves the understanding of the physical phenomena underlying the EAS, and to select from an industrial point of view the optimal modes of operation.

Keywords : Numerical modeling, Fluid Dynamics, Simulation, Electro Flow Focusing