



Développement et application de diagnostics optiques pour l'analyse des mécanismes de formation et d'oxydation de suie dans des flammes stratifiées et swirlées

Maxime Bouvier

► To cite this version:

Maxime Bouvier. Développement et application de diagnostics optiques pour l'analyse des mécanismes de formation et d'oxydation de suie dans des flammes stratifiées et swirlées. Optique [physics.optics]. Normandie Université, 2021. Français. NNT : 2021NORMIR09 . tel-03517354

HAL Id: tel-03517354

<https://theses.hal.science/tel-03517354>

Submitted on 7 Jan 2022

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.

THESE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité Energie et Propulsion

Préparée au sein de l'INSA de Rouen Normandie

**Développement et application de diagnostics optiques pour
l'analyse des mécanismes de formation et d'oxydation de suie
dans des flammes stratifiées et swirlées**

**Présentée et soutenue par
Maxime BOUVIER**

**Thèse soutenue publiquement le 08/06/2021
devant le jury composé de**

M. Romain LEMAIRE	Professeur à l'Ecole de Technologie Supérieure – Université du Québec, Montréal (Canada)	Rapporteur
M. Guillaume LEGROS	Professeur à l'Université d'Orléans, France	Rapporteur
M. Luc VERVISCH	Professeur à l'INSA de Rouen Normandie, France	Examineur
M. Gilles CABOT	Professeur à l'Université de Rouen Normandie, France	Examineur
Mme. Benedetta FRANZELLI	Chargée de recherche au Laboratoire EM2C, France	Examinatrice
M. Eric Therssen	Professeur à l'Université de Lille, France	Examineur
M. Stephan ZURBACH	Responsable du Service Combustion & Aérothermie du Pôle Energie et Propulsion à SAFRAN Tech, Magny les Hameaux, France	Examineur
M. Michele BARDI	Ingénieur de recherche à l'IFP Energies nouvelles, France	Examineur
M. Frédéric GRISCH	Professeur à l'INSA de Rouen Normandie, France	Directeur de thèse
M. Jérôme YON	Maître de conférences à l'INSA de Rouen Normandie, France	Co-directeur de thèse

Thèse dirigée par Frédéric GRISCH et Jérôme YON laboratoire CORIA (UMR 6614 CNRS)

Remerciements

Ces travaux de thèse se sont déroulés d'Octobre 2017 à Juin 2021 au laboratoire CORIA et à l'INSA de Rouen Normandie. Je souhaite à ce titre remercier Armelle CESSOU et Mourad BOUKHALFA pour m'avoir accueilli et permis de mener à bien mon travail.

Je tiens tout particulièrement à remercier les deux rapporteurs de mes travaux, Romain LEMAIRE et Guillaume LEGROS, pour leur examen attentif du manuscrit aboutissant à des remarques constructives et ouvrant la voie vers de nombreuses perspectives. J'adresse aussi mes remerciements à Benedetta FRANZELLI, Eric THERSEN, Michele BARDI, Stephan ZURBACH et Luc VERVISCH pour m'avoir fait l'honneur d'examiner mes travaux. Je voudrais aussi remercier encore une fois Fengshan LIU pour sa collaboration et ses relectures de l'article de LII.

Je souhaite maintenant sincèrement remercier mes encadrants de thèse au laboratoire Jérôme YON, Frédéric GRISCH et Gilles CABOT. Je pense que la qualité scientifique de vos travaux n'est plus à prouver et échanger avec vous a toujours été très enrichissant pour moi. Je souhaite aussi et surtout vous remercier pour vos qualités humaines et votre soutien indéfectible qui a compté pour beaucoup dans la réussite de ces travaux de recherche.

Il me faut maintenant remercier les personnes des différents services du laboratoire qui ont largement contribué à la réussite des travaux entrepris au cours de cette thèse. Je vais commencer par le service métrologie et plus particulièrement Gilles GODARD avec qui les discussions ont toujours été fructueuses tant sur le plan scientifique que spirituel (?!), Franck LEFEBVRE qui a toujours l'outil qu'il faut, quand il faut, la ou il faut et Alexis VANDEL grâce à qui les mesures de PIV ont été une partie de plaisir. Je voudrais ensuite remercier les membres de l'atelier qui font un travail tant remarquable qu'indispensable et sans qui les expérimentateurs auraient du souci à se faire. J'adresse mes remerciements à tous les membres des services informatique et administratif qui ont été d'une grande aide durant ces trois ans.

Il me faut également mentionner et remercier les doctorants du laboratoire devenus amis et sans qui ces trois années auraient été bien moins drôles : Sylvain L. pour le massage des jambes quand j'étais au plus mal et pour avoir partagé son bureau avec moi, Yacine qui va bientôt lancer son exploitation de permaculture low-tech, Clément P. (on y va finalement à cette fête de la framboise ?), Aurélien avec qui la collaboration expérimentale sur SIRIUS aura commencée sur les chapeaux de roue (petite PiMax partie trop tôt), Andrei, Mostafa, Clément B., Edouard, Eliot, José, Guillaume... ils sont trop nombreux pour tous les citer. J'adresse mes remerciements chaleureux à Benoit, Martine, Pradip, Marcos et bien sûr Félix qui a tant œuvré à la mise en place du banc de combustion.

Comment ne pas remercier mes amis avec lesquels j'ai eu la chance partager des moments de détente indispensables durant ces trois années : les anciens de l'ESITech, la team Pablo et les « copains Rouennais ». Mention spéciale à Simon qui cauchemarde encore probablement d'une retournée de Donatelli à la 90ème.

Il me reste à remercier ma famille et plus particulièrement mes parents ainsi que ma sœur, qui m'ont toujours soutenu dans mes études et en dehors. Enfin, ces dernières lignes iront à Alice qui a été mon premier soutien au quotidien durant ces trois années dans les bons comme dans les mauvais moments. Tu m'as donné la force d'aller au bout de ces travaux de thèse et je ne pourrai jamais assez te remercier pour cela.

Résumé

L'augmentation du trafic aérien s'accompagne d'un durcissement de la réglementation visant à limiter les émissions de gaz à effet de serre et de polluants. Parmi ces polluants, on retrouve les particules de suie qui pourraient compter pour un tiers de la contribution de l'aviation au réchauffement climatique. L'OACI (Organisation de l'Aviation Civile Internationale) a adopté en 2020 une nouvelle formulation de la norme d'émissions particulières autorisant la certification des moteurs aéronautiques. Même si cette nouvelle réglementation entrera en vigueur en 2023 et ne sera pas plus restrictive que l'ancienne, elle témoigne d'un intérêt grandissant pour la réduction des émissions des particules de suie rejetées dans l'environnement. C'est dans ce cadre qu'a été lancé le projet européen SOPRANO dont les activités scientifiques de ma thèse font partie intégrante. L'objectif de ce projet est d'accroître la compréhension de la formation des particules de suie dans les chambres de combustion aéronautiques. La contribution de ma thèse à ce projet européen concerne la caractérisation de la formation et de l'oxydation des particules de suie produites dans des flammes aéronautiques caractérisées par une injection swirlée et stratifiée. Pour appréhender le rôle joué par ces deux paramètres, un brûleur académique, dont l'architecture a été simplifiée par rapport à celle des injecteurs aéronautiques de nouvelle génération (multipoint), a été conçu et fabriqué, puis utilisé dans ma thèse. Plusieurs conditions opératoires, présentant des productions de suie différentes, ont été définies en faisant varier les valeurs des nombres de swirl et la stratification d'une flamme de prémélange éthylène / air à pression atmosphérique. La formation des particules de suie a principalement été étudiée grâce à l'utilisation de diagnostics optiques. Tout d'abord, une caractérisation des grandeurs clés intervenant dans les processus de formation et de croissance des suies a été réalisée : l'aérodynamique des flammes a été étudié par PIV, la position du front de flamme par PLIF-OH, la formation des précurseurs de suie (aromatiques) par PLIF-HAP et la température de flamme par thermocouple. Concernant les particules de suie, la fraction volumique et le diamètre des particules primaires ont été mesurées par LII et la concentration en nombre et le diamètre des particules par diffusion élastique angulaire ainsi que par prélèvement et analyse SMPS. Une analyse d'un échantillon de particules de suie prélevées directement dans la flamme a également été réalisée par microscopie électronique afin d'obtenir des informations de taille et de microstructure. Plusieurs de ces diagnostics optiques ont bénéficiés de développements importants au cours de ma thèse (mise en œuvre et prise en compte de la durée d'ouverture de la caméra pour la LII auto-compensée, analyse spectrale de la diffusion, diffusion angulaire 2D résolue en temps). La combinaison de ces techniques de mesure a en outre permis une étude détaillée des zones de formation des précurseurs de suie, de nucléation, de croissance, d'agrégation et enfin d'oxydation des particules de suie. Un schéma descriptif de la formation et de l'oxydation des particules de suie dans les flammes swirlées et stratifiées étudiées a donc finalement été proposé.

Abstract

Air traffic increase comes along with tighter regulations aimed at reducing the emissions of greenhouse gases and pollutants. Among these pollutants are soot particles, which could account for a third of aviation contribution to global warming. The ICAO (International Civil Aviation Organization) adopted in 2020 a new formulation of the particulate emissions standard allowing the certification of aeronautical engines. Although this new regulation will come into effect only in 2023 and will not be more restrictive than the former one, it reflects a growing interest in reducing soot emissions. The research undertaken within the present Ph.D. work is part of the SOPRANO European project whose goal is to improve our understanding of the soot formation processes in aircraft combustion chambers. The contribution of this thesis to this European project is to analyse the formation and oxidation of soot particles produced in swirled and stratified premixed flames. In order to understand the role of these two physical quantities, an academical burner, whose architecture has been simplified compared to the new generation of aeronautical fuel injectors (multi-point), has been designed and built, and then used in this thesis. Several operating conditions, with various soot productions, were defined by varying the values of the swirl and stratification numbers of an ethylene/air premixed flame at atmospheric pressure. The formation of soot particles was mainly studied with innovative optical diagnostics. First, a characterization of the key variables involved in the soot formation and growth processes was performed: the aerodynamics of the flames was studied by PIV, the combustion reaction by PLIF-OH, the formation of soot precursors (aromatics) by PLIF-HAP and the flame temperature by thermocouple. For the soot particles, the volume fraction and diameter of the primary particles were measured by LII and the number concentration and particle diameter by the angular elastic scattering technique and by a sampling combined with a SMPS ex-situ analysis. An analysis of a sample of soot particles probed directly inside the flame was also performed by electron microscopy to obtain size and microstructure information. Several of these optical diagnostics benefited from significant development which consisted in the implementation and consideration of camera gate duration for auto-compensating LII, spectral analysis of light scattering from soot particles, and time-resolved 2D angular scattering. The combination of these measurement techniques further allowed a detailed study of the areas of soot precursor formation, nucleation, growth, aggregation, and oxidation of soot particles, resulting in the proposal of a descriptive scheme of soot particle formation and oxidation in swirled and stratified flames.

Table des matières

NOMENCLATURE.....	1
CHAPITRE 1. INTRODUCTION ET CONTEXTE.....	4
CHAPITRE 2. ETAT DE L'ART : LES PARTICULES DE SUIE ET LES TECHNIQUES DE MESURE ASSOCIEES.....	9
2.1 FORMATION ET CONSOMMATION DES PARTICULES DE SUIE.....	9
2.1.1 <i>Formation et croissance des précurseurs</i>	9
2.1.2 <i>Nucléation</i>	10
2.1.3 <i>Croissance de surface</i>	10
2.1.4 <i>Coagulation : coalescence et agrégation</i>	10
2.1.5 <i>Oxydation</i>	12
2.2 CARACTERISATION DES PARTICULES DE SUIE	12
2.2.1 <i>Morphologie et taille</i>	12
2.2.2 <i>Composition chimique et propriétés optiques</i>	15
2.3 FLAMME SWIRLEE ET/OU STRATIFIEE ET PRODUCTION DE SUIE.....	16
2.3.1 <i>Intérêt du swirl et de la stratification en combustion</i>	17
2.3.2 <i>Production de suie en flamme laminaire</i>	18
2.3.3 <i>Production de suie en combustion turbulente non-prémélangée</i>	22
2.3.4 <i>Production de suie en combustion turbulente prémélangée</i>	25
2.3.5 <i>Effet de la pression</i>	26
2.3.6 <i>Conclusion</i>	27
2.4 DESCRIPTION GLOBALE DES TECHNIQUES DE CARACTERISATION DES SUIES.....	27
2.4.1 <i>Taille des agrégats</i>	27
2.4.2 <i>Diamètre des particules primaires</i>	28
2.4.3 <i>Microstructure, composition chimique et propriétés optiques</i>	29
2.4.4 <i>Morphologie</i>	30
2.4.5 <i>Concentration et masse</i>	30
2.5 DESCRIPTION APPROFONDIE DES TECHNIQUES DE MESURES UTILISEES POUR L'ANALYSE DES SUIES AU COURS DE LA THESE	31
2.5.1 <i>Sélection des techniques de mesure</i>	31
2.5.2 <i>Technique ex-situ : SMPS</i>	32
2.5.3 <i>Microscope électronique à transmission</i>	33
2.5.4 <i>Techniques optiques in-situ</i>	33
2.6 TECHNIQUES DE MESURES UTILISEES DANS LA THESE POUR L'ANALYSE DES FLAMMES ET DES PRECURSEURS DE SUIE	50
2.6.1 <i>Sélection des techniques de mesure</i>	50
2.6.2 <i>Fluorescence induite par laser</i>	50
2.6.3 <i>Vélocimétrie par image de particules (PIV)</i>	54
2.6.4 <i>Mesures de température par thermocouple</i>	55
CHAPITRE 3. DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX ET PROCEDURES DE TRAITEMENT DES DONNEES BRUTES	57
3.1 BANC DE COMBUSTION SIRIUS	57
3.1.1 <i>Architecture du brûleur</i>	57
3.1.2 <i>Contrôle et alimentation de l'installation</i>	58
3.1.3 <i>Points de fonctionnement</i>	59
3.2 TECHNIQUES DE MESURE	60
3.2.1 <i>PIV</i>	60
3.2.2 <i>PLIF-OH</i>	62
3.2.3 <i>PLIF-HAP</i>	64
3.2.4 <i>Mesure de température</i>	64
3.2.5 <i>LII</i>	67
3.2.6 <i>Diffusion angulaire à haute cadence</i>	68

3.2.7 Diffusion spectrale	69
3.2.8 Mesures ex-situ par prélèvement.....	70
3.2.9 Couplage simultané des techniques de mesure optiques.....	71
CHAPITRE 4. DEVELOPPEMENT DES TECHNIQUES OPTIQUES	75
4.1 INTRODUCTION	75
4.2 INCANDESCENCE INDUITE PAR LASER AUTOCOMPENSEE	75
4.2.1 Introduction et motivation	75
4.2.2 Etalonnage	76
4.2.3 Acquisition et post-traitement des images pour les mesures de $f\nu$	77
4.2.4 Acquisition et post-traitement des images pour les mesures de Dp	82
4.2.5 Mesure de taille des sphérules primaires des suies par TiRe-LII.....	87
4.2.6 Etude de l'impact de la largeur temporelle de la porte de la camera sur $f\nu$	90
4.2.7 Conclusion sur les développements de la LII	92
4.3 DIFFUSION ANGULAIRE HAUTE CADENCE EN DEUX DIMENSIONS.....	93
4.3.1 Description de la technique.....	93
4.3.2 Procédure d'analyse des données	94
4.3.3 Mise au point des caméras	95
4.3.4 Correction de la distorsion	95
4.3.5 Validation de la méthode sur un aérosol de référence	98
4.3.6 Evaluation de l'incertitude pour les mesures en flamme et choix du couple d'angles	102
4.3.7 Réduction de l'incertitude (filtrage du bruit).....	103
4.3.8 Résultats.....	104
4.3.9 Conclusions et perspectives.....	107
4.4 DIFFUSION SPECTRALE	108
4.4.1 Contexte et motivations du développement	108
4.4.2 Principe théorique	109
4.4.3 Points de fonctionnement étudiés.....	111
4.4.4 Analyse des données brutes et résultats	113
4.4.5 Conclusions sur la diffusion spectrale	122
CHAPITRE 5. ANALYSE DES MECANISMES DE FORMATION DES PARTICULES DE SUIE	123
5.1 CHAMPS DE VITESSE	123
5.2 ANALYSE DES ZONES REACTIVES	127
5.3 MESURES DE TEMPERATURE	130
5.4 PRECURSEURS DE SUIE	132
5.4.1 Mesures non-couplées	132
5.4.2 Interactions avec l'écoulement et les distributions spatiales de OH et de température	134
5.5 FRACTIONS VOLUMIQUES DE SUIE	136
5.5.1 Champs moyens	136
5.5.2 Champs instantanés.....	138
5.5.3 Corrélations avec l'écoulement et les distributions spatiales de OH, des précurseurs et de la température	139
5.6 DIAMETRE DES PARTICULES PRIMAIRES.....	145
5.7 DIAMETRE ET CONCENTRATION EN NOMBRE DES AGREGATS DE SUIE PAR DIFFUSION ANGULAIRE 2D A HAUTE CADENCE	148
5.7.1 Analyse des diamètres des agrégats.....	148
5.7.2 Exploitation de l'amplitude A pour la détermination de la concentration en nombre	153
5.7.3 Calcul et exploitation des distributions moyennées en temps	157
5.7.4 Comparaison avec les mesures ex-situ par SMPS.....	160
5.8 SCENARIO DE FORMATION ET DE CONSOMMATION DES PARTICULES DE SUIE DANS LE BRULEUR SIRIUS.....	163
CHAPITRE 6. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	167
6.1 BILAN DES RESULTATS OBTENUS.....	167

6.2 PERSPECTIVES	169
ANNEXES	173
ANNEXE 1. SOUDURE DE THERMOCOUPLE	173
ANNEXE 2. FONCTION DE TRANSFERT DU SYSTEME DE DETECTION UTILISE POUR LA DIFFUSION SPECTRALE	173
ANNEXE 3. MOYENNES TEMPORELLES DES CHAMPS DE CONCENTRATION EN NOMBRE	174
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	175

Nomenclature

Acronymes	
HAP	Hydrocarbure Aromatique Polycyclique
SN	Smoke Number
LES	Large Eddy Simulation
TEM	Transmission Electron Microscopy
HACA	Hydrogen Abstraction Acetylene Addition
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
OC	Organic Carbon
BC	Black Carbon
TC	Total Carbon
EC	Elemental Carbon
MAC	Mass Absorption Cross section
IRZ	Inner Recirculation Zone
LDV	Laser Doppler Velocimetry
(AC-)LII	(Auto-Compensating) Laser-Induced Incandescence
TiRe-LII	Time-Resolved LII
(P)LIF	(Planar) Laser-Induced Fluorescence
<i>ppm</i>	Parts per million
<i>ppb</i>	Parts per billion
ISL	Inner Shear Layer
MSL	Mid Shear Layer
OSL	Outer Shear Layer
PIV	Particle Image Velocimetry
DMA	Differential Mobility Analyzer
DMS	Differential Mobility Spectrometer
ELPI	Electrical Low Pressure Impactor
SEM	Microscopie Electronique à Balayage
HIM	Microscopie aux Ions Hélium
SAXS	Small Angle X-ray Scattering
RDG-FA	Rayleigh-Debye-Gans theory for Fractal Aggregates
SANS	Small Angle Neutron Scattering
OBG	Optical Band Gap
AAE	Ångström Exponent
CPMA	Centrifugal Particle Mass Analyzer
PPS	Pegasor Particle Sensor
TEOM	Tapered Element Oscillating Microbalance
MAE	Modulated Absorption Emission
SFR	Swirl Flow Ratio
SR	Stratification Ratio
DRASC	Diffusion Raman Anti-Stokes Cohérente
ROI	Region Of Interest
HAB	Height Above the Burner

Grandeurs physiques

D_p	Diamètre des particules primaires
R_p	Rayon des particules primaires
N_p	Nombre de particules primaires par agrégat
D_{me}	Diamètre de mobilité électrique
D_m	Diamètre de mobilité
D_a	Diamètre aérodynamique
D_{st}	Diamètre de Stokes
D_{ev}	Diamètre équivalent volume
R_g	Rayon de Giration
D_g	Diamètre de giration
$D_{g,geo}$	Diamètre médian (ou géométrique) de la fonction densité de probabilité log-normale
$\sigma_{g,geo}$	Ecart-type géométrique de la fonction densité de probabilité log-normale
D_f	Dimension fractale
k_f	Préfacteur fractal
m	Indice de réfraction complexe
C_s	Concentration massique de suie
K_{abs}	Coefficient d'absorption
K_{ext}	Coefficient d'extinction
K_{vv}	Coefficient de diffusion
f_v	Fraction volumique de suies
$E(m)$	Fonction d'absorption
$F(m)$	Fonction de diffusion
N_{agg}	Concentration en nombre
C_{sca}	Section efficace de diffusion totale
C_{abs}	Section efficace d'absorption
C_{ext}	Section efficace d'extinction
$dC_{sca}/d\Omega$	Section efficace de diffusion angulaire
k	Norme du vecteur d'onde
x_p	Paramètre de taille
V	Volume d'une particule
q	Norme du vecteur de diffusion
I_{vv}	Intensité diffusée en polarisation verticale-verticale
I_{hh}	Intensité diffusée en polarisation horizontale-horizontale
I_{ext}	Intensité éteinte
R_{vv}	Rapport de dissymétrie
L_s	Luminance des suies
L_{BB}	Luminance de corps noir
T_s	Température des suies
$T_{s,eff}$	Température effective des suies
l_v	Epaisseur de la nappe laser en LII
α_M	Coefficient d'accommodation massique
α_T	Coefficient d'accommodation thermique
S_{LII}	Signal collecté en LII
τ	Facteur d'étalonnage de la détection en LII
λ_s	Longueur d'onde de détection en LII
S_{ref}	Signal de référence d'étalonnage de la LII
L_{ref}	Luminance d'étalonnage de référence de la LII
Δt_d	Temps d'ouverture des caméras en LII
t_d	Délai d'ouverture des caméras en LII

T_{peak}	Température maximale des suies en TiRe-LII
T_{gaz}	Température des gaz en TiRe-LII
$f_{v,CC}$	Fraction volumique de suie avec prise en compte de la décroissance temporelle de la température
$f_{v,NC}$	Fraction volumique de suie sans prise en compte de la décroissance temporelle de la température
T_g	Température des gaz
Φ_i	Richesse de l'écoulement interne
Φ_o	Richesse de l'écoulement externe
Φ_g	Richesse globale
P	Puissance de flamme
m_o	Débit massique dans l'écoulement externe
m_i	Débit massique dans l'écoulement interne
Ω	Indice d'intermittence
$T_{thermocouple}$	Température déterminée par mesure thermocouple
V_m	Volume de mesure
R_g^*	Rayon de giration équivalent monodisperse
A	Terme nommée « amplitude » de l'intensité diffusée
S_A	Signal proportionnel à A
T	Terme de taille du signal de diffusion
θ_{ref}	Angle de diffusion de référence
m_a	Masse d'un agrégat
ρ_{pp}	Masse volumique des particules primaires
f	Facteur de forme utilisé pour la diffusion élastique par les suies
S_{xy}	Taux de cisaillement local dans le plan xy
u'_x	Fluctuations de vitesses selon l'axe x
u'_y	Fluctuations de vitesses selon l'axe y
r	Position radiale
α	Facteur d'étalonnage de N_{agg}

Chapitre 1. Introduction et contexte

Les rapports du GIEC (Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat) compilent les résultats des récentes avancées scientifiques concernant l'impact sur le climat de l'activité humaine, le dernier datant de 2014 [1]. Ce rapport projette que, si les émissions de gaz à effet de serre continuent d'augmenter au même rythme qu'aujourd'hui, la température moyenne de l'atmosphère terrestre pourrait croître de 3 à 5 degrés en 2100 par rapport à la moyenne de la période 1986-2005. Les prévisions des températures calculées par une multitude de modèles sont résumées sur la Figure 1 (a) pour deux scénarios : l'un dénommé RCP8.5 et l'autre RCP2.6. Le scénario RCP8.5 (en rouge) simule un maintien de l'augmentation de l'impact de l'activité humaine sur le climat de manière similaire à aujourd'hui, ce qui se traduit par un forçage radiatif global de $+8,5 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ en 2100. Le scénario RCP2.6 (en bleu) simule quant à lui une diminution drastique et immédiate de l'impact de l'activité humaine sur le climat, réduisant le forçage radiatif global à $+2,6 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ en 2100. Malgré les effets dévastateurs d'un changement de température moyenne du globe (montée des eaux, sécheresses, événements climatiques extrêmes, acidification des océans...) et de ses conséquences possibles sur l'humanité (réfugiés climatiques, famines, déstabilisations sociales...), la consommation d'énergies fossiles, principale responsable des émissions de gaz à effet de serre et comptant pour 84% du mix énergétique mondial, continue d'augmenter (voir Figure 1 (b)).

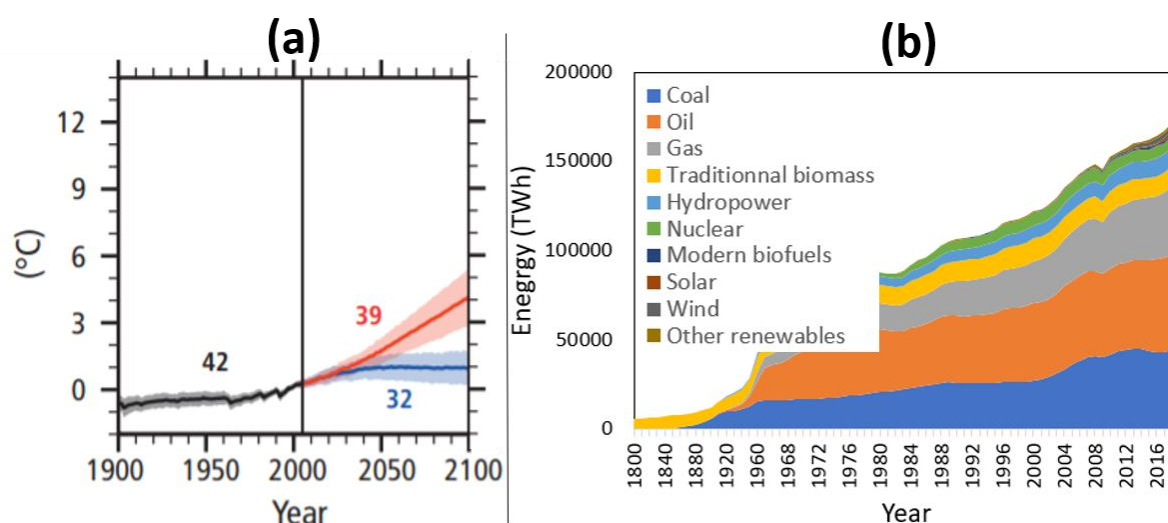


Figure 1 : (a): Prévisions des modèles climatiques pour les scénarios RCP8.5 (rouge) et RCP2.6 (bleu) [1]. Les nombres en noir, bleu et rouge correspondent au nombre de modèles utilisés pour définir les intervalles autour des courbes. (b) Part des différents modes dans la production mondiale d'énergie de 1800 à 2019 [2].

Nous venons d'évoquer les gaz à effet de serre comme principaux responsables du réchauffement climatique mais un autre composé produit lors de la combustion de produits hydrocarbonés a un impact fort sur le forçage radiatif du système Terre : les suies. En effet, pendant longtemps, les effets des suies sur le forçage radiatif étaient considérés comme négligeables comparé à ceux des gaz à effet de serre comme le dioxyde de carbone et le méthane. Cependant, les récentes études montrent que l'impact des particules de suie sur le réchauffement climatique est beaucoup plus important que ce que l'on imaginait au point qu'elles seraient le deuxième contributeur d'origine anthropique au réchauffement climatique, juste derrière le dioxyde de

carbone [3, 4]. En effet, les particules de suie en suspension dans l'atmosphère ou piégées dans des gouttes ou cristaux au sein des nuages absorbent fortement le rayonnement solaire (voir Figure 2). Elles diminuent également l'albédo des surfaces sur lesquelles elles se déposent contribuant ainsi à la fonte des glaces aux pôles mais également à des latitudes plus faibles (glaciers d'altitude) où le rayonnement solaire est plus élevé.

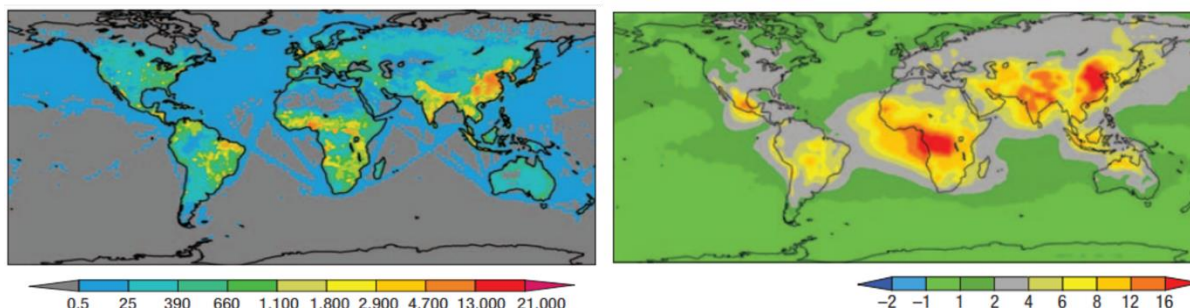


Figure 2 : Emissions des particules de suie à l'échelle mondiale en tonne/an sur la période 2001-2003 (gauche) [5]. Forçage radiatif induit par les particules de suie dans l'atmosphère en W/m^2 sur la même période (droite) [6].

Les suies sont produites lors de la combustion incomplète de matière carbonée. Dans un monde où la combustion est le principal vecteur de production d'énergie, les sources d'émission de suie sont extrêmement variées (voir Figure 3). Juste derrière le secteur tertiaire (principalement four et chauffage domestique), on retrouve les transports au deuxième rang des secteurs produisant la plus grande quantité de particules de suie. Cette catégorie comprend les véhicules routiers et non-routiers (engins de chantier, bateaux...) ainsi que les transports aériens. En plus des émissions brutes de particules de suie sous forme d'aérosol dans l'atmosphère (effets cités ci-dessus), les suies émises par les avions impactent la balance radiative terrestre en favorisant la formation, dans les sillages des aéronefs, de cirrus pouvant atteindre plusieurs kilomètres de haut et de long. Il a été démontré que les particules de suie jouaient le rôle de noyau de condensation nécessaire à la formation de cristaux de glace donc, à plus grande échelle, de cirrus [7]. En Europe, on estime que 10 % de la couverture nuageuse provient de ce phénomène et que cela augmenterait le forçage radiatif jusqu'à $0,3 \text{ W/m}^2$ [8]. Cet effet, couplé aux émissions de CO_2 et à d'autres phénomènes physico-chimiques (principalement la transformation des NO_x en ozone via des réactions chimiques atmosphériques), porte l'impact de l'aviation à hauteur de 3,5 % du forçage radiatif terrestre provoqué par l'activité humaine en 2011 [9].

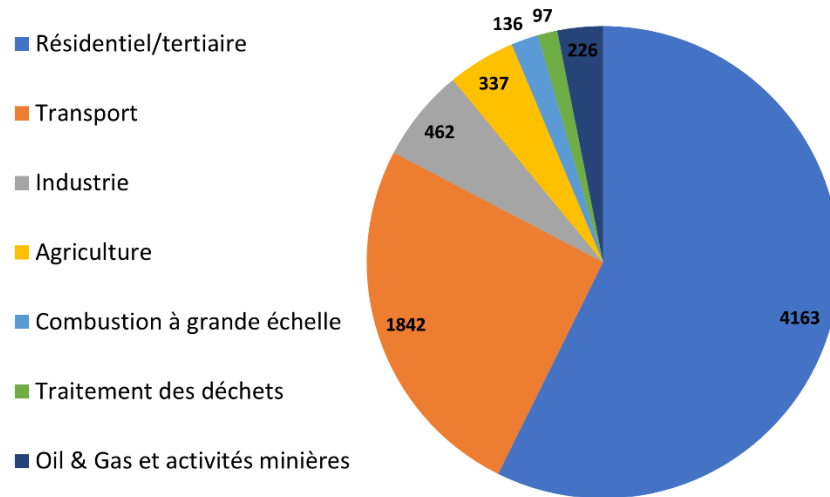


Figure 3 : Emissions mondiales de suie par secteur d'activité en kT [10].

En plus de leur effet sur le climat, les particules de suie ont également un impact significatif sur la santé de la population en provoquant une augmentation des risques de maladies cardiovasculaires et de cancers des poumons [11]. En effet, les particules de suie véhiculent des molécules d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) adsorbées à leur surface dont certaines sont des cancérigènes avérés. Un facteur aggravant les risques sanitaires liés aux particules de suie est leur taille. En effet, les particules de suie sont des nanoparticules et cette caractéristique leur permet de pénétrer dans l'arbre respiratoire et de franchir les différentes barrières de l'organisme. Elles peuvent ainsi se retrouver dans le sang en ayant franchi les membranes pulmonaires.

Pour ces différentes raisons, des normes de régulation ont été mises en place ces dernières décennies dans la plupart des secteurs industriels émetteurs. On peut prendre pour exemple la norme « Euro 6 » qui impose des limites maximales d'émissions de particules fines pour le transport routier au sein de l'Union européenne [12]. Pour ce qui est de l'aviation, secteur qui nous intéresse tout particulièrement dans ma thèse, les normes imposées par l'Organisation de l'Aviation Civile Internationale (OACI ou ICAO en anglais) concernent actuellement des mesures de « Smoke Number » SN qui quantifie le changement de réflectance d'un filtre avant et après dépôt de suie de 16,2 kg par m^2 de surface de filtre [13] :

$$SN = 100 (1 - R_s/R_f) \quad (1)$$

avec R_s la réflectance du filtre après dépôt et R_f avant dépôt. Cet indicateur est sommaire. En effet, même si ce dernier est parfois utilisé pour évaluer la densité de particules ou leur fraction massique [14], il ne s'agit en aucun cas d'une mesure directe et précise. Elle n'est pas différentiante en taille et la réponse de ce procédé de mesure dépend de la composition des particules (indice optique variable). Ainsi, en 2010, le Comité de Protection Environnemental de l'Aviation (CEAP), comité technique au sein de l'OACI, a décidé de travailler sur de nouvelles normes qui inclueront des mesures de concentrations en nombre et massique de suie. En effet, des appareils de mesure ont été développés et permettent maintenant d'accéder à ces grandeurs physiques. Cette norme a été développée pendant 10 ans et a été adoptée en Janvier 2020 par l'OACI. Elle concerne les moteurs dont la poussée est supérieure à 26,7 kN et entrera en vigueur en Janvier 2023. La Figure 4 détaille les valeurs limites de concentration en fonction de la poussée du moteur. Ces nouveaux seuils constituent une nouvelle définition de la norme dont la sévérité reste inchangée : les

moteurs qui passaient les certifications en termes de SN les passeront également avec cette nouvelle norme. Néanmoins, cette nouvelle définition montre que les particules de suie rentrent pour l'OACI dans les polluants à réduire significativement dans le futur. Pour cette raison, il est urgent pour les motoristes aéronautiques d'anticiper des limites plus sévères qui pourraient être instaurées d'ici quelques années.

C'est dans ce contexte que le projet européen SOPRANO a vu le jour (plus d'informations sur <https://www.soprano-h2020.eu/>). L'objectif principal de ce projet de recherche est de progresser dans la compréhension de la formation des particules de suie et de leurs effets radiatifs dans des chambres de combustion aéronautiques. Ce projet rassemble les principaux acteurs industriels (SAFRAN, MTU, Rolls Royce, Avio Aero, General Electric Deutschland) et scientifiques (CORIA, CERFACS, KIT, DLR, UNIFI, ONERA, Loughboroug University et Imperial College) européens de ce secteur. Le rôle de ma thèse au sein du programme SOPRANO est d'étudier la formation des suies dans un brûleur académique dont l'architecture s'apparente à celle des nouveaux injecteurs aéronautiques de type Low - NOx. Ce brûleur, appelé SIRIUS, a pour vocation l'étude et la validation de codes numériques simulant les phénomènes physiques qui gouvernent la production de suie sans subir les inconvénients d'une combustion complexe (atomisation, évaporation, instabilités, fortes puissances, turbulence élevée). Pour cette raison, la géométrie du brûleur est simplifiée en comparaison des injecteurs réels. La flamme ainsi produite se situe entre celles produites par des brûleurs laminaires académiques pour lesquels les flammes sont très éloignées des injecteurs aéronautiques réels et des flammes plus proches de configurations semi-industrielles comme celles décrites par Geigle et al. [15]. L'objectif est donc d'étudier les processus de formation des suies au sein d'une flamme permettant de décomposer spatialement et temporellement les processus physico-chimiques relatifs à la formation de ces particules de suie tout en restant proche d'une architecture de combustion industrielle. Cette décomposition des mécanismes physico-chimiques est un avantage important pour obtenir une compréhension détaillée du mécanisme de formation des suies au niveau expérimental, mais également pour la validation des modèles de suies utilisés dans les simulations numériques LES. En effet, les résultats obtenus sur le brûleur SIRIUS ont vocation à être utilisés dans le cadre du développement de modèles prédictifs de production de suie pour la CFD en conditions réactives. Par ailleurs, cette configuration simplifiée représente un avantage du point de vue du développement de systèmes de mesure innovants, ce qui est l'un des objectifs du projet SOPRANO et de mon travail de thèse. En effet, cette flamme académique offre des conditions favorables pour l'adaptation en flamme turbulente de diagnostics de mesure habituellement utilisés en flamme laminaire.

Ce manuscrit synthétise les travaux réalisés pendant ma thèse. Il s'articule en quatre chapitres. Une présentation bibliographique sur les particules de suie, leur formation et les techniques permettant leur caractérisation est d'abord proposée dans le chapitre 1. Le chapitre 2 décrit les moyens expérimentaux développés et utilisés, incluant le banc de combustion SIRIUS et les dispositifs de mesure. Le chapitre 3 propose trois développements spécifiques de techniques de mesure optiques qui ont été réalisés pendant ma thèse. Enfin, le dernier chapitre est consacré à l'analyse de la formation et de la production de suie dans le brûleur SIRIUS. Une dernière section permettra de conclure sur les travaux réalisés pendant ma thèse et d'ouvrir des possibilités de perspectives.

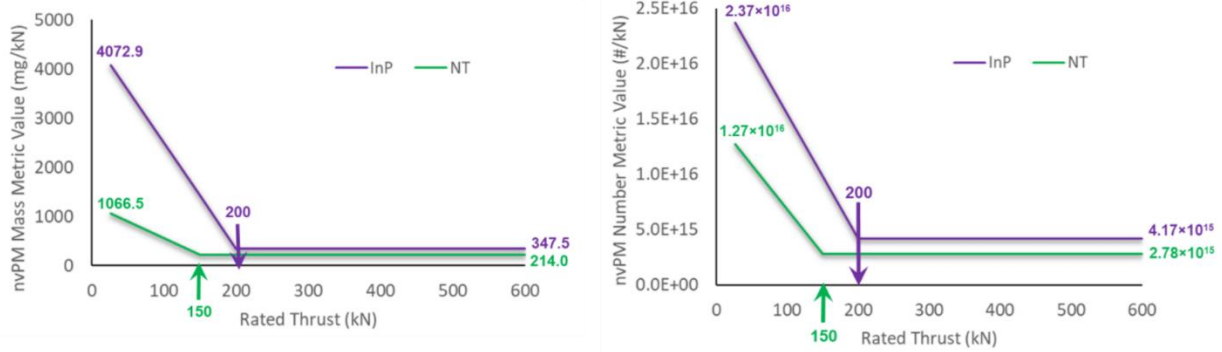


Figure 4 : Limitations de la norme qui entrera en vigueur en Janvier 2023 et qui concerne les moteurs dont la poussée est supérieure à 26,7 kN. Limites en concentration massique (à gauche) et en nombre (à droite) de particules de suie. InP (courbes violettes) : moteurs en production en 2020. NT (courbes vertes) : nouveaux designs (Source : https://www.icao.int/environmental-protection/Pages/LAQ_TechnologyStandards.aspx)

Chapitre 2. Etat de l'art : les particules de suie et les techniques de mesure associées

2.1 Formation et consommation des particules de suie

La formation des particules de suie est un processus de transformation de carburants hydrocarbonés en aérosols de particules carbonées prenant la forme d'agrégats de particules dites « primaires » aussi appelées « monomères ». Cette conversion met en jeu des réactions chimiques complexes ainsi que des interactions physiques à l'échelle nanométrique. Les différentes étapes de la formation et de la consommation des particules de suies sont introduites dans cette partie.

2.1.1 Formation et croissance des précurseurs

Les températures élevées rencontrées au sein d'une flamme et l'absence d'oxygène (combustion riche) favorisent la décomposition thermique (ou pyrolyse) des espèces chimiques. Le combustible, présent en grande quantité dans ces zones riches, est décomposé en sous-produits qui vont ensuite réagir pour former les précurseurs de suies. Les précurseurs sont souvent désignés comme pétrogéniques s'ils sont présents dans le carburant ou pyrogéniques s'ils sont formés pendant la combustion. Plusieurs espèces gazeuses hypothétiquement précurseuses de particules de suie ont été répertoriées dans la littérature il y a quelques dizaines d'années, notamment les polyacétylènes [16], des espèces ioniques [17] ou les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) [18]. Il existe à ce jour un consensus autour des HAP qui s'est établi à la suite de nombreuses études expérimentales et numériques. Les mécanismes réactionnels aboutissant à la formation des premiers cycles aromatiques mettent principalement en jeu de petites molécules aliphatiques (C_4H_3 , C_4H_5 , C_5H_5 , C_3H_3) et l'acétylène (C_2H_2) pour former des aromatiques monocycliques comme le benzène ou le phényl ou des di-aromatiques comme le naphthalène [19]. Ces composés possédant un faible nombre de cycles se transforment ensuite en HAP plus lourds. Plusieurs voies réactionnelles ont été proposées pour expliquer ce processus. La plus connue est décrite par le processus « HACA » (H-abstraction- C_2H_2 -addition) [20] dont on distingue deux étapes : la première où un site radicalaire est formé sur une molécule aromatique par libération d'un atome d'hydrogène (équation (2)) puis la seconde où ce site est comblé par une molécule d'acétylène (équation (3)).



Cependant, l'acétylène n'est pas la seule espèce chimique permettant la croissance des HAP. Par exemple, Melius et al. [21] et Castaldi et al. [22] ont démontré par la modélisation et l'expérience l'existence de réactions chimiques mettant en jeu des cyclopentadiényles expliquant les concentrations élevées de HAP mesurées en flamme. D'un point de vue macroscopique, de nombreux travaux expérimentaux et numériques ont permis d'étudier la cinétique chimique de la pyrolyse des carburants, permettant une identification des espèces chimiques produites tant au niveau des sous-produits directs que des recombinaisons en HAP. On peut citer les études de Tanzawa et al. [23] et Sanchez et al. [24] pour l'éthylène et de Jin et al. [25], Roesler et al. [26] et Hidaka et al. [27] pour le méthane. On retrouve dans les deux cas l'acétylène, l'éthylène et des composés aliphatiques de faibles masses moléculaires comme principaux sous-produits de la décomposition du carburant et des petits HAP à faible nombre de noyaux benzéniques comme le naphthalène, l'acénaphthylène ou le phénanthrène.

2.1.2 Nucléation

La formation des premières particules solides à partir des HAP en phase gazeuse est appelée nucléation. Cette étape du processus de formation des particules de suie est, à ce jour, la moins comprise. Deux principales voies réactionnelles sont actuellement à l'étude. La première [28, 29] suppose que les HAP grossissent jusqu'à atteindre une taille pour laquelle il leur est possible de former un dimère lors d'une collision avec un autre HAP, puis un trimère lors d'une autre collision et ainsi de suite jusqu'à la formation d'une particule solide (Figure 5 (a)). La seconde voie [30, 31] suggère une nucléation purement chimique dans laquelle les HAP s'interconnectent en grappes désordonnées grâce à des chaînes aliphatiques puis se graphitisent (Figure 5 (b)).

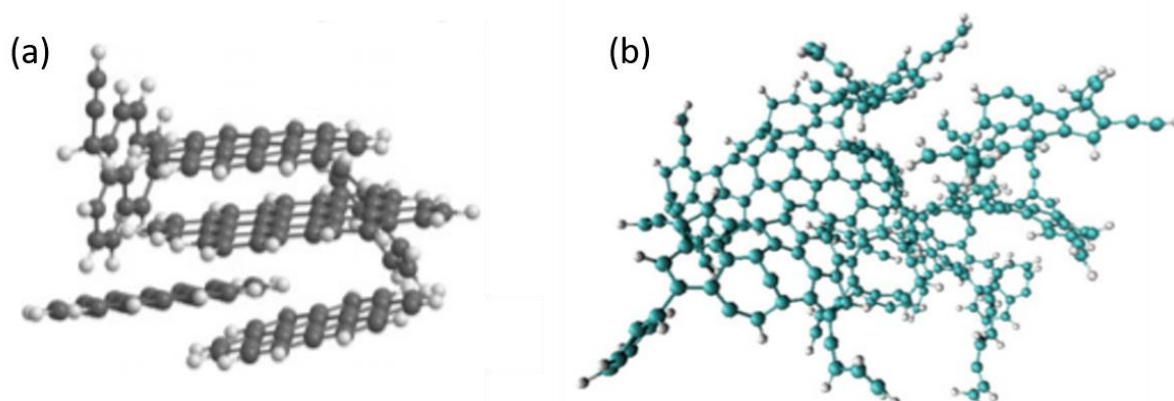


Figure 5 : (a) Grappes ordonnées de HAP [32]. (b) HAP désordonnés liés par des composés aliphatiques [33].

2.1.3 Croissance de surface

Les réactions chimiques se produisant en surface des particules de suie sont responsables de la majorité de leur masse [19]. Les travaux sur le sujet ont mis en lumière plusieurs espèces responsables de cette croissance. La principale est l'acétylène qui, par un processus HACA de surface, participe à la formation de cycles aromatiques en surface de la particule de suie [34]. Des aromatiques sont également impliqués dans des réactions de surface [35] ainsi que des composés aliphatiques à des stades plus avancés de croissance des particules de suie [36].

2.1.4 Coagulation : coalescence et agrégation

Des collisions entre les particules de suie ont lieu tout au long de leur formation. Deux comportements sont observés lors de ces collisions. Le premier, appelé coalescence, aboutit à la formation d'une particule sphérique plus grosse dont la masse est équivalente à celle des deux particules initiales [34]. Dans le second cas, l'agrégation, les particules s'agglutinent pour former des agrégats (voir figure Figure 7 (b)) possédant des propriétés morphologiques fractales qui seront détaillées dans la section 2.2 [37, 38]. Les particules qui composent les agrégats sont appelées particules primaires. Selon les conditions dans lesquelles elles ont été formées, la structure interne des particules primaires peut varier. On observe dans certains cas un empilement de couches graphitiques dit en « pelure d'oignon » (Figure 6 (a)) et dans d'autres cas, un agencement désordonné dit amorphe (Figure 6 (b)).

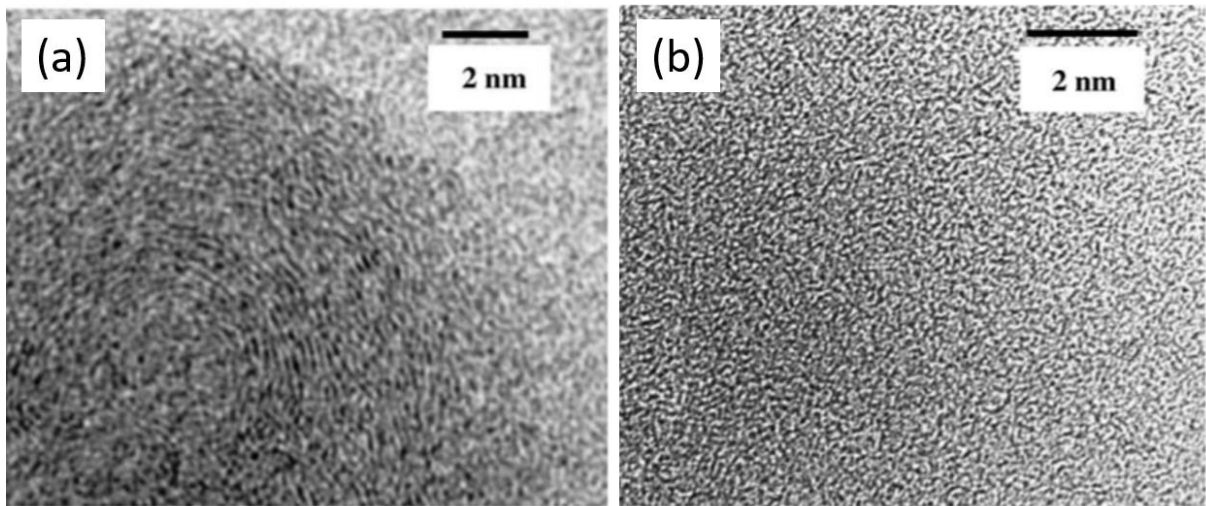


Figure 6 : Clichés TEM [39] : (a) Particule primaire graphitique. (b) Particule primaire amorphe.

Les travaux expérimentaux et numériques ont montré que la coalescence intervient lorsque les suies sont encore petites et amorphes; les suies deviennent ensuite matures et graphitiques et l'agrégation fractale se met en place. La transition entre ces deux régimes n'est pas encore entièrement comprise même si des schémas de réalisation sont proposés. La Figure 7 (a) montre des clichés de microscopie électronique en transmission (TEM) réalisés par Abid et al. [40] où on peut observer une sorte de halo autour de suies récemment nucléées. Ce halo est vraisemblablement produit lors de l'impact des suies naissantes à priori très organiques, avec les grilles de collection suggérant un comportement proche de celui d'un liquide. D'autres travaux [41] montrent une compétition entre les phénomènes de croissance de surface et de coalescence aboutissant à une croissance fractale lorsque les suies deviennent assez grosses. En effet, des suies de petite taille vont se rencontrer et former pendant une brève durée une particule asphérique avant d'être rapidement recouverte sous l'effet de la croissance de surface pour finalement redevenir une sphère. Lorsque les particules sont trop grosses, la croissance de surface ne permet plus de compenser l'asphéricité, ce qui mène à la formation de structures fractales [42].

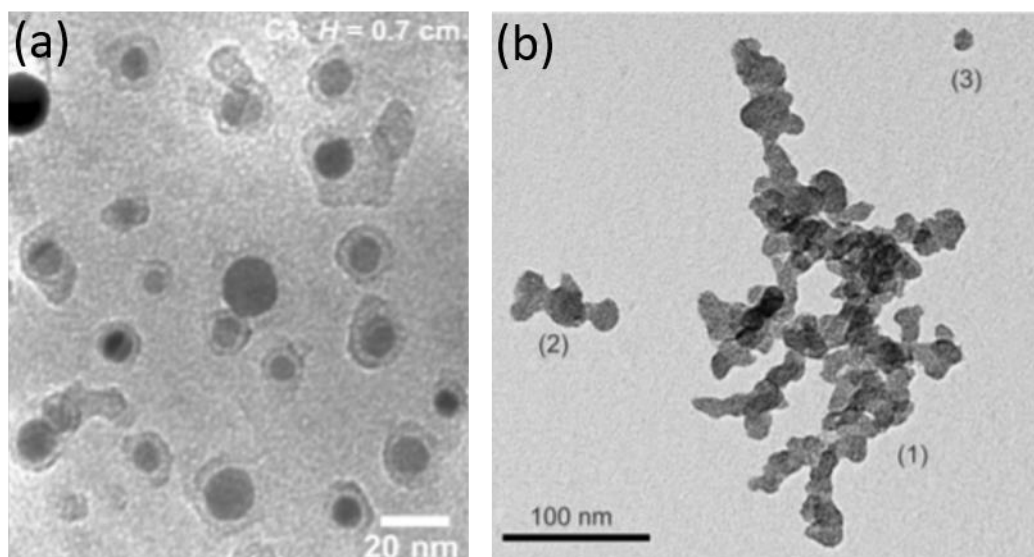


Figure 7 : Clichés TEM de suies : (a) Suies fraîchement nucléées [40]. (b) Agrégat fractal, suie mature (1) [43].

2.1.5 Oxydation

L'oxydation est un processus de consommation des précurseurs et des particules de suies. Il rentre en compétition avec les mécanismes de croissance.

2.1.5.1 Oxydation des précurseurs

Les principales espèces chimiques responsables de l'oxydation des aromatiques sont O_2 ainsi que le radical OH [44]. L'impact le plus important de l'oxydation se produit au début de la croissance des aromatiques, au moment de la formation du phényl et du benzène. En effet, lorsque la croissance des aromatiques est plus avancée et sous réserve de la présence d'espèces alimentant cette croissance, une production d'hydrogène par processus HACA est observée. Ces atomes d'hydrogène vont ensuite réagir avec le dioxygène environnant et donc le consommer, empêchant l'oxydation des HAP. On retrouve un environnement plus pauvre en H au tout début de la croissance des HAP favorisant l'oxydation à cet instant. L'oxydation est encore plus impactante avant la formation des premiers cycles aromatiques où la consommation de certains aliphatiques comme C_2H_3 a été identifiée comme un point clef permettant de basculer vers la croissance ou vers la destruction des structures carbonées [44].

2.1.5.2 Oxydation des suies

Comme pour les HAP, le radical hydroxyle (OH) ainsi que l'oxygène sont les espèces principales impliquées dans l'oxydation des suies. Elles peuvent réagir en surface et à l'intérieur des suies avec les atomes de carbone pour former principalement du monoxyde et du dioxyde de carbone [45]. OH est identifié comme étant l'espèce oxydante principale des particules de suies mais l'oxygène peut également jouer un rôle important notamment en atmosphère pauvre et à température modérée [46, 47]. En effet, dans la gamme de température (600-1100 K), l'oxygène diffuse à l'intérieur des particules et réagit avec le carbone interne aux suies [48]. A plus haute température, comme celle d'une flamme par exemple, les réactions de surface deviennent prépondérantes, ce qui consomme les HAP en périphérie des suies. Le taux d'oxydation augmente avec la température du milieu [49].

2.2 Caractérisation des particules de suie

Cette section est consacrée à la description des particules de suie en termes de morphologie, de taille et de composition chimique. Ces informations seront essentielles pour la compréhension des mécanismes physico-chimiques détaillés dans la section 2.1.

2.2.1 Morphologie et taille

Comme nous l'avons vu dans la section 2.1, les particules primaires s'agglomèrent pour former des agrégats aux propriétés morphologiques complexes. Ces agglomérats sont non-sphériques et composés de N_p particules primaires par agrégat de diamètre D_p (Figure 7 (b)). Certaines études ont montré que les particules primaires respectent une distribution Gaussienne [39, 50] tandis que d'autres font état d'une loi de distribution log-normale [51]. La dispersion étant généralement assez faible, celle-ci est la plupart du temps considérée comme négligeable au sein d'un agrégat ou pour un ensemble d'agrégats à un endroit dans une flamme (pour lesquelles les suies ont le même historique). Dans les flammes, les particules primaires ont typiquement des diamètres variants entre 5 et 70 nm. Cette variation de diamètre dépend du type de flamme, des conditions de combustion, du carburant...

La description de la taille d'un l'agrégat est plus complexe en raison de sa non-sphéricité. On peut utiliser la mobilité pour classer les particules par taille. La mobilité est associée à la vitesse terminale qu'atteint une particule lorsqu'elle est soumise à un champ de force. Pour exemple, le diamètre de mobilité électrique D_{me} d'un agrégat est défini comme le diamètre d'une sphère ayant la même vitesse terminale que cet agrégat lorsqu'ils sont soumis à un même champ électrique. Les appareils de mesure comme le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) chargent électriquement les particules avant de les classer par mobilité, donc par taille (voir section 2.5.2). Le diamètre de mobilité D_m est analogue à D_{me} sous réserve que la particule est uniquement soumise à la gravité. Ces deux grandeurs sont équivalentes si la particule est électriquement chargée une seule fois lors de la mesure de D_{me} . D'autres diamètres peuvent être définis comme le diamètre aérodynamique D_a , le diamètre de Stokes D_{st} ou encore le diamètre équivalent volume D_{ev} qui est le diamètre d'une sphère de même volume que celui de la particule. Le rayon de giration $R_g (= D_g/2)$ possède, quant à lui, l'avantage d'être purement géométrique. Il ne dépend pas du régime d'écoulement ni de l'environnement dans lequel la particule se trouve. Dans le cas d'un agrégat composé de particules primaires de mêmes diamètres, le rayon de giration est relatif à la moyenne des carrés des distances (r_i) entre les particules primaires et le centre de masse de l'agrégat :

$$R_g^2 = \frac{3}{5} R_p^2 + \frac{1}{N_p} \sum_{i=0}^{N_p} r_i^2 \quad (4)$$

On retrouve par ailleurs le rayon de giration dans la théorie de l'interaction lumière/particule (voir section 2.5.4.1) ainsi que dans la loi fractale. En effet, une manière classique de décrire mathématiquement la morphologie complexe des agrégats de suie repose sur la théorie des fractales. Un objet fractal possède la particularité de garder la même structure quelle que soit l'échelle d'observation, on parle alors d'objet autosimilaire. Ce concept développé par Mandelbrot en 1975 [52] a été proposé pour la première fois pour les suies par Jullien et Botet en 1987 [53]. La Figure 8 illustre les ressemblances entre un objet fractal généré de façon purement déterministe (b) et un agrégat résultant d'un processus d'agrégation aléatoire (a) ainsi que l'autosimilarité à différentes échelles.

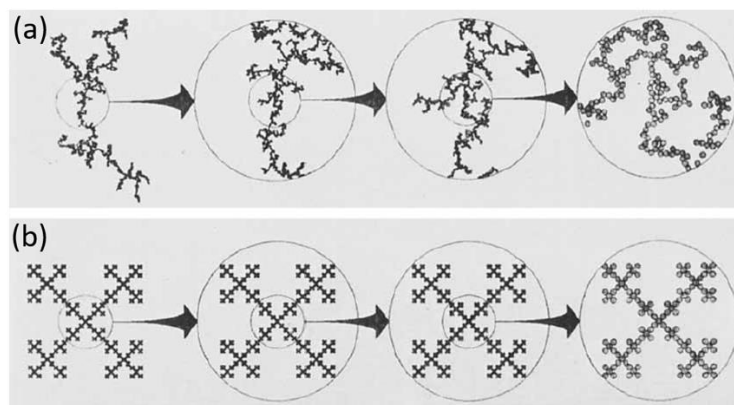


Figure 8 : Illustration de l'autosimilarité dans le cas d'un agrégat fractal (a) désordonné, et (b) déterministe. [54]

Une propriété intéressante des agrégats fractals est que le nombre de particules N incluses dans un cercle de rayon R respecte une loi de puissance de la forme :

$$N \propto R^{D_f} \quad (5)$$

où D_f est la dimension fractale de la structure étudiée. La dimension fractale est en quelque sorte une indication de l'occupation de l'espace par la particule et de son degré de ramification. Si les particules primaires forment une ligne droite, on a une dimension fractale $D_f = 1$; si elles forment une sphère parfaite, alors $D_f = 3$. Pour un agrégat fractal, comme celui qu'on peut visualiser sur la figure Figure 8 (a), en multipliant le rayon du cercle d'observation par 3, le nombre de particules à l'intérieur de ce cercle sera multiplié par 5 environ, ce qui conduit à $D_f = 1,46$. On obtient une dimension fractale non-entière qui nous renseigne sur l'arrangement spatial des particules et de la proximité structurale de l'agrégat avec une structure asymptotique comme une ligne ou une sphère de particules. En pratique, on mesure des dimensions fractales typiques comprises entre 1,6 et 1,9 pour les suies [39, 55, 56].

En normalisant le rayon de giration par le rayon des sphérules primaires R_p , on obtient une expression sans dimension de l'équation (5) qui fait apparaître un nouveau coefficient sans dimension appelé préfacteur fractal k_f :

$$N_p = k_f \left(\frac{R_g}{R_p} \right)^{D_f} \quad (6)$$

N_p est le nombre de particules par agrégat. Cette relation, appelée loi fractale, permet d'associer N_p aux dimensions caractéristiques de l'agrégat (R_g, R_p) au travers des paramètres morphologiques (k_f, D_f). Le préfacteur fractal est un paramètre qui a été peu étudié car il varie beaucoup en fonction des conditions expérimentales et de la méthode de mesure [38, 57, 58]. Ce paramètre est sensible au recouvrement des sphérules et à leur densité locale [59]. On privilégie souvent D_f en raison de son impact important puisqu'il intervient comme un terme de puissance.

Friedlander et al. [60] ont démontré en 1966 que pour une coagulation Brownienne de particules et après une durée suffisamment longue, la distribution de taille des particules est très proche d'une distribution de type self-preserving. L'expression analytique de cette loi en diamètre de giration a été donnée par Moràn et al. [61]. Certaines études favorisent l'utilisation de ce type de distribution pour les suies [62, 63] mettant en avant la traine de la loi log-normale aux grands diamètres qui a un impact significatif sur les mesures de diffusion et qu'on ne retrouve pas avec la loi self-preserving (voir Figure 9). Cependant, il a été constaté expérimentalement que la distribution de taille des particules de suie peut être modélisée dans la majorité des cas par des lois de type log-normale [56, 58, 64] dont la densité de probabilité est exprimée par:

$$\frac{dp(D_g)}{dD_g} = \frac{1}{D_g \ln(\sigma_{g,geo}) (2\pi)^{1/2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{\ln(D_g/D_{g,geo})}{\ln(\sigma_{g,geo})} \right]^2 \right\} \quad (7)$$

$D_{g,geo}$ est le diamètre médian et $\sigma_{g,geo}$ représente l'écart-type géométrique de la distribution.

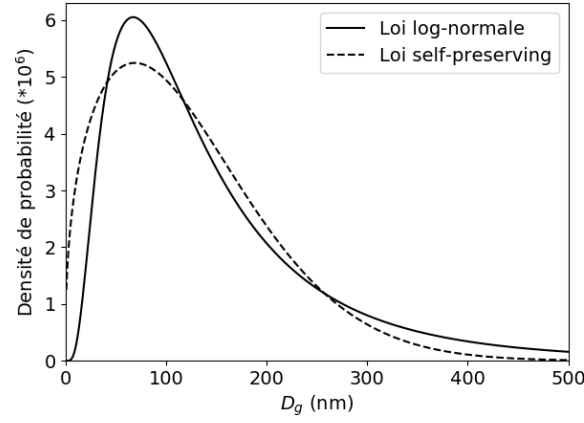


Figure 9 : Densité de probabilité pour une loi log-normale (trait plein) pour $D_{g,geo} = 117 \text{ nm}$ et $\sigma_{g,geo} = 2,1$ et pour la loi self-preserving la plus proche (pointillés).

Les appareils de mesure de distribution par prélèvement fonctionnent en répartissant les particules par classe de taille (voir section 2.5.1). Puisque les populations étudiées sont log-normales, il est intéressant d'avoir des classes de diamètre étroites pour capter la montée brutale au mode de la distribution, et des classes plus larges pour la traîne de la distribution qui présente de faibles variations. Ceci est rendu possible en fabriquant les classes à partir d'un pas logarithmique et non plus linéaire. Pour l'intégration en pas linéaire d'une distribution log-normale avec des classes logarithmiques, il convient d'utiliser l'expression suivante :

$$\frac{dp(D_g)}{d\ln(D_g)} = \frac{1}{\ln(\sigma_{g,geo}) (2\pi)^{1/2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{\ln(D_g/D_{g,geo})}{\ln(\sigma_{g,geo})} \right]^2 \right\} \quad (8)$$

où $d\ln(D_g)$ est constant en fonction de D_g .

2.2.2 Composition chimique et propriétés optiques

Comme évoqué dans la section 2.1.4, les particules de suie peuvent présenter des microstructures différentes selon l'environnement dans lequel elles évoluent. On les qualifie de « mature » lorsqu'elles présentent un degré de cristallinité élevé (proche du graphite) et une teneur réduite en composés organiques. En effet, selon les conditions de combustion et les composés résultants de cette réaction, une quantité non-négligeable de composés organiques peut s'ajouter en surface (adsorption) ou à l'intérieur (absorption) des particules primaires. La proportion des composés organiques est quantifiée par le rapport entre le carbone dit organique (OC pour organic carbon) sur la quantité totale de carbone (TC pour total carbon). Le terme EC (elemental carbon) est utilisé pour quantifier le carbone sous forme de graphite ou de diamant.

La composition et l'arrangement de la microstructure des suies sont des paramètres importants pour la caractérisation des particules de suie car ils influent sur leurs propriétés radiatives par le biais de l'indice optique complexe m :

$$m = n + ik \quad (9)$$

De façon générale, la partie réelle de l'indice n caractérise la vitesse de l'onde électromagnétique dans le milieu qu'elle traverse alors que la partie imaginaire k rend compte de l'absorption. La connaissance de l'indice optique des particules de suie est importante que ce soit pour les caractériser avec des diagnostics

optiques (interaction laser/particules ou émission propre) mais également pour quantifier leur impact sur le bilan radiatif terrestre (absorption du rayonnement solaire). Il peut également être une source de renseignements sur la composition chimique et l'arrangement interne des suies [65]. Cependant, sa mesure n'est pas aisée et la dispersion des valeurs présentées dans la littérature est élevée en fonction des méthodes de détermination de l'indice ou encore du type de flamme dont sont issues les suies (voir Figure 10). L'indice optique constitue donc une des premières sources d'incertitude lors de l'analyse des signaux de mesure. Une autre grandeur importante dans la qualification des propriétés optiques des suies est la section efficace d'absorption massique ou MAC (pour Mass Absorption Cross section) car elle est utilisée comme donnée d'entrée des modèles climatiques. Elle est exprimée en m^2/kg et quantifie l'efficacité d'absorption de la lumière d'un aérosol de concentration massique C_s (en kg/m^3) [66]:

$$MAC = \frac{K_{abs}}{C_s} \quad (10)$$

avec K_{abs} (m^{-1}) le coefficient d'absorption de l'aérosol (voir section 2.5.4.1.2) .

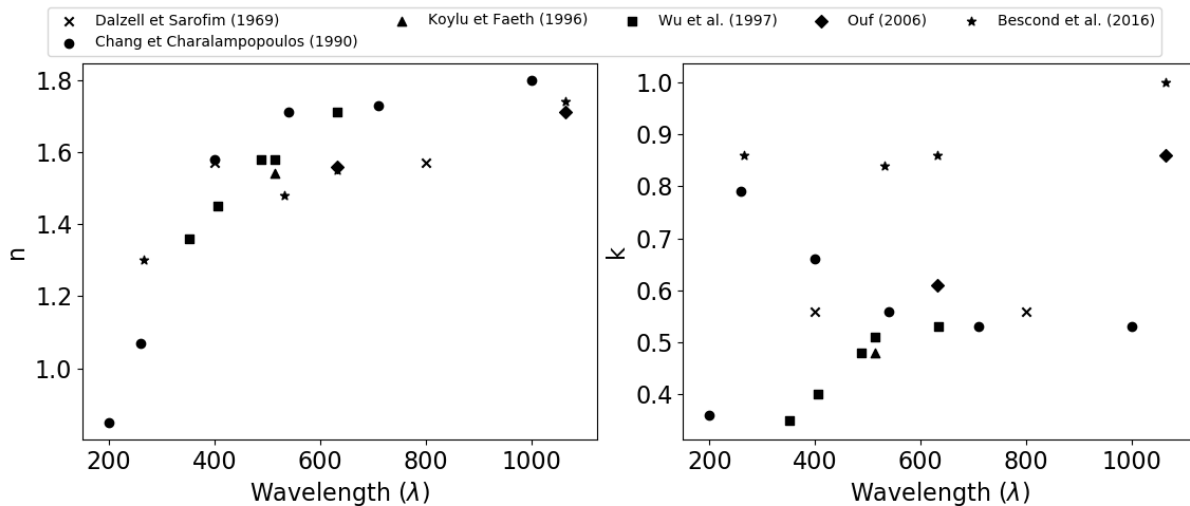


Figure 10 : Partie réelle n (gauche) et imaginaire k (droite) provenant de la littérature pour diverses flammes : Dalzell et Sarofim [67], Chang et Charalampopoulos [68], Koylu et Faeth [69], Wu et al. [70], Ouf [71], Bescond et al. [65].

2.3 Flamme swirlée et/ou stratifiée et production de suie

Cette section est consacrée, dans un premier temps, à la compréhension et à la justification de l'utilisation d'écoulements swirlés et stratifiés en combustion. Afin de comprendre comment les particules de suie sont formées dans ce type de flamme complexe, il est nécessaire d'observer leur formation dans des flammes plus simples. C'est pourquoi une présentation graduelle des résultats publiés dans la littérature scientifique dans des configurations de plus en plus complexes sera proposée. L'effet de la pression sur la formation des suies sera également discuté.

2.3.1 Intérêt du swirl et de la stratification en combustion

Dans le but de réduire la production des NO_x , la plupart des nouvelles chambres de combustion aéronautiques fonctionnent en régime pauvre prémélangé [72]. Ce régime présente cependant l'inconvénient de produire des instabilités de combustion provoquées par des oscillations de pression et de dégagement de chaleur qui s'entretiennent mutuellement pouvant conduire à des contraintes mécaniques importantes sur la chambre de combustion et sur le système d'injection de combustible [73-75]. Afin de réduire ces instabilités, plusieurs mécanismes physiques sont utilisés dont le swirl et la stratification.

Le terme « écoulement swirlé » désigne un écoulement animé d'une vitesse tangentielle non-nulle. L'utilisation de la combustion swirlée est très répandue notamment dans l'industrie et les transports terrestres et aéronautiques avec les brûleurs de centrale thermique, les fours, les raffineries ou encore les turbines à gaz. Son principal avantage réside dans la formation d'une zone de recirculation centrale toroïdale (appelée IRZ pour « inner recirculation zone ») qui achemine la chaleur et les espèces chimiques réactives présentes dans les gaz chauds du haut de la flamme vers la base du brûleur, augmentant ainsi la réactivité dans cette région. Ceci permet de stabiliser la flamme dans des régions de faible vitesse où la vitesse de flamme est du même ordre de grandeur que la vitesse de l'écoulement, limitant ainsi les risques de « flashback » (propagation du front de flamme en amont de l'écoulement possiblement à l'intérieur du brûleur) ou de « souffler » la flamme (phénomène de « blow-off » en anglais) ([76], page 77) . Les mécanismes menant à la formation d'une zone de recirculation interne (IRZ) en flamme swirlée sont illustrés par la Figure 11 et se décomposent de la manière suivante :

- Le profil radial de vitesse tangentielle induit par le swirl de l'écoulement engendre un gradient radial de pression imputable aux forces centrifuges se traduisant par une dépression près de l'axe du brûleur.
- L'ouverture de l'écoulement à la sortie du brûleur provoque une décroissance axiale de la vitesse tangentielle qui entraîne une diminution axiale du gradient radial de pression.
- Près de l'axe de l'écoulement, un gradient axial de pression positif est observé, ce qui provoque une vitesse axiale négative donc un écoulement dirigé vers la sortie du brûleur.

La formation de l'IRZ dépend donc de la réduction de la vitesse de l'écoulement swirlé en sortie de brûleur. Ce phénomène est largement atténué dans une configuration de combustion confinée où l'expansion de l'écoulement en sortie de brûleur est limitée par les parois [77]. Le swirl peut être accompagné d'une stratification de l'écoulement, c'est-à-dire un gradient de richesse. Le terme stratification est utilisé dans la littérature scientifique pour qualifier les gradients de richesse dans une flamme mais également les gradients de richesse contrôlés à l'injection. C'est la deuxième définition qui sera traitée ici lorsque qu'on évoquera les effets de stratification et nous traiterons principalement de la stratification radiale comme sur le schéma représenté sur la Figure 12.

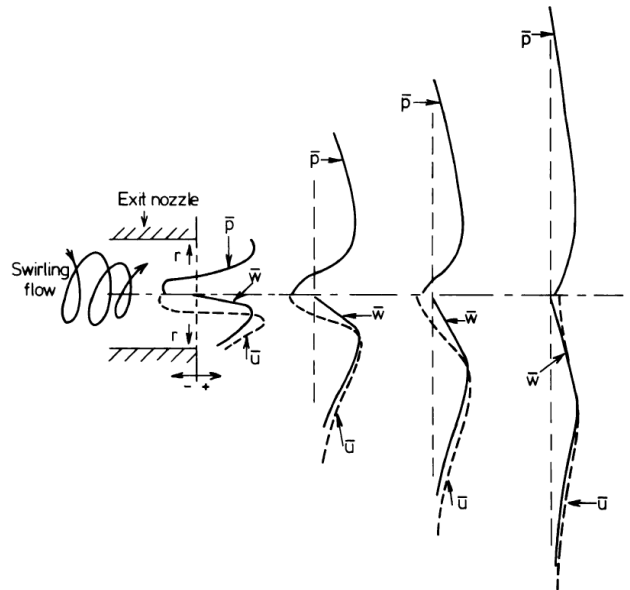


Figure 11 : Description schématique des mécanismes physiques menant à la formation d'une zone de recirculation interne dans un écoulement swirlé. w est la vitesse tangentielle, u la vitesse axiale et p la pression [76].

Dans une configuration de type turbine à gaz, le principal avantage de la stratification est d'améliorer la stabilité de la flamme. Ceci se fait usuellement grâce à une injection centrale dite « injection pilote » d'un mélange riche, entourée par une injection co-annulaire dite « injection principale ou « main » en anglais. Contrairement au mélange pauvre du main, l'injecteur pilote fonctionnant avec une richesse élevée de la flamme est moins sensible aux instabilités de combustion et va donc favoriser la stabilisation de la flamme [78, 79]. La Figure 12 montre un exemple de concept d'injecteur aéronautique de ce type. Cette architecture est aussi appelée « multipoint » car l'injecteur principal est composé de plusieurs injections de carburant uniformément réparties autour de l'injecteur pilote.

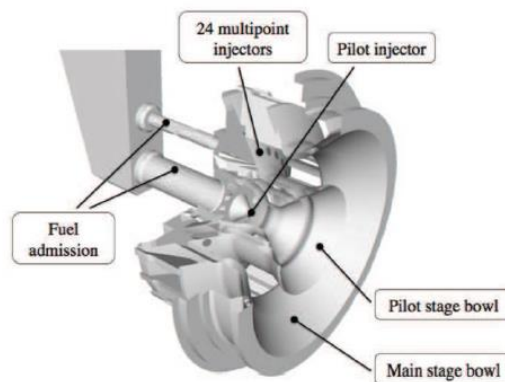


Figure 12: Schéma d'un injecteur stratifié et swirlé aéronautique (injecteur multipoint).

2.3.2 Production de suie en flamme laminaire

Les flammes laminaires se prêtent bien à l'étude détaillée des mécanismes de formation et de consommation des suies car elles sont stationnaires et ne nécessitent pas la mise en œuvre de plusieurs techniques en

simultané. Elles sont aussi stables car elles produisent peu d'instabilités thermoacoustiques et certains paramètres expérimentaux (débits, richesse...) peuvent être modulés sans provoquer de discontinuités fortes dans les phénomènes physiques observés. La littérature scientifique sur ce type de flamme est riche en information, d'autant qu'elles sont utilisées pour le développement des techniques de mesure. On relève ici un plusieurs de ces travaux qui permettent de rassembler l'essentiel des connaissances sur la formation des suies dans ce type de flamme.

Dans une série de publications, Santoro et al. [80-84] ont caractérisé la formation des suies dans une flamme de diffusion produite par un brûleur composé de deux tubes coannulaires : un tube central par lequel est injecté le carburant et un tube externe dans lequel circule l'air. Plusieurs grandeurs relatives aux particules de suie et à la flamme ont été mesurées : la concentration des espèces chimiques par prélèvement et spectrométrie de masse, la vitesse des gaz par vélocimétrie laser (LDV), la température à l'aide de thermocouples, la fraction volumique de suies par extinction et LII (Incandescence Induite par Laser ou Laser-induced Incandescence en anglais, voir section 2.5.4.2 pour plus d'information), la concentration en nombre et la taille des agrégats de suie par extinction et diffusion et enfin la présence de HAP par LIF (Fluorescence Induite par Laser ou Laser-induced Fluorescence en anglais, voir section 2.6.2 pour plus d'information). La Figure 13 résume ces mesures et va nous aider à détailler l'historique de la formation des suies dans cette flamme. Les réactions chimiques aboutissant à la formation et à la croissance des suies demandent des températures élevées, entre 1200 et 1800 K avec un pic de production autour de 1600 K [85-87]. Il est donc important de caractériser le transport de la chaleur des zones de haute température (front de réaction de combustion) vers les zones riches où la présence majoritaire d'espèces hydrocarbonées est propice à la formation des suies. Pour examiner les zones de nucléation, les auteurs se basent sur les niveaux de température, la fluorescence sur les espèces chimiques en phase gazeuse attribuée aux HAP et la diffusion de la lumière par les suies (Figure 13 (a) et (d)). Les deux pics périphériques de diffusion commencent à apparaître à partir de 3 mm au-dessus du brûleur, hauteur correspondant donc à la formation des premières particules. Sur la Figure 13 (a), on se rend compte que les suies sont formées à l'intérieur de la zone de haute température, donc dans la zone riche en carburant et pour des températures couvrant la gamme 1400 - 1750 K. Si on observe les mesures de vitesse à ces positions (Figure 13 (b) et (c)) et les mesures de diffusion à différentes hauteurs (non indiquées ici), on trouve une variation significative de signal de diffusion tous les 1 mm pour des vitesses de l'ordre de 0,5 m/s, ce qui correspond à un temps caractéristique de l'ordre de la milliseconde caractéristique de l'existence d'une chimie lente associée aux suies (3-4 fois plus lent que les temps caractéristiques pour la combustion, par exemple [88]) . La Figure 13 (d) montre un profil du signal de fluorescence des HAP constitué de deux pics légèrement plus proches du centre du brûleur avec des valeurs maximales situées aux positions radiales où l'on observe une décroissance rapide du signal de diffusion. Cette zone de recouvrement est attribuée à la nucléation des premières particules de suies. L'ordre d'apparition radiale des trois pics (HAP, diffusion, température) reste inchangé en fonction de la hauteur.

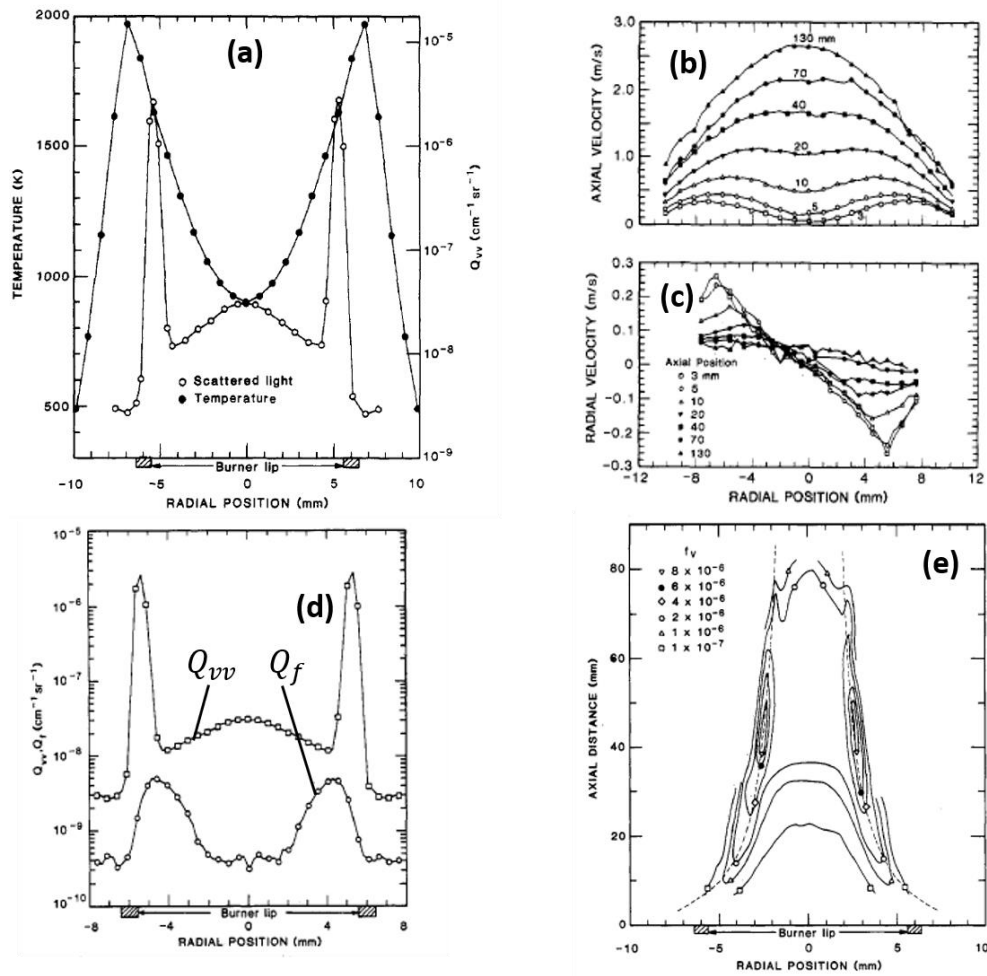


Figure 13 : Mesures issues de [80-84]. (a) : Profils radiaux de température et de section efficace de diffusion Q_{vv} 5 mm au-dessus de la sortie du brûleur. (b) : Profils radiaux de vitesse axiale pour différentes hauteurs. (c) : Profils radiaux de vitesse radiale pour différentes hauteurs. (d) : Profils radiaux de sections efficaces de fluorescence Q_f et de diffusion Q_{vv} 5 mm au-dessus de la sortie du brûleur. (e) : Champ de fraction volumique de suies.

La Figure 13 (e) montre une augmentation de la fraction volumique de suies suivie d'une diminution pour des hauteurs supérieures à 45 mm environ. Cette observation suggère un processus de croissance des suies dominant jusqu'au pic de fraction volumique puis une oxydation prenant le pas au-dessus qui vient progressivement consommer les suies. La hauteur et la valeur du maximum de fraction volumique de suies augmentent avec le débit de carburant. Les auteurs montrent que cette tendance provient non seulement de l'augmentation du temps de résidence des suies dans la zone de croissance mais aussi de la diminution de la température dans la zone d'oxydation, aboutissant à une diminution du taux d'oxydation [49]. Gomez et al. [86] montrent que même si la composition du carburant peut avoir un effet sur les concentrations de suies produites, elle impacte faiblement les mécanismes de formation. Pour tous les carburants étudiés (acétylène, benzène, butadiène, butène), la température à laquelle les suies commencent à se former est de 1350 ± 35 K. Lors d'une autre expérience et dans un brûleur similaire, Gülder et al. [89] montrent que la production de suie augmente avec la température et que cette dernière affecte plus la production de suie dans le cas des alcanes étudiés (isooctane, propane) que pour les alcènes étudiés (propylène et l'éthylène). En 2005, Smooke et al. [90] publient une étude sur ce même type de flamme avec une comparaison de résultats expérimentaux et numériques. Il est intéressant de coupler ces résultats expérimentaux et numériques entre eux car cela permet d'accéder à des grandeurs physiques comme les taux d'oxydation, de

nucléation ou de croissance de surface impossibles à obtenir avec une analyse purement expérimentale. Ils confirment l'importance majeure du temps de résidence des particules dans des zones propices aux réactions chimiques de croissance (nucléation et croissance de surface), c'est-à-dire dans un milieu à richesse élevée et surtout à une température élevée. Ceci permet notamment d'expliquer pourquoi ce type de flamme présente une migration du maximum de fraction volumique de suies du centre vers la périphérie lorsque le débit de carburant augmente : la température le long de l'axe du brûleur diminue mais elle augmente en périphérie de flamme, ce qui conduit à une augmentation des taux de réaction de croissance dans cette zone (voir Figure 14).

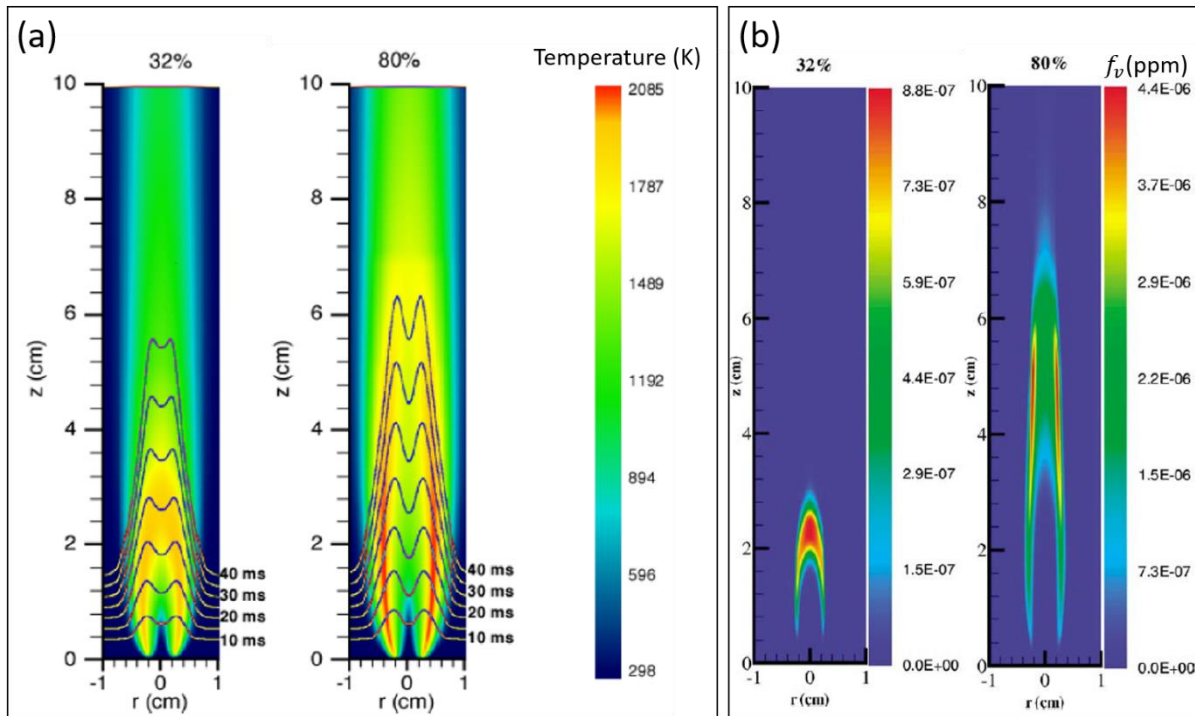


Figure 14 : Résultats de simulation numériques issus de Smooke et al. [90]. Les pourcentages correspondent à la quantité d'éthylène dans le mélange éthylène/azote injecté par le tuyau central. (a): Champs de températures et isovaleurs des temps de résidences. (b) : Champs de fraction volumique de suies.

En flamme laminaire prémélangée, les études ont été principalement focalisées sur des brûleurs de type McKenna qui produisent une flamme plate 1D (variation des propriétés physiques selon la hauteur seulement) grâce à un mélange carburant / air injecté dans un poreux [91-93]. On retrouve dans ce type de brûleur une augmentation de la fraction volumique, du nombre de particules par agrégat et la taille des particules primaires des suies avec la hauteur et à fortiori avec le temps de résidence [94]. Les temps de résidence caractéristiques des variations significatives des grandeurs physiques relatives aux particules de suie sont de l'ordre de la milliseconde, comme en flamme de diffusion. De manière similaire aux flammes de diffusion, une augmentation de la richesse en flamme de prémélange aboutira à une augmentation globale de la production de suies. On observe cependant une saturation de production de suies à partir d'une hauteur donnée. Ce phénomène est attribué aux pertes thermiques par rayonnement qui augmentent avec la quantité de suies et qui provoquent une baisse de la température dans la flamme et donc une diminution du taux de croissance de surface, même en présence d'espèces chimiques favorisant la croissance [94].

On peut également noter les travaux récents dans des flammes de prémélange plates dans lesquelles la richesse du mélange est ajustée de manière à favoriser la nucléation des nanoparticules et à réduire la croissance de surface et l'oxydation [95-97]. On obtient dans ces flammes une augmentation de la fraction volumique avec la hauteur seulement imputable à la formation de nouveaux nuclei. Ces flammes de « nucléation » sont donc très intéressantes pour l'étude de la formation des premières particules solides et surtout pour la validation des modèles de nucléation.

2.3.3 Production de suie en combustion turbulente non-prémélangée

Comme précisé dans la section 2.1, les mécanismes de formation et de consommation des suies dans une flamme sont régis par plusieurs grandeurs locales et instantanées du milieu : la température, les espèces chimiques et le temps de résidence donc le champ de vitesse. Contrairement aux flammes laminaires où la production de suie est stationnaire et spatialement continue, on observe en flamme turbulente des suies organisées spatialement en poches ou en filaments isolés avec une apparition intermittente de ces structures (Figure 15).

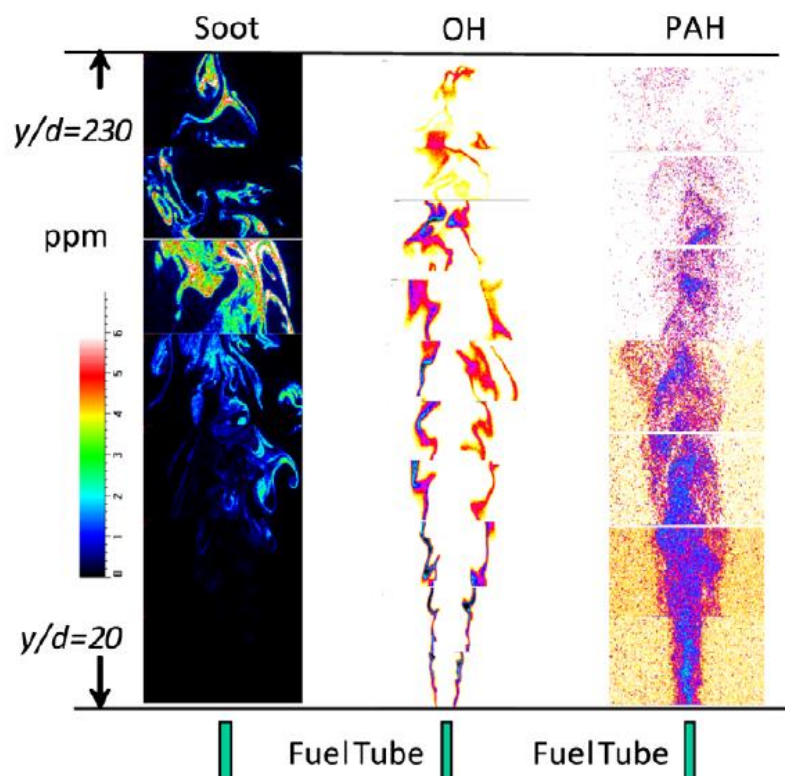


Figure 15 : Structure typique d'une flamme de diffusion turbulente suitée avec injection purement axiale [98]. A gauche la fraction volumique de suies, au milieu le signal de LIF-OH et à gauche le signal de LIF-HAP.

Les flammes de jet produites en combustion non-prémélangée ont été beaucoup étudiées. On distingue trois régions dans ce type de configuration. La première est caractérisée par une croissance rapide des suies, une concentration élevée de HAP et une zone de OH en périphérie n'interagissant pas avec les suies et les HAP. En aval de cette zone de croissance, on trouve une région de mélange avec une disparition des HAP. Cette zone est affectée par le nombre de Reynolds de l'écoulement. Le mélange des poches de suies et des gaz

brûlés chargés en espèces oxydantes affecte le maximum de fraction volumique de suies, ce qui aboutit à une zone d'apparition intermittente des suies. Enfin, la dernière zone est caractérisée par la fermeture de la flamme formant une barrière oxydante qui ne permet qu'aux poches de suies présentant des fractions de volume très élevées de survivre et d'être transportées dans les fumées. L'augmentation de l'intensité de la turbulence diminue la quantité globale de suies produites dans la flamme. L'épaisseur des zones de suies est définie, à une hauteur donnée, comme la largeur radiale à mi-hauteur du pic de fraction volumique. Ce paramètre augmente dans la région de formation des suies jusqu'à atteindre 2,5 mm et redescend rapidement à 1 mm (valeurs valables pour la flamme de Lee et al. [98]), quel que soit le taux de mélange (vitesse du jet). Le taux d'intermittence des suies est fortement dépendant de la hauteur et le maximum de fraction volumique de suies survient lorsque l'intermittence est la plus faible. Coppalle et Joyeux [85] mettent en évidence dans ce type de flamme l'effet de la température sur la production de suies avec une corrélation fraction volumique / température des gaz (voir Figure 16) suggérant un pic de formation de suies autour de 1600 K.

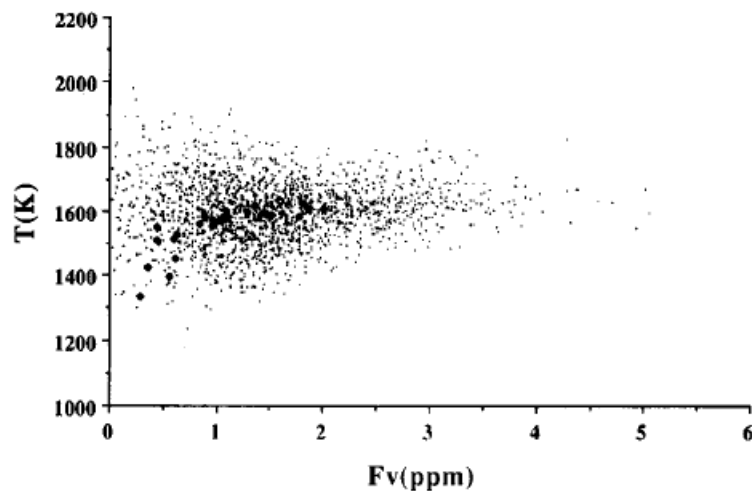


Figure 16 : Corrélation entre la température du milieu et la fraction volumique de suies [85].

En flamme de diffusion, le mélange entre le combustible et l'air est un paramètre clef agissant sur la formation des suies. Deux paramètres caractérisant le mélange sont souvent utilisés en combustion : la fraction de mélange Z (fraction massique de combustible) ainsi que le taux de dissipation scalaire $\chi = D(\partial Z / \partial x_i)(\partial Z / \partial x_i)$ (avec D la diffusivité moléculaire) qui caractérise l'efficacité du mélange combustible / comburant à l'échelle moléculaire. Park et al. [99] montrent expérimentalement que les fractions de volume élevées sont associées à des taux de dissipation scalaire faibles et inversement. Ils montrent également que la formation de suie est corrélée à une vitesse (3 m/s) et à un taux de cisaillement local (800 s^{-1}) faibles (valeurs retrouvées par Narayanaswamy et al. [100]). On peut toutefois, une fois les particules formées et transportées, observer de la croissance des particules même si les conditions diffèrent de ces valeurs préférentielles.

Les tourbillons sont des structures d'écoulement que l'on retrouve souvent en flamme turbulente. L'interaction suies/tourbillon/flamme a été étudiée expérimentalement par Cetegen et al. [101] puis numériquement par Franzelli et al. [102]. On observe dans ces structures les effets compétitifs de deux paramètres qui vont changer spatialement au sein d'une structure tourbillonnaire : la courbure et le taux de cisaillement local. Comme décrit dans le paragraphe précédent, un taux de cisaillement local faible est

nécessaire à la formation des suies. La courbure va, quant à elle, avoir un rôle positif ou négatif pour la formation des particules de suie. Lorsque le front de flamme est convexe au carburant, on aura un dégagement de chaleur plus important côté carburant et donc une augmentation de température qui va accélérer la décomposition du carburant en HAP et augmenter la production de suie. L'effet inverse est observé dans le cas d'un front de flamme concave au carburant. L'effet de la courbure sur la production de suie n'est présent qu'en cas de gradient de fraction de mélange. C'est donc un paramètre négligeable dans le cas d'une combustion parfaitement prémélangée.

Des configurations différentes des flammes-jet ont également été étudiées. Par exemple, les flammes swirlées présentent l'intérêt d'être utilisées dans de nombreuses applications industrielles notamment pour les turbines à gaz. Ces flammes peuvent être caractérisées comme partiellement prémélangées car le swirl permet d'augmenter le mélange air/combustible sur quelques millimètres dès la sortie du brûleur en amont de la combustion (voir [103]). On peut citer la flamme produite par le brûleur du DLR qui a été longuement étudiée avec de nombreux diagnostics optiques dans le but de caractériser la combustion et la formation des suies. Comme observé sur la Figure 17 (a), ce brûleur est constitué d'une injection d'air centrale swirlée entourée d'une injection co-annulaire de combustible elle-même entourée d'une deuxième injection d'air. La flamme est confinée dans une chambre de combustion pouvant être pressurisée et munie d'accès optiques. Une injection d'air d'oxydation est possible à une hauteur d'environ 10 cm après la sortie du système d'injection. Le comportement de ce brûleur en condition pauvre a été étudié par Weigand et al. [104] et Meier et al. [105]. Geigle et al. ont utilisé par la suite ce brûleur en condition riche avec de l'éthylène comme combustible à pression atmosphérique [106] et à pression élevée [107-109]. Comme dans les flammes-jet, ils retrouvent des suies organisées en filaments intermittents avec cependant des fractions de volume plus faibles avec des pics de l'ordre de 0,4 ppm en instantanée et 5 ppb en moyenne temporelle. Cette différence entre les mesures instantanées et moyennées met en évidence l'intermittence de la production de suies dans cette flamme. La Figure 17 (b) montre des mesures instantanées couplées de PLIF-HAP (Planar Laser-induced Fluorescence) et de LII. Les suies sont confinées dans l'IRZ et organisées en poches et filaments avec des gradients spatiaux intenses au contraire des HAP dont les signaux sont assez continus et plus étalés spatialement. Certaines poches de suies, attachées aux HAP, sont considérées comme des suies fraîchement formées au contraire des structures isolées de suies matures. On retrouve un ordre radial préférentiel d'apparition des espèces chimiques similaire aux flammes-jet avec les suies près de l'axe du brûleur (dans l'IRZ ici), les HAP ensuite et la flamme en périphérie marquée par la présence d'intenses gradients de fluorescence de OH. Les températures moyennes dans l'IRZ sont homogènes spatialement à environ 2000 K. La dispersion des niveaux de température est faible proche de l'axe du brûleur et augmente avec le rayon jusqu'à atteindre un pic à la limite entre le jet de gaz frais et l'IRZ (zone appelée ISL pour « inner shear layer », couche de cisaillement interne en français). Sur l'axe central, on observe un pic de fraction volumique moyenne à l'extrémité inférieure de l'IRZ puis une décroissance lente avec la hauteur jusqu'à atteindre une oxydation complète. L'interaction des particules de suie avec l'écoulement a été étudiée en détail grâce à des mesures couplées de PIV (Vélocimétrie par Image de Particules ou « Particle Image Velocimetry » en anglais) et de diffusion. Ces mesures ont permis de classer les particules présentes dans des zones où l'écoulement est favorable à la formation (en termes de vitesse / temps de résidence et taux de cisaillement) comme fraîchement nucléées au contraire des poches matures transportées dans des zones non-favorables à la nucléation. Il est cependant possible de retrouver des suies matures dans une zone d'écoulement favorable à la nucléation mais cette possibilité n'a pas été étudiée car les mesures de HAP n'ont pas été réalisées simultanément aux mesures de vitesse. Dans un brûleur similaire, Chatterjee et al. [110] mesurent des fractions de volume de suie moyennes du même ordre de grandeur (de quelques ppb à quelques dizaines de ppb). Ils observent également un impact significatif de l'injection d'air sur la production de suies avec une réduction de 50 % des fractions de volume moyenne pour une augmentation de seulement

6 % du débit d'air. Cette décroissance est principalement attribuée à l'augmentation globale de la vitesse des gaz induite par l'augmentation du débit d'air, ce qui réduit le temps de résidence nécessaire à la formation des suies tout en renforçant le mélange turbulent, phénomène qui, comme relaté dans le paragraphe précédent, est défavorable à la formation des suies. L'apport additionnel d'air amène également plus d'espèces oxydantes. Il est observé que, comme dans la flamme du DLR, les suies sont préférentiellement formées entre la zone de recirculation centrale et le jet, dans des zones de très faible vitesse. Les suies sont ensuite transportées dans l'IRZ où elles vont croître ou être oxydées ou bien être entraînées en sortie de chambre de combustion (Figure 10 de Meyer et al. [111]). L'IRZ contient également des espèces oxydantes provenant de la flamme périphérique qui peuvent oxyder les suies.

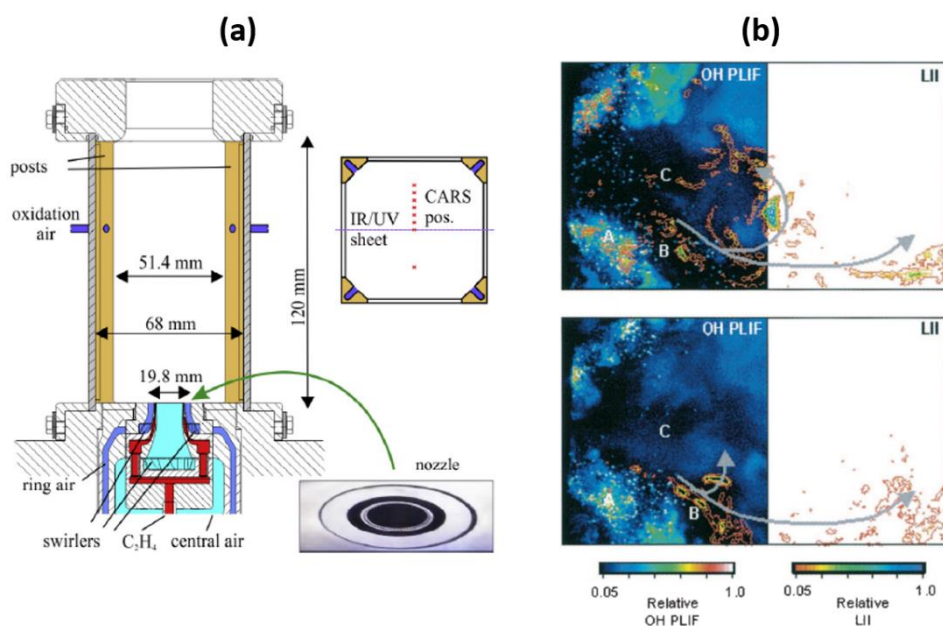


Figure 17 : (a) : Schéma du brûleur du DLR [109]. (b) : Champs instantanés couplés de fraction volumique de suies et de signal de LIF sur les HAP [109].

Pour des flammes de carburant liquide, le lecteur pourra, par exemple, se référer aux publications suivantes qui ne sont pas détaillées ici : Mulla et al. [112] et Meyer et al. [111].

2.3.4 Production de suie en combustion turbulente prémélangée

Contrairement aux flammes non-prémélangées ou partiellement prémélangées, les études en flammes turbulentes parfaitement prémélangées sont rares dans la littérature scientifique. Il s'agit pourtant de configurations radicalement différentes puisque, dans le cas d'un prémélange parfait, les effets de mélange combustible / oxydant n'auront pas d'impact sur la production de suies au contraire du cas non-prémélangé où ils représentaient des paramètres clefs. La production de suie en flamme prémélangée est donc pilotée par le mélange turbulent des gaz brûlés avec les gaz frais, la température, la concentration locale en précurseurs et le taux de cisaillement local. Une flamme swirlée parfaitement prémélangée a été étudiée par Roussillo et al. [113] en 2019. Contrairement au cas non-prémélangé, le pic de fraction volumique est mesuré vers l'extérieur de la flamme et non dans la zone centrale avec toutefois des particules détectées dans l'IRZ. On retrouve des structures de suies organisées en ligaments étirés et plissés par l'écoulement et présentant une épaisseur de 0,5 à 2,5 mm. Comme attendu en flamme turbulente, l'apparition des suies est

intermittente et cette intermittence est reliée aux niveaux mesurés de fraction volumique. Proche de la sortie du brûleur, une forte intermittence est détectée ainsi qu'une grande variabilité de la fraction volumique de suies. Juste au-dessus de cette zone, on retrouve une région d'intermittence quasi-similaire mais la variation de la fraction volumique est réduite, ce qui induit une fraction volumique moyenne plus faible. Enfin, on observe pour des hauteurs plus grandes une diminution de l'intermittence accompagnée d'une variabilité de f_v réduite et une fraction volumique moyenne plus faible. L'oxydation joue un rôle très faible dans cette flamme puisque des mesures de fluorescence induite par laser ont révélées la présence de OH uniquement dans une zone très proche de la sortie du brûleur.

2.3.5 Effet de la pression

Pour des raisons d'optimisation en termes de taille et d'efficacité énergétique, la combustion dans une chambre aéronautique se produit à haute pression (entre 30 et 40 bar). En effet, ce niveau de pression permet d'augmenter la quantité d'énergie par unité de volume relâchée par les mécanismes réactionnels, qui varient proportionnellement au carré de la pression. Cela va également impacter la flamme et par conséquence la production de suie. Au niveau de la flamme, les principaux effets d'un changement de pression vont être une augmentation des taux de réaction et une diminution de la diffusivité moléculaire. En effet, l'augmentation de la densité du milieu diminue les distances entre les molécules et augmente la probabilité de collisions. En conséquence de l'augmentation des taux de réaction, les réactifs sont consommés plus rapidement et l'épaisseur de la zone réactive de combustion diminue [114]. Pour des flammes de diffusion laminares, une élévation globale de la fraction volumique de suies est observée lorsque la pression augmente quel que soit le régime de combustion à pression modérée (entre 1 et 20 bar) [115]. Cette augmentation engendre une accentuation des transferts thermiques par rayonnement ce qui provoque, avec le fait que la flamme soit plus compacte, des forts gradients de température (1000 – 1500 K/mm). Les données divergent pour des pressions plus élevées et selon les configurations mais il semble qu'une stabilisation voire une diminution de la fraction volumique soit trouvée. Amin et al. [116] montrent que l'augmentation de la fraction volumique de suies est en fait corrélée à l'augmentation de la taille des agrégats et plus particulièrement à celle du diamètre des sphérules primaires D_p , puisqu'ils mesurent en parallèle une diminution de la concentration en nombre. Cette observation va dans le sens d'une croissance de surface de plus en plus prépondérante avec la pression. En ce qui concerne le processus d'oxydation, une récente étude où des suies ont été prélevées puis exposées, dans un microscope électronique, à un flux de gaz oxydant à haute température (1100 K), montre que les suies produites à haute pression seraient plus difficiles à oxyder [117]. En effet, une coquille de carbone graphitique dont l'épaisseur augmente avec la pression se forme en périphérie des agrégats. Le carbone cristallin est stable et difficile à oxyder, ce qui empêche les espèces oxydantes de diffuser dans les particules pour les oxyder de l'intérieur. Peu d'études sur l'effet de la pression existent en flamme prémélangée. La configuration de flammes produites avec un brûleur de type « McKenna » est celle qui a été la plus souvent utilisée [87, 118] dans des domaines de pression allant de 1 à 15 bar. L'évolution de f_v avec la hauteur est similaire à celle observée à pression atmosphérique, c'est-à-dire une augmentation suivie d'un plateau. La croissance est cependant plus rapide et le plateau plus haut lorsque la pression augmente. On observe la même tendance lorsque la fraction volumique de suies est analysée en fonction du temps de résidence, ce qui montre que le taux de croissance est augmenté lorsque la pression est élevée. Les études en flamme turbulente sont rares mais semblent montrer une tendance similaire d'augmentation globale de fraction volumique avec la pression [107-109]. Les structures restent filamenteuses mais elles deviennent plus fines qu'à pression atmosphérique et de plus grands gradients sont mesurés avec des fractions de volume locales supérieures à 1 ppm [15].

L'analyse expérimentale d'une flamme est plus difficile à haute pression. Le premier inconvénient réside dans la chambre de combustion qui réduit les accès optiques et qui bloque certains angles d'observation utiles

pour certains diagnostics optiques comme la diffusion angulaire par exemple. Il est possible de recourir à des hublots optiques incurvés pour résoudre partiellement ce problème [116]. Comme décrit dans le paragraphe précédent, de forts gradients de température et donc de densité existent à haute pression. Ceci peut être une seconde source de contrainte lors de l'utilisation de diagnostics optiques à cause d'une déviation (« beam steering » en anglais) ou de focalisation du faisceau laser incident ou de celle de la lumière collectée. Ce phénomène est aggravé par l'utilisation de hublots optiques épais. Enfin, on a vu dans la section 2.5.4.2.2 que l'absorption de la nappe laser pouvait créer des problèmes pour l'utilisation de diagnostics lasers. Ce phénomène est amplifié à haute pression à cause de densités plus élevées et par l'augmentation de la production de suie.

2.3.6 Conclusion

Cette revue de la littérature scientifique permet de comprendre que la production de suie en flamme turbulente purement prémélangée n'a été que très peu étudiée et que la configuration de flamme stratifiée et swirlée n'a, à ce jour, pas été exploitée. Ce constat combiné au fait que ce mode de combustion est similaire à celui que l'on retrouve dans les nouveaux systèmes de combustion industriels nous pousse donc tout naturellement à privilégier l'étude de la formation des suies dans ce type d'architecture de système d'injection.

2.4 Description globale des techniques de caractérisation des suies

Dans cette sous-section, les techniques de mesure des grandeurs introduites dans la section 2.2 vont être décrites succinctement afin de donner les principales spécifications des techniques de mesure utiles à l'analyse des particules de suie. Cette présentation permettra en outre de comprendre pourquoi, parmi le large éventail de techniques de mesure potentiellement utilisables, certaines ont été privilégiées dans notre étude. Pour les techniques nécessitant un prélèvement (*ex-situ*), on distinguera les mesures en ligne effectuées directement sur l'aérosol après prélèvement dans la flamme et les mesures hors-ligne nécessitant le prélèvement d'un échantillon (sur un filtre ou sur une grille par thermophorèse par exemple) puis une analyse à posteriori.

2.4.1 Taille des agrégats

La taille des agrégats peut être mesurée de manière *ex-situ* en prélevant les particules de suie. Toutes ces techniques de mesure souffrent de limitations relatives au prélèvement pouvant avoir un impact fort sur la mesure [119]. Premièrement, l'introduction d'une sonde de prélèvement dans une flamme perturbe le milieu en termes d'aérodynamique, de transferts thermiques et d'acoustique. Dans le cas d'un prélèvement de particules en phase aérosol, l'écoulement doit être rapidement figé chimiquement et dilué afin de réduire l'agrégation des particules. Cette opération est réalisée par dilution avec un gaz inerte (azote par exemple). Une seconde dilution est souvent indispensable afin de ne pas saturer les instruments de mesure. Cette phase de prélèvement induit temps de transit de l'aérosol jusqu'à l'appareil de mesure qui doit être réduit au maximum afin de réduire l'agrégation et les pertes par déposition [120]. En plus des effets de perturbation de la flamme [121], la méthode de prélèvement ainsi que le stockage des échantillons peuvent modifier les propriétés morphologiques et géométriques des particules [122].

Le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) associe un DMA (Differential Mobility Analyzer) pour la sélection en taille des nanoparticules à un compteur de particules (CPC). Cet appareil permet de mesurer la distribution en taille des particules de suie en diamètre de mobilité électrique. Son fonctionnement sera détaillé dans la

section 2.5.1. Le DMS (Differential Mobility Spectrometer) permet également la mesure de distribution de taille exprimées en diamètre de mobilité D_m [123]. Il fonctionne sur le même principe que le DMA mais permet une mesure de distribution de taille résolues en temps. Cependant, la résolution (nombre de classes de diamètre) est plus faible que celle du SMPS et le comptage des particules n'est pas optique (mesure de courant via le positionnement d'électromètres dans le DMA). L'ELPI (Electrical Low Pressure Impactor) [124, 125] permet de mesurer une distribution de taille exprimée en diamètre aérodynamique ou en diamètre de Stokes. Ces techniques sont résolues en temps et permettent de balayer des gammes de taille supérieures au micromètre (limite supérieure du SMPS). Cependant, le faible nombre de canaux conduit à une résolution faible des distributions de taille en comparaison du SMPS. Ces techniques de mesure sont effectuées en ligne. Cependant, la distribution de taille des agrégats peut également être mesurée hors-ligne par diverses techniques de microscopie [126] (microscopie électronique en transmission TEM, microscopie électronique à balayage SEM, microscopie aux ions hélium HIM) après un prélèvement des particules sur un support par déposition. Cependant, les mécanismes de dépôt sont complexes et dépendent de la taille des particules, ce qui peut conduire à un biais de représentabilité des distributions de taille [122].

La mesure *in-situ* de la taille des particules peut être effectuée par techniques optiques en utilisant la diffusion élastique de la lumière ou des combinaisons diffusion/extinction ou diffusion/incandescence induite par laser. Certaines méthodes permettent même de déterminer la polydispersion de la population étudiée. Nous détaillerons ces aspects dans la section 2.5.4.1.3.

2.4.2 Diamètre des particules primaires

Lors des premières étapes de leur formation, les particules de suie ne sont pas encore des agrégats et leur taille peut être mesurée « en ligne » de manière *ex-situ* avec les appareils commerciaux détaillés en section 2.4.1. En revanche, dès lors que l'aggrégation démarre, les diamètres mesurés par ces appareils ne sont plus représentatifs des particules primaires mais de l'agrégat. Afin de déterminer le diamètre des sphérules primaires, on peut donc s'orienter, pour ce qui est des méthodes *ex-situ*, vers un prélèvement associé à une analyse par microscopie.

Encore une fois, les techniques optiques sont les seules options disponibles pour la mesure *in-situ*. La méthode la plus utilisée consiste à analyser la décroissance temporelle du signal d'incandescence induite par laser (TiRe-LII) (voir section 2.5.4.2.1 pour une description détaillée). On peut également utiliser la diffusion des rayons X aux petites angles (SAXS) qui, comme son nom l'indique, va consister à mesurer le signal diffusé résultant de l'interaction d'un champ électromagnétique de courte longueur d'onde avec les particules. Beaucage [127] a proposé en 1995 une approche similaire à la RDG-FA (voir section 2.5.4.1.1) afin d'exploiter la diffusion de la lumière par des agrégats pour des courtes longueurs d'ondes. Cette théorie a ensuite été utilisée dans des flammes par di Stasio et al. [128] et Yon et al. [129]. Cette approche expérimentale présente l'avantage de mesurer des distributions de tailles de D_p mais souffre, de la même manière que pour la technique de diffusion de la lumière dans le visible, de problèmes liés à la nature mal posée de l'inversion (voir section 2.5.4.1.3) puisque les expressions mathématiques proposées par Beaucage pour les courtes longueurs d'ondes sont similaires à celles utilisées dans le domaine du visible. Dans les mesures en flamme précédemment citées et pour palier à cet inconvénient, les auteurs utilisent un algorithme de régularisation de Tikhonov ou des mesures complémentaires. De plus, la génération d'un rayonnement X monochromatique suffisamment puissant n'est possible que dans des synchrotrons où la mise en œuvre ne se prête pas à l'ensemble des dispositifs de mesure. Wang et al. appliquent pour la première fois en 2002 la diffusion des neutrons aux petits angles (SANS pour Small Angle Neutron Scattering) à des particules de suie de manière *in-situ* dans une flamme [130]. Dans cette étude, les auteurs présentent des mesures de concentration en nombre et de diamètre moyen D_p dans un brûleur McKenna. C'est une technique

puissante car elle est totalement non-invasive contrairement à la TiRe-LII, et que le signal de SANS dépend de la masse volumique et de la composition atomique et non de l'indice de réfraction complexe. Cette technique est cependant assez compliquée à mettre en œuvre car les sources puissantes de neutrons ne sont pas facilement accessibles et nécessitent beaucoup de précautions à l'emploi. De plus, les temps d'intégration dans ce type de mesure sont très longs : une heure par point de mesure dans l'étude précédemment citée. Les mesures ne sont donc pas résolues temporellement. Les limitations d'infrastructures, de coût et de disponibilité des sources sont les raisons pour lesquelles la mesure *in-situ* de D_p est essentiellement réalisée par LII résolue en temps.

2.4.3 Microstructure, composition chimique et propriétés optiques

Cette section détaille les techniques de mesure permettant de caractériser les suies à l'échelle atomique. On inclut ici la microstructure (arrangement des atomes), la composition chimique et les propriétés optiques qui sont très importantes dans le cadre de l'étude *in-situ* des suies. Ces dernières sont liées à la microstructure et à la composition chimique des particules.

Parmi les techniques permettant d'étudier la structure interne des suies, on peut citer la spectroscopie Raman qui est un outil reposant sur la mesure du décalage de fréquence observé entre une impulsion laser excitatrice et le signal diffusé après son interaction avec les suies. Cette différence de fréquence provient de l'interaction entre les photons et les modes vibrationnels du milieu (émission ou absorption d'un phonon). Cette technique est très complète pour la caractérisation de la structure interne des suies car elle permet d'avoir accès de manière qualitative à la proportion de carbone graphitique, de carbone amorphe, de composés organiques ainsi qu'à des informations complémentaires comme les défauts cristallins ou encore la présence de certains groupes de molécules [131]. Cette technique est souvent appliquée de manière *ex-situ* sur des échantillons prélevés par déposition [132, 133]. Elle est difficilement applicable en ligne car l'intensité par particule du signal de diffusion Raman est faible. De fortes densités de particules sont nécessaires pour atteindre un rapport signal à bruit suffisant. Les mesures en phase aérosol en ligne nécessitent donc des temps d'intégration longs [134] rendant impossible la mesure dans un environnement lumineux comme une flamme sans saturer le détecteur. D'autres techniques *ex-situ* basées sur la spectrométrie de masse permettent l'analyse des espèces chimiques en phase gazeuse ou adsorbées à la surface des particules. Par exemple, la spectrométrie de masse par désorption/ionisation laser (LD/LI-TOF-MS) dans laquelle les espèces présentes en surface sont désorbées par une première impulsion laser puis ionisées par une deuxième impulsion afin de pouvoir les analyser avec un spectromètre à temps de vol représente une solution [135]. La spectrométrie de masse par faisceau moléculaire (MBMS) en ligne est adaptée à l'étude des HAP et radicaux présents dans la phase gazeuse [136]. La sélectivité de cette technique de mesure peut être améliorée durant la phase d'ionisation par ionisation multi-photon (REMPI) [137] ou mono-photon en utilisant un rayonnement synchrotron [138]. Une méthode analogue à la LD/LI TOF-MS est la spectrométrie de masse par microsonde laser (LMMS) qui utilise le même principe d'ionisation et de désorption par laser mais en utilisant une seule impulsion laser [139]. Ces techniques ont l'avantage de ne nécessiter qu'une petite quantité de suie. Pour les HAP, une forte sélectivité des isomères peut être atteinte en utilisant la chromatographie en phase gazeuse (GC) couplée à un spectromètre de masse [140]. La spectrométrie de masse par photo-ionisation (PIMS) peut être appliquée sur la phase gazeuse et sur la phase particulaire directement sur un flux de gaz brûlés en sortie de flamme [141]. Les spectrométries photoélectronique X (XPS) ou UV (UPS) utilisent des rayons X ou UV pour éjecter les électrons de cœur ou de valence de l'échantillon. Ces électrons sont détectés et le spectre obtenu permet de remonter aux espèces avec une grande sélectivité puisque il est possible de sonder les couches électroniques proches du noyau

[142]. La spectroscopie de masse des ions secondaires (SIMS) ou spectroscopie de masse neutre secondaire (SNMS) a également été utilisée pour l'analyse d'échantillons de suie puisque ces techniques permettent d'étudier les échantillons en profondeur en éjectant couche après couche les atomes [143]. Enfin, la spectrométrie de masse d'aérosol en temps réel (RTAMS) est une technique très complète permettant d'accéder à la taille (diamètre aérodynamique), à la composition chimique et à la densité des particules en ligne [144].

Pour ce qui est de la microscopie, on peut utiliser le TEM Haute Résolution qui permet d'obtenir directement des images de la microstructure interne des suies [145] (Figure 6). Enfin, la surface et la forme des particules peuvent être caractérisées grâce à la microscopie à force atomique (AFM) [146] ou la microscopie électronique à balayage (MEB) [147].

Les techniques citées ci-dessus sont adaptées à l'étude *ex-situ* d'échantillons de suie ou au mieux en ligne mais sont cependant impossibles à mettre en place dans une flamme de manière *in-situ*. Parmi les techniques de mesure *in-situ*, on peut citer les techniques de diffusion et d'extinction utilisées depuis de nombreuses années pour obtenir des informations sur les propriétés optiques des suies [68, 70, 148]. Bescond et al. [65] ont couplé des mesures d'extinction à un modèle de densité effective afin de montrer l'effet de la composition chimique (rapport OC/TC) des suies sur leurs propriétés optiques et plus particulièrement sur les fonctions d'absorption $E(m)$ et de diffusion $F(m)$ (voir section 2.5.4.1.1). La mesure d'extinction sur un spectre large de longueur d'onde peut permettre d'évaluer l'OBG (optical band gap) des suies [149, 150]. L'OBG est défini comme la différence d'énergie entre le plus haut état peuplé de la bande de valence et le plus bas état peuplé de la bande de conduction. Cette différence d'énergie est caractéristique de la structure carbonée. Des informations sur les propriétés d'absorption des suies sont également obtenues grâce à l'incandescence induite par laser (LII) [151, 152]. La dépendance spectrale de l'absorption est également définie à l'aide de « l'Ångström exponent » (AAE) [153] ($K_{ABS} \propto 1/\lambda^{AAE}$). Enfin, la section efficace d'absorption massique ou MAC est obtenue en couplant des mesures d'extinction et de LII avec un étalonnage de la LII en concentration massique [154].

2.4.4 Morphologie

L'analyse de la morphologie des suies réside principalement dans la détermination de la dimension fractale D_f . La microscopie TEM [43, 58] est usuellement utilisée afin de mesurer ce paramètre (hors ligne). Certains auteurs l'ont utilisé « en ligne » à partir de mesures de densité effective [155, 156] mais il a été montré par la suite que l'exposant de mobilité ainsi déterminé n'est pas strictement égal à la dimension fractale [157]. Pour ces raisons, la diffusion angulaire est préférée pour une analyse *in-situ* [56, 63]. Le préfacteur fractal k_f n'est quant à lui déterminé qu'à l'issue d'une analyse TEM [57, 58].

2.4.5 Concentration et masse

Cette section détaille les techniques de mesure permettant d'accéder à des informations de type masse et concentration des particules. Le terme « concentration » englobe ici la concentration volumique en nombre (nombre de particules par unité de volume), la concentration massique C_s (masse des particules par unité de volume de gaz) ou encore la fraction volumique f_v (rapport du volume d'aérosol sur volume de gaz porteur). De manière générale, pour des analyses *ex-situ* ou en ligne, les appareils qui comptent le nombre de particules, comme le CPC utilisé par le granulomètre SMPS, fournissent une concentration en nombre de particules. Il faudra cependant connaître le facteur de dilution de l'installation de prélèvement qui est souvent nécessaire pour ne pas saturer les compteurs de particules ainsi que la fonction de transfert du dispositif de prélèvement qui peut varier selon le diamètre des particules. Le TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) repose sur la mesure de la fréquence de résonance d'un système de filtration

traversé par l'aérosol. Il permet de mesurer une concentration massique (en kg/m^3) des particules en aérosol. Le CPMA (Centrifugal Particle Mass Analyser) est un classificateur de particules par masse et son couplage à un compteur permet la mesure de la distribution en masse. Le PPS (Pegasor Particle Sensor) est un autre instrument d'analyse *ex-situ* ou en ligne qui mesure un courant de fuite et l'associe via un étalonnage à la masse ou au nombre de particules par unité de volume de gaz.

Pour les techniques *in-situ*, la LII s'impose dans la littérature scientifique comme la méthode la plus répandue pour déterminer la fraction volumique ou la concentration massique de suie (voir section 2.5.4.2). L'extinction est aussi utilisée pour évaluer f_v (voir section 2.5.4.1.2). Elle est d'ailleurs la technique conventionnelle servant à étalonner la LII. Elle est couplée à une mesure de pyrométrie à deux couleurs dans le cadre de l'application de la MAE (Modulated Absorption/Emission) qui permet, grâce à la modulation du signal laser par une cellule de Bragg, d'obtenir la température des suies sans supposer de l'émissivité en plus de la fraction volumique de suies moyenne le long du trajet du faisceau laser [158]. Un développement de cette technique de mesure appliquée en deux dimensions dans une flamme axisymétrique a récemment été proposé par Legros et al. [159]. La mesure absolue du signal de diffusion élastique peut, quant à elle, permettre une détermination de la concentration en nombre volumique N_{agg} mais demande beaucoup de mesures additionnelles ou d'hypothèses sur la population d'agrégats étudiée (Equation (41)).

2.5 Description approfondie des techniques de mesures utilisées pour l'analyse des suies au cours de la thèse

Dans cette section seront détaillées de manière approfondie les techniques de mesures qui ont été utilisées et développées pendant ma thèse.

2.5.1 Sélection des techniques de mesure

Comme précisé dans la section 2.3, un large éventail de techniques de mesure autorise une analyse détaillée des particules de suie. Il convient donc de choisir celles qui sont le mieux adaptées à l'étude d'une flamme prémélangée, turbulente et swirlée. Les techniques optiques sont privilégiées car elles ne perturbent pas (ou peu) le milieu analysé. Elles permettent d'acquérir des mesures instantanées et, avec un matériel adapté, à haute-cadence. Ces deux derniers points sont particulièrement importants en milieu turbulent d'autant plus qu'il est possible de coupler les diagnostics optiques entre eux de manière à obtenir des corrélations entre diverses grandeurs scalaires. La LII sera utilisée pour la mesure de fraction volumique et de taille des particules primaires. Ce diagnostic laser, largement reconnu et utilisé dans diverses flammes, est sensible aux faibles f_v . C'est également la seule technique de mesure quasi non-intrusive (hormis la SAXS qui nécessite des équipements conséquents) permettant la mesure de D_p même si, nous le verrons plus loin, la mesure est indirecte. La diffusion élastique angulaire sera mise en place pour la mesure de taille des agrégats car c'est la seule technique optique permettant d'accéder à cette grandeur physique. Un développement de cette technique de mesure en 2D à haute cadence sera proposé afin d'obtenir un suivi temporel des particules de suie dans la flamme. Nous verrons que la dépendance spectrale des mesures de diffusion est également une information pertinente que ce soit pour déterminer la taille des particules ou pour avoir une indication de leur composition. Des méthodes intrusives avec prélèvement seront également appliquées : le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) pour la mesure de distribution de taille qui permettra d'obtenir une comparaison avec la mesure par diffusion et le TEM qui donnera accès à des informations de taille et de morphologie, ce qui complètera la description des agrégats produits dans la flamme.

2.5.2 Technique *ex-situ* : SMPS.

Les techniques de mesure *ex-situ* nécessitent un prélèvement de l'aérosol directement dans la flamme ou dans les gaz brûlés. Cette étape est délicate à mettre en œuvre et peut avoir un fort impact sur la précision de la mesure (voir section 2.4.1).

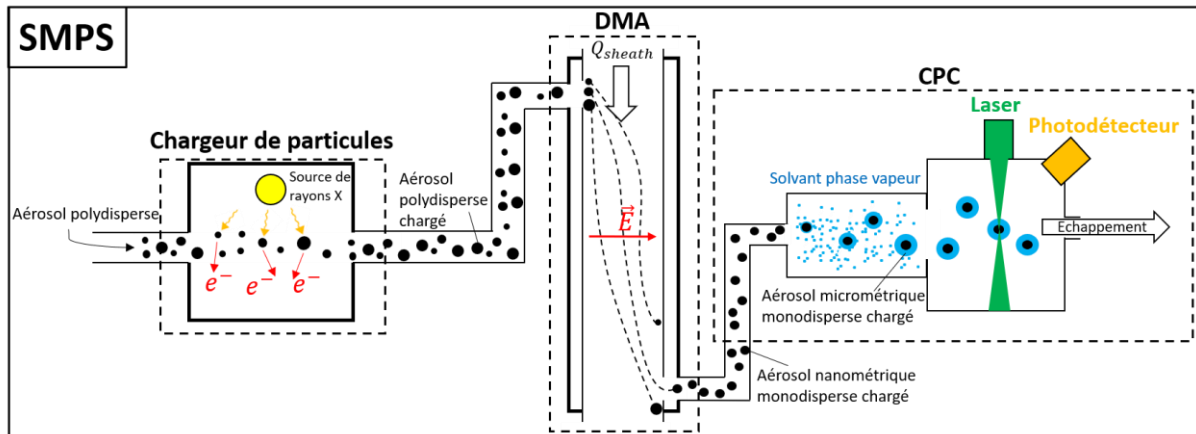


Figure 18 : Schéma de fonctionnement d'un SMPS.

Le SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) est un dispositif de mesure permettant de mesurer des distributions de taille de particules en diamètre de mobilité électrique. Il est composé d'un dispositif de charge des particules, d'un DMA (Differential Mobility Analyzer) et d'un CPC (Condensation Particle Counter) (voir Figure 18). Le fonctionnement de ce dispositif de mesure est le suivant : premièrement, l'aérosol polydispersé prélevé est bombardé de rayons X afin de charger électriquement les particules qui le compose. Il est ensuite acheminé vers un DMA. Cet appareil est constitué d'un cylindre externe et d'un cylindre interne possédant une entrée et une sortie pour les particules et dans lequel s'écoule un gaz à débit contrôlé (Q_{sheath} sur la Figure 18). Un champ électrique est appliqué dans ce cylindre de manière à créer une compétition entre les forces de trainée aérodynamiques et électriques s'appliquant aux particules. Ainsi l'aérosol polydispersé va pénétrer dans le cylindre interne et seule une certaine classe de particules de diamètre de mobilité fixé va pouvoir ressortir. On aura donc en sortie un aérosol monodispersé en diamètre de mobilité électrique. La dernière étape est de compter les particules présentes dans l'écoulement, c'est le rôle du CPC. Tout d'abord, les particules nanométriques sont mises en contact avec un solvant condensable en phase vapeur (habituellement de l'eau, du butanol ou de l'isopropanol) afin de former rapidement une goutte micrométrique. Les particules, maintenant de plus grande taille, peuvent être comptées optiquement avec un faisceau laser associé à un photodétecteur. Le principe de fonctionnement du SMPS requiert un balayage des classes de diamètre de mobilité qui prend d'autant plus de temps que la gamme de taille analysée est étendue. Cette particularité peut être contraignante lors d'études de phénomènes instationnaires comme par exemple la production de suies en flamme turbulente. Malgré ses inconvénients (prélèvement, dilution, lissage temporel, effet de charge, restitution d'un diamètre de mobilité difficilement interprétable), le SMPS est un dispositif de mesure couramment utilisé état de système de référence dans la communauté des aérosols de nanoparticules.

2.5.3 Microscope électronique à transmission

La microscopie électronique à transmission (TEM) est une technique de mesure utilisée pour la caractérisation d'échantillons minces comme une suie isolée par exemple. Cette technique consiste à faire interagir un faisceau d'électrons avec l'échantillon, puis à détecter les électrons provenant de cette interaction. Le prélèvement des agrégats est effectué sur une grille métallique directement insérée dans la flamme ou dans les gaz brûlés. Lorsque la grille est placée dans la flamme, le prélèvement est appelé thermophorétique. En effet, la grille froide est mise en contact avec la flamme pendant quelques secondes et les particules s'y déposent par thermophorèse [160]. Le dépôt peut également être réalisé avec un prélèvement des gaz brûlés dans la flamme [119] ou en sortie de chambre de combustion [161]. Cette méthode possède l'avantage de pouvoir analyser l'aérosol avec d'autres appareils de mesures *ex-situ* installés en parallèle. Les échantillons sont ensuite stockés puis analysés. Il est conseillé de conserver les échantillons sous atmosphère inerte et sec afin d'éviter d'éventuels changements morphologiques et géométriques relatifs aux réactions chimiques avec le gaz ambiant [122]. On peut observer le type d'images obtenues en TEM sur la Figure 7 et TEM haute résolution sur la Figure 6 où l'analyse des interférences entre les électrons transmis et diffractés permet d'obtenir des informations sur la microstructure du matériau. Le post-traitement des images est ensuite réalisé manuellement ou avec des algorithmes de traitement d'image. Bescond et al. [51] ont par exemple développé une méthode automatique de détermination de la distribution de taille des particules primaires basée sur le calcul de la carte des distances euclidiennes (Euclidian Distance Mapping en anglais). La détermination des éléments fractals peut également être effectuée avec une procédure automatique [162].

2.5.4 Techniques optiques *in-situ*

Comme discuté précédemment, les diagnostics optiques *in-situ* présentent plusieurs avantages par rapport aux techniques intrusives nécessitant un prélèvement. Premièrement, les perturbations produites sur le milieu à analyser sont négligeables : l'interaction d'un faisceau laser avec la flamme est brève (généralement quelques nanosecondes) et ne modifie pas les caractéristiques de l'écoulement, les transferts thermiques ou encore les réactions chimiques à la seule condition que la densité d'énergie apportée par le faisceau laser soit inférieure à un niveau fixé. En effet, des modifications à l'échelle microscopique peuvent apparaître pour des densités d'énergie laser trop élevées comme on le détaillera dans le cas de la LII dans la sous-section 2.5.4.2. Les techniques optiques *in-situ* permettent également d'accéder à des mesures instantanées. L'étude des phénomènes stationnaires est alors envisageable de même qu'un suivi dynamique (résolu en temps) grâce à l'emploi de sources laser et de systèmes de détection haute-cadence. Ces études demandent cependant une expertise importante dans la mise en œuvre des équipements expérimentaux (peu de dispositifs commerciaux à ce jour) et dans l'analyse des signaux de mesure qui demande un post-traitement sophistiqué qu'il convient de concevoir mathématiquement et numériquement contrairement aux systèmes de mesure commerciaux *ex-situ* qui donnent souvent un affichage en temps réel des résultats.

2.5.4.1 Diffusion élastique et extinction

2.5.4.1.1 Théorie de l'interaction lumière/suie

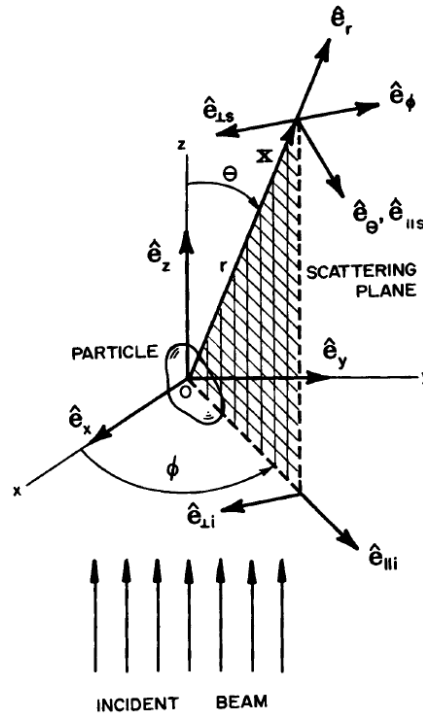


Figure 19 : Diffusion par une particule [163].

On distingue deux phénomènes physiques apparaissant lorsqu'un faisceau d'éclairement $E [W.m^{-2}]$ interagit avec une particule :

- **L'absorption** : la particule va emmagasiner l'énergie de l'onde incidente.
- **La diffusion** : la particule va redistribuer spatialement l'énergie apportée par l'onde incidente.

On peut quantifier ces deux procédés en calculant les sections efficaces de diffusion C_{sca} et d'absorption C_{abs} à partir du flux diffusé Φ_{sca} ou absorbé Φ_{abs} par la particule :

$$C_{sca} = \frac{\Phi_{sca}}{E} \quad (11)$$

$$C_{abs} = \frac{\Phi_{abs}}{E} \quad (12)$$

On différencie la section efficace de diffusion totale C_{sca} qui est relative à l'énergie totale diffusée dans tout l'espace, de la section efficace de diffusion angulaire $\frac{dC_{sca}}{d\Omega}(\theta)$ qui permet de quantifier la capacité d'une particule à diffuser à un angle de diffusion θ donné et par unité d'angle solide. L'angle de diffusion correspond à l'angle entre la direction du champ incident et celle du champ diffusé (voir Figure 19). On a donc la relation suivante :

$$C_{sca} = \int_{\Omega}^{\Omega+d\Omega} \frac{dC_{sca}}{d\Omega}(\theta) d\Omega \quad (13)$$

On peut exprimer les composantes horizontale $E_{h,sca}$ et verticale $E_{v,sca}$ du champ électrique diffusé à partir du champ électrique incident $E_{h,i}$ et $E_{v,i}$ et de la matrice de diffusion (en champ lointain) :

$$\begin{bmatrix} E_{h,sca} \\ E_{v,sca} \end{bmatrix} = \frac{e^{-ik(r-z)}}{-ikr} \begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{h,i} \\ E_{v,i} \end{bmatrix} \quad (14)$$

k est le vecteur d'onde dans le milieu considéré ($k = \frac{2\pi}{\lambda}$ dans l'air), r est la distance à la particule (positionnée à l'origine) et S_1, S_2, S_3, S_4 sont les éléments de la matrice de diffusion déterminés grâce à la théorie de l'interaction lumière/particule. Un développement détaillé dans l'ouvrage de Bohren et Huffman [163] (pages 69-72) donne les expressions des sections efficaces de diffusion angulaire selon les états de polarisation des ondes incidentes et diffusées :

$$\begin{aligned} - \text{ Incidente verticale, diffusée verticale : } & \frac{dC_{vv,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_1(\theta)|^2}{k^2} \quad (15) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} - \text{ Incidente horizontale, diffusée horizontale : } & \frac{dC_{hh,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_2(\theta)|^2}{k^2} \quad (16) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} - \text{ Incidente verticale, diffusée horizontale : } & \frac{dC_{vh,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_3(\theta)|^2}{k^2} \quad (17) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} - \text{ Incidente horizontale, diffusée verticale : } & \frac{dC_{hv,sca}}{d\Omega}(\theta) = \frac{|S_4(\theta)|^2}{k^2} \quad (18) \end{aligned}$$

Théorie de Mie

Pour une particule quelconque, la modélisation de la diffusion de la lumière est une tâche complexe recourant à des méthodes numériques avancées et coûteuses en termes de temps de calcul (DDA [164], T-matrix [165], GMM [166]). Cependant, Gustav Mie propose au début du $XX^{\text{ème}}$ siècle un développement analytique des équations de Maxwell permettant d'exprimer le champ électromagnétique diffusé par une particule sphérique d'indice optique homogène :

$$|E_{h,sca}|^2 = \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} \cos^2 \Phi |S_2|^2 |E_0|^2 \quad (19)$$

$$|E_{v,sca}|^2 = \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} \sin^2 \Phi |S_1|^2 |E_0|^2 \quad (20)$$

Pour plus d'information sur la théorie de Mie, le lecteur pourra consulter l'ouvrage de Bohren et Huffman [163].

Approximation de Rayleigh

L'approximation de Rayleigh est un cas asymptotique de la théorie de Rayleigh valable pour des particules petites devant la longueur d'onde, c'est-à-dire lorsque le paramètre de taille $x_p (= \frac{\pi D}{\lambda}) \ll 1$. Dans ce cas particulier, la particule est approximée par un dipôle oscillant et la matrice de diffusion se réduit à :

$$\begin{bmatrix} S_2 & S_3 \\ S_4 & S_1 \end{bmatrix} = ik\zeta \begin{bmatrix} \cos\theta & 0 \\ 0 & i \end{bmatrix} \quad (21)$$

où ζ est la polarisabilité isotrope de la matière, fonction de l'indice optique complexe m . On peut ainsi définir les sections efficaces dans le cadre de cette approximation pour l'absorption :

$$C_{abs}^p = \frac{4\pi x_p^3}{k^2} E(m) \quad (22)$$

avec $E(m)$ la fonction d'absorption :

$$E(m) = \text{Im} \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right) \quad (23)$$

Pour la diffusion totale d'une onde incidente non-polarisée :

$$C_{sca}^p = \int_{4\pi} \frac{\left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{vv} + \left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{hh}}{2} d\Omega = \frac{8\pi x_p^6}{3k^2} F(m) \quad (24)$$

avec $F(m)$ la fonction de diffusion :

$$F(m) = \left| \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \right|^2 \quad (25)$$

Pour la diffusion angulaire en polarisation verticale/verticale et horizontale/horizontale :

$$\left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{vv} = \frac{x_p^6}{k^2} F(m) \quad (26)$$

$$\left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{hh} = \frac{x_p^6}{k^2} \cos^2(\theta) F(m) \quad (27)$$

On observe sur la Figure 7 (b) l'ordre de grandeur d'un agrégat de suie : quelques centaines de nanomètres. L'approximation de Rayleigh ne peut donc pas être appliquée à l'agrégat entier qui ne satisfait pas le critère de petites dimensions devant la longueur d'onde pour des interactions avec la lumière émettant dans le visible. En revanche, les particules primaires qui composent l'agrégat, et qui ont un diamètre de l'ordre de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres, sont suffisamment petites pour entrer dans le cadre de l'approximation de Rayleigh. On remarque dans les équations (26) et (22) que l'absorption est proportionnelle au volume de la particule (terme x_p^3) alors que le signal de diffusion est proportionnel au volume au carré (terme x_p^6). Avec cette remarque, les équations (26) (26) et (22) peuvent être exprimées en fonction du volume V d'une particule :

$$C_{abs}^p = \frac{6\pi}{\lambda} E(m) V \quad (28)$$

$$C_{sca}^p = \frac{24\pi^3}{\lambda^4} F(m) V^2 \quad (29)$$

$$\left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{vv} = \frac{9\pi^2}{\lambda^4} F(m) V^2 \quad (30)$$

Théorie de Rayleigh-Debye-Gans (RDG)

Peter Debye développe au début du $XX^{\text{ème}}$ siècle une extension de l'approximation de Rayleigh pour des particules de forme non sphérique. Cette théorie possède deux critères de validité [167] :

- L'indice optique est proche de 1 : $|m - 1| \ll 1$

- Les différences de phase au sein de l'agrégat sont négligées : $kD|m - 1| \ll 1$

Puisque l'absorption est proportionnelle au volume et le signal de diffusion au carré du volume, pour un agrégat composé de particules primaires de diamètres égaux et en contact ponctuel avec d'autres particules primaires, les sections efficaces s'écrivent alors [168]:

$$C_{abs}^a = N_p C_{abs}^p \quad (31)$$

$$C_{sca}^a = N_p^2 C_{sca}^p \quad (32)$$

$$\left(\frac{dC_{sca}^a}{d\Omega} \right)_{vv} = N_p^2 \left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{vv} \quad (33)$$

Théorie de Rayleigh-Debye-Gans for Fractal Aggregates (RDG-FA)

Afin de prendre en compte la morphologie fractale des suies, Dobbins et Megaridis proposent en 1991 [169] d'ajouter des facteurs de forme f et g aux sections efficaces de la RDG qui permettent de considérer la nature fractale des agrégats et leur impact sur la répartition angulaire de l'énergie diffusée :

$$C_{abs}^a = N_p C_{abs}^p \quad (34)$$

$$C_{sca}^a = N_p^2 C_{sca}^p g(k, D_f) \quad (35)$$

$$\left(\frac{dC_{sca}^a}{d\Omega} \right)_{vv} = N_p^2 \left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega} \right)_{vv} f(q^2, R_g^2) \quad (36)$$

avec q la norme du vecteur de diffusion :

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \frac{\theta}{2} \quad (37)$$

Dobbins et Megaridis proposent également l'expression suivante pour le facteur de forme de diffusion f :

$$f = \begin{cases} e^{-\frac{(qR_g)^2}{3}} & \text{si } (qR_g)^2 \leq \frac{3}{2}D_f \text{ (Régime de Guinier)} \\ \left(\frac{3}{2e} \frac{D_f}{(qR_g)^2} \right)^{D_f/2} & \text{si } (qR_g)^2 \geq \frac{3}{2}D_f \text{ (Régime de puissance)} \end{cases} \quad (38)$$

Une population de petites particules analysée aux petits angles de diffusion et avec une grande longueur d'onde diffusera exclusivement en régime de Guinier tandis que de grands agrégats analysés aux grands angles avec une courte longueur d'onde diffuseront en régime de puissance. On remarque que seul le régime de puissance dépend explicitement de la dimension fractale.

Disposant de la section efficace de diffusion angulaire pour des particules de suies, on peut alors déterminer la distribution angulaire et spectrale du flux radiatif diffusé en polarisation verticale/verticale $I_{vv}(\theta, \lambda)$ par des particules de suies possédant N_p particules primaires par agrégat avec une concentration en nombre $N_{agg}[\#.m^{-3}]$:

$$I_{vv}(\theta, \lambda) = E_i(\lambda) V_m N_{agg} \left(\frac{dC_{sca}^a}{d\Omega} \right)_{vv} = E_i(\lambda) V_m N_{agg} N_p^2 \frac{x_p^6}{k^2} F(m) f(q^2, R_g^2) \quad (39)$$

où V_m est le volume de mesure dans lequel est contenu l'aérosol observé et exposé à la source lumineuse, $E_i(\lambda)$ est l'éclairement incident sur la particule et x_p est le paramètre de taille reposant sur le diamètre des sphérules primaires. On peut également exprimer le flux radiatif diffusé en fonction du diamètre de gyration avec la loi fractale (équation (6)) :

$$I_{vv}(\theta, \lambda) = E_i(\lambda) V_m N_{agg} k_f \left(\frac{D_g}{D_p} \right)^{2D_f} \frac{x_p^6}{k^2} F(m) f(q^2, R_g^2) \quad (40)$$

Puisque les populations de suies étudiées sont rarement monodisperses en taille, il est intéressant de réécrire l'expression précédente intégrée sur une distribution de taille polydisperse comme :

$$I_{vv}(\theta, \lambda) = E_i(\lambda) V_m N_{agg} k_f \left(\frac{1}{D_p} \right)^{2D_f} \frac{x_p^6}{k^2} F(m) \int_0^\infty D_g^{2D_f} f(q^2, R_g^2) p(D_g) dD_g \quad (41)$$

$p(D_g) dD_g$ représente la probabilité de rencontrer des particules dont le diamètre de gyration est compris entre D_g et $D_g + dD_g$. L'objectif des diagnostics optiques basés sur la diffusion élastique de la lumière est donc d'extraire de cette formule des informations sur la population des particules de suie étudiées. Il s'agit d'un problème inverse, le problème direct étant de retrouver le signal de diffusion à partir d'une population connue.

2.5.4.1.2 Extinction

L'extinction est définie comme la somme des énergies diffusée et absorbée par la particule. On a donc l'expression suivante pour la section efficace d'extinction :

$$C_{ext} = C_{abs} + C_{sca} \quad (42)$$

Dans le cadre de la RDG-FA et pour une longueur d'onde suffisamment élevée, la contribution de la diffusion est souvent considérée comme négligeable et la section efficace d'extinction se résume à celle de l'absorption. On peut ainsi définir le coefficient d'extinction $K_{ext} [m^{-1}]$ comme :

$$K_{ext} = C_{abs} * N_{agg} \quad (43)$$

D'autre part, on peut déterminer expérimentalement ce coefficient avec la loi de Beer-Lambert pour un milieu dilué :

$$K_{ext} = -\frac{1}{L} \ln \left(\frac{I}{I_0} \right) \quad (44)$$

L est la longueur d'interaction avec le milieu, I_0 est l'intensité avant passage dans le milieu analysé et I est l'intensité après passage dans le milieu analysé. On peut alors relier le coefficient d'extinction obtenu lors de l'atténuation d'un faisceau avec son expression déduite de la théorie de l'interaction lumière/particule.

2.5.4.1.3 Inversion du signal de diffusion

Plusieurs méthodes ont été proposées pour exploiter (inverser) le signal de diffusion. Nous nous focaliserons dans cette étude sur des méthodes d'inversion dont le but est de retrouver la taille ou la distribution de taille de la population d'agrégats de suies à l'étude. On peut d'abord simplifier le problème en déterminant une

taille représentative de la population sans chercher à retrouver la distribution de taille complète. La première approche [56, 63, 170] considère la population de suies étudiée comme monodispersée et fait l'hypothèse que l'on se place aux petits angles, c'est-à-dire en régime de Guinier. Si on normalise l'intensité diffusée à un angle θ par celle à un angle de diffusion de 0° , on aboutit à :

$$\frac{I_{vv}(q)}{I_{vv}(0)} = e^{-\frac{q^2 R_g^2}{3}} \quad (45)$$

On obtient la relation suivante en effectuant le développement limité de l'équation ci-dessus (quand $q^2 R_g^2 \rightarrow 0$) :

$$\frac{I_{vv}(q)}{I_{vv}(0)} = 1 - \frac{q^2 R_g^2}{3} \quad (46)$$

Le rayon de gyration est déduit de ce rapport d'intensité qui évolue avec q^2 comme une droite de pente $-R_g^2/3$. L'intensité diffusée à 0° étant inaccessible expérimentalement, cette évolution doit donc être extrapolée avec des mesures réalisées à plusieurs angles. De plus, on n'obtient par cette méthode aucune information sur la polydispersion, ce qui peut biaiser l'interprétation des résultats.

Une deuxième méthode, proposée par De Iuliis et al. [171], est de calculer un rapport d'intensité à deux angles non-nuls. On parle alors de rapport de dissymétrie :

$$R_{vv} = \frac{I_{vv}(q_1)}{I_{vv}(q_2)} = \frac{\int f(q_1 R_g) N_p^2 p(N_p) dN_p}{\int f(q_2 R_g) N_p^2 p(N_p) dN_p} \quad (47)$$

L'utilisation du rapport de dissymétrie présente l'avantage de s'affranchir d'un bon nombre de paramètres inconnus ou/et compliqués à mesurer tels que $D_p, k_f, N_{agg}, F(m)$. Les auteurs définissent ensuite un paramètre qui est le rayon de gyration associé au nombre moyen de particules primaires par agrégat dans la population étudiée $\bar{N}$:

$$R_{gm1} = D_p \left(\frac{\bar{N}}{k_f} \right)^{1/D_f} \quad (48)$$

Une nouvelle fonction f est ensuite définie comme émanant d'une population polydisperse représentée par un seul paramètre appelé R_{gm1} . Cette fonction est appelée f^* et est définie comme :

$$\overline{f(q R_g)} = f^*(q R_{gm1}) \quad (49)$$

Ce nouveau facteur de forme de diffusion f^* est construit numériquement en fixant l'écart-type géométrique d'une distribution log-normale, ce qui permet de constituer un lien entre le rapport d'intensité mesuré et le rayon R_{gm1} . Bien qu'elle prenne en compte la polydispersion, cette méthode n'apporte pas d'informations sur celle-ci et peut donner des résultats entachés d'une erreur significative si l'écart-type fixé est différent de l'écart-type réel de la population.

La détermination d'une distribution de taille à partir de mesure de diffusion est un problème d'inversion qui a été présenté comme mathématiquement mal posé par Burr et al. [172] pour cause de non-unicité de la solution ou plus précisément présentant une sensibilité importante à l'incertitude de la mesure. Link et al. [173] montrent cela d'un point de vue purement expérimental. Dans leurs études, les auteurs montrent que, pour un problème faiblement contraint ($D_p, D_f, N_{agg}, F(m)$ laissés libres), il n'est pas possible de

déterminer une distribution de taille unique car une grande variété de distributions peut décrire un même signal de diffusion expérimental (ce dernier étant entaché d'une incertitude de mesure). Dans une autre étude [174], ces mêmes auteurs soulignent qu'il est cependant possible d'introduire une information « a priori » sur la mesure pouvant émaner d'une estimation, d'une mesure annexe ou encore d'une simulation numérique afin de contraindre le problème et de guider la minimisation par moindres carrés. Cette information « a priori » est une valeur moyenne et un écart-type, représentant l'incertitude de l'estimation, pour chaque paramètre recherché. Cette méthode est appelée analyse ou inférence Bayésienne du problème de diffusion inverse, en référence au théorème formulé par Thomas Bayes en 1763 utilisé pour calculer la probabilité d'un événement à partir d'une information ou estimation « a priori » sur celui-ci. Cette approche sera utilisée dans le chapitre 3.

Plusieurs auteurs ont cependant proposé des méthodes permettant d'extraire une distribution de taille d'une mesure de diffusion. Par exemple, la RDG-PFA (Rayleigh-Debye-Gans theory for Polydisperse Fractal Aggregates) proposée par Kölyü et Faeth [175] définit une section efficace de diffusion moyenne pour une population polydisperse d'agrégats comme le produit de la section efficace d'une particule et de la moyenne du produit du nombre de particules par agrégat au carré et du facteur de forme :

$$\overline{\left(\frac{dC_{sca}^a}{d\Omega}\right)}_{vv} = \left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega}\right)_{vv} \int_0^\infty N_p^2 f(q^2, R_g^2) p(N_p) dN_p = \left(\frac{dC_{sca}^p}{d\Omega}\right)_{vv} \overline{N_p^2 f(q^2, R_g^2)} \quad (50)$$

$\overline{N_p^2 f(q^2, R_g^2)}$ est le moment d'ordre 1 (la moyenne) du produit de N_p^2 et f . Ce moment de produit est ensuite simplifié en produit de moments :

$$\overline{N_p^2 f(q^2, R_g^2)} = \overline{N_p^2} \overline{f(q^2, R_g^2)} \quad (51)$$

$\overline{R_g^2}$ est un rayon représentatif moyen qui peut être exprimé analytiquement en considérant une population diffusant strictement en régime de Guinier ou en régime de puissance [169, 175]. Ces expressions analytiques dépendent des rapports de moments de la distribution qui peuvent être déterminés à partir de mesures aux petits angles en régime de Guinier et aux grands angles en régime de puissance. C'est ce que propose Lyer et al. [176] afin de contraindre la recherche des paramètres $N_{p,geo}$ et $\sigma_{N_{p,geo}}$ de la distribution log-normale. Cette méthode repose cependant sur l'hypothèse que toutes les particules diffusent dans un seul régime (Guinier ou puissance) qui va dépendre de l'angle de diffusion mais également de la distribution en taille qui est justement l'élément à trouver. Une seconde méthode proposée par Sorensen et al. [63] est basée sur la détermination de deux rayons de gyration. Le premier rayon est issu d'une mesure aux petits angles en utilisant l'équation (46) mais est exprimé, comme dans la méthode précédente, en fonction d'un rapport de moments de la distribution. Le second rayon est obtenu en couplant une mesure de diffusion et une mesure d'extinction, et dépend aussi de moments de la distribution. La contrainte du problème par ces moments de la distribution permet ensuite de déterminer les paramètres de la distribution. Enfin, Caumont-Prim et al. [177] ont récemment développé une méthodologie de mesure à trois angles de diffusion permettant de retrouver les deux paramètres de la distribution de taille des suies. Les rapports de dissymétrie (Equation (47)) sont calculés à deux angles θ_1 et θ_2 en normalisant l'intensité diffusée à ces angles par l'intensité diffusée au troisième angle θ_{ref} (angle de référence). Les deux rapports de dissymétrie sont ensuite interprétés comme provenant d'une population monodisperse de rayon de gyration R_g^* :

$$R_{vv}(\theta) = \frac{I_{vv}(\theta)}{I_{vv}(\theta_{ref})} = \frac{f(q, R_g^*)}{f(q_{ref}, R_g^*)} \quad (52)$$

R_g^* est ensuite calculé pour chaque angle. Pour une population monodisperse, R_g^* est égal au rayon de giration réel des suies étudiées et donc indépendant de l'angle. En revanche, pour une population polydisperse, il variera en fonction de θ . C'est cette variation, marqueuse de la polydispersion, qui est ensuite exploitée. En effet, deux paramètres α et β sont définis tels que :

$$\alpha = R_g^*(\theta_1) - R_g^*(\theta_2) \quad (53)$$

$$\beta = \frac{R_g^*(\theta_1) + R_g^*(\theta_2)}{2} \quad (54)$$

α représente la variation de R_g^* entre θ_1 et θ_2 ; ce paramètre est donc nul pour une population monodisperse et variera avec la polydispersion. β représente l'amplitude de R_g^* , c'est-à-dire sa valeur moyenne et est relié au mode de la distribution. On peut montrer qu'un couple α, β est relié à un seul couple de paramètres de distribution de taille de suies $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$ (voir Figure 20). Les auteurs appliquent leur méthode en flamme et à des agrégats produits par un générateur de suies tout en comparant leurs mesures à des mesures *ex-situ* TEM (Transmission Electron Microscopy) et SMPS. La sensibilité de la méthode de mesure à l'incertitude de mesure peut être évaluée à l'aide de diagrammes d'iso-contours. En effet, comme on peut le voir sur la Figure 20, la différence de pente entre les iso-contours de α et β traduit cette sensibilité : si les pentes entre les courbes bleues et rouges (qui sont associées respectivement à des iso-valeurs de α et β) sont proches, une faible erreur sur la mesure provoquera une erreur élevée sur le résultat alors que si les pentes sont très différentes voir orthogonales dans le meilleur des cas, la distribution calculée sera peu sensible à l'erreur de mesure. On observe que la sensibilité de la méthode à l'incertitude augmente avec la polydispersion. Le principal avantage de cette méthode repose sur le fait d'utiliser des rapports de dissymétrie, ce qui permet de s'affranchir de nombreux paramètres tels que $D_p, F(m), N_{agg}, I_0$ and k_f . La dimension fractale doit être supposée ou mesurée, par exemple avec des mesures de diffusion en régime de puissance.

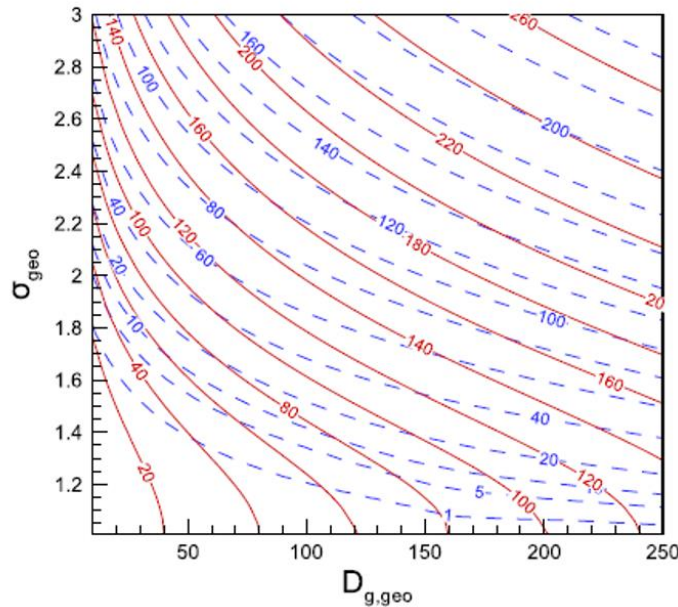


Figure 20 : Diagramme d'iso-contours de α (lignes pointillées bleues) et β (lignes pleines rouges) pour une plage de distributions réalistes rencontrées expérimentalement et pour les angles suivants : $\theta_1 = 15^\circ, \theta_2 = 120^\circ$ et $\theta_{ref} = 50^\circ$ et $D_f = 1.7$.

2.5.4.2 Incandescence induite par laser

2.5.4.2.1 Interaction lumière/particule en LII

L'incandescence induite par laser est une technique de mesure optique principalement utilisée pour la mesure de fraction volumique de suies f_v et du diamètre des particules primaires D_p . Son principe est de faire interagir une impulsion laser sous forme d'un faisceau ponctuel ou sous forme d'une nappe laser avec les agrégats afin de les chauffer à très haute température par absorption (voir section 2.5.4.1.1). Comme tout corps soumis à une température élevée, les suies vont émettre un rayonnement électromagnétique détectable dans le domaine du visible qui dépend de leur température T_s et de l'émissivité de leur surface ϵ_s :

$$L_s(T_s, \lambda) = \epsilon_s(\lambda) L_{BB}(T_s, \lambda) \quad (55)$$

où L_s est la luminance émise par les particules à la longueur d'onde λ , $\epsilon_s(\lambda)$ est leur émissivité et L_{BB} est la luminance de corps noir (loi de Planck). En régime de Rayleigh et avec l'hypothèse que l'extinction se réduit au processus d'absorption, l'émissivité des suies peut s'exprimer d'après la loi de rayonnement de Kirchhoff et en utilisant l'équation (44) comme :

$$\epsilon_s = \alpha_s = \frac{I_{ext}}{I_0} = \frac{I_0 - I_{trans}}{I_0} = 1 - \frac{I_{trans}}{I_0} = 1 - e^{-K_{ext}l_v} \quad (56)$$

α_s est l'absorptivité des suies, I_0 est l'intensité du laser, I_{ext} est l'intensité « éteinte », I_{trans} est l'intensité transmise et l_v représente la longueur d'interaction avec l'aérosol de coefficient d'extinction K_{ext} . Comme précisé ci-dessus, la LII permet, entre autres, de mesurer la fraction volumique de suies f_v qui peut s'exprimer comme le produit de la concentration en nombre de suies N_{agg} (en *particules/m³*) et du volume d'un agrégat :

$$f_v = N_{agg} N_p \frac{\pi D_p^3}{6} \quad (57)$$

A l'aide de l'équation (42), le coefficient d'extinction en régime de Rayleigh peut ensuite être exprimé en fonction de cette grandeur :

$$K_{ext} = N_{agg} C_{abs}^a = N_{agg} N_p \frac{4\pi x_p^3}{k^2} E(m) = \frac{6\pi}{\lambda} f_v E(m) \quad (58)$$

En supposant $K_{ext}l_v \ll 1$ (faible épaisseur optique), le développement limité au premier ordre de l'équation (56) donne :

$$\epsilon_s = K_{ext}l_v = \frac{6\pi}{\lambda} f_v E(m) l_v \quad (59)$$

d'où l'expression suivante pour la luminance des suies :

$$L_s(T_s, \lambda) = \frac{6\pi}{\lambda} f_v E(m(\lambda)) l_v L_{BB}(T_s, \lambda) \quad (60)$$

On remarque dans cette expression finale que le signal émis par des suies chauffées à une température T_s dépend linéairement de la fraction volumique de celles-ci. On s'intéressera dans la section suivante aux méthodes d'étalonnage du signal de LII afin de mesurer cette fraction volumique.

Jusqu'à présent, on ne s'est pas intéressé à la dynamique temporelle de la température T_s cours de l'expérience. Pourtant, cette évolution peut donner des informations supplémentaires. La température d'une particule est régie par les transferts thermiques ayant lieu avec le milieu extérieur qui sont résumés graphiquement dans la Figure 21.

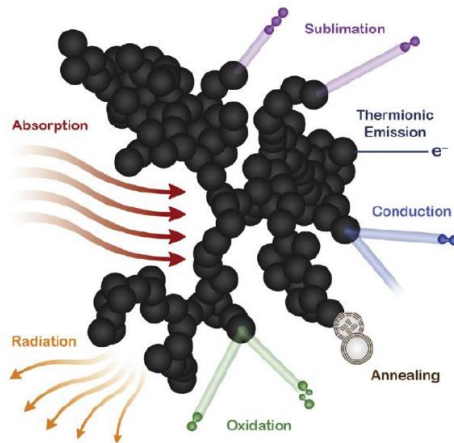


Figure 21 : Echanges thermiques en LII [178].

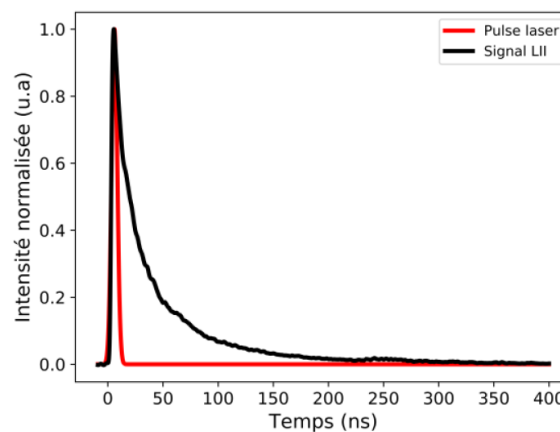


Figure 22 : Exemple d'évolution temporelle d'un signal de LII [179].

Comme on peut le constater sur la Figure 22, l'absorption de l'impulsion laser provoque une augmentation très rapide du signal LII (donc de la température de la particule) jusqu'à atteindre une valeur maximale. Le signal décroît ensuite plus lentement, typiquement durant quelques centaines de nanosecondes. Cette décroissance est, dans un premier temps, pilotée par le processus de sublimation, intervenant pendant l'interaction avec l'impulsion lumineuse moyennant une densité d'énergie déposée dans le milieu par l'impulsion laser suffisamment élevée. S'ensuit un refroidissement plus lent causé par le processus de conduction gouverné par les collisions avec les molécules du milieu ambiant. D'autres mécanismes, bien que

moins prédominants et détaillés sur la Figure 21, peuvent être pris en compte afin de reproduire le plus fidèlement possible la décroissance du signal de LII [180] : les pertes par émission radiative de la particule (le signal que l'on mesure) et par émission thermoionique (expulsion des électrons des couches externes sous l'effet de l'agitation thermique) ainsi que les gains d'énergie interne par annealing (réorganisation microstructurale exothermique des couches de carbones) et par oxydation (qui peut aussi être endothermique). L'équation du bilan d'énergie interne de la particule s'écrit alors :

$$\frac{dU}{dt} = \dot{Q}_{abs} + \dot{Q}_{rad} + \dot{Q}_{cond} + \dot{Q}_{sublim} + \dot{Q}_{anneal} + \dot{Q}_{thermoionique} + \dot{Q}_{ox} \quad (61)$$

La résolution de cette équation permet de modéliser l'histoire thermique des particules. La forme de la décroissance dépendra de plusieurs paramètres expérimentaux comme la densité d'énergie et le profil spatial du faisceau laser mais également de grandeurs relatives aux particules de suie dont le diamètre des particules primaires D_p . On observe ce phénomène sur la Figure 23 sur laquelle sont tracées plusieurs modélisations de décroissances temporelles de température de suie : plus D_p est grand et plus le temps caractéristique de décroissance du signal de LII est grand. C'est cette particularité qui permet d'associer à une mesure de décroissance temporelle (TiRe-LII) une estimation du diamètre des sphérules primaires. Le résultat de cette technique de mesure sera fonction de la modélisation des flux de chaleur entrant en jeu dans l'équation différentielle (61). En pratique, la détection du signal de LII doit être assez rapide afin de capter la décroissance du signal dont le temps caractéristique est de quelques centaines de nanosecondes. Des photomultiplicateurs [96], des caméras haute-cadence [181, 182], plusieurs caméras basse-cadence [183] ou une seule avec décalage de l'ouverture peuvent alors être utilisés [184, 185]. Le choix du type du système de détection dépendra du milieu (instationnarité) et du nombre de dimensions devant être investiguées.

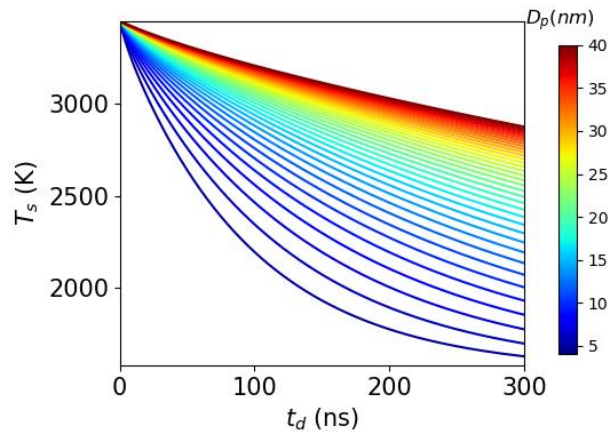


Figure 23 : Décroissance de la température d'une particule de suie pour différents D_p en fonction du temps écoulé depuis l'interaction avec l'impulsion laser t_d . Ces courbes sont calculées avec le logiciel LIISim [186] (modèle de Liu et al. [180, 187]).

Il est également possible de tenir compte de la polydispersion en taille des particules primaires dans la modélisation de la décroissance du signal de LII. L'hypothèse de distribution log-normale est souvent supposée (Equation (7)). Dans ce cas, les paramètres recherchés seront le diamètre médian $D_{p,geo}$ ainsi que l'écart-type géométrique $\sigma_{p,geo}$. Le problème étant cependant mathématiquement mal posé, l'inversion sera très sensible au rapport signal-à-bruit (SNR) et aux paramètres des modèles des flux de chaleur [188, 189].

2.5.4.2.2 Description du modèle LII utilisé

Le modèle utilisé au cours de ma thèse a été développé par Liu et al. [180, 187]. L'équation différentielle de l'énergie interne des particules de suie est réduite à l'expression suivante :

$$\frac{dU}{dt} = \dot{Q}_{rad} + \dot{Q}_{cond} + \dot{Q}_{sublim} \quad (62)$$

L'oxydation, l'annealing et l'émission thermoïonique ne sont pas pris en compte car ils sont considérés comme des phénomènes intervenant au second ordre. L'absorption n'est pas prise en compte non plus car ce terme conditionne uniquement la température maximale atteinte, ce qui n'est pas utile ici puisqu'on ne simule que la décroissance temporelle de la température à laquelle nous avons directement accès expérimentalement. L'équation (62) est couplée à l'équation différentielle de la masse M de la particule qui peut varier à cause de la sublimation :

$$\frac{dM}{dt} = \frac{-\pi D_p^2 W_v \alpha_M p_v}{R_p T_s} \left(\frac{R_m T_s}{2\pi W_v} \right) \quad (63)$$

W_v est la masse molaire des suies en phase vapeur, R_m et R_p représentent la constante des gaz parfait dans différentes unités, p_v est la pression partielle de suie en phase vapeur et α_M un coefficient d'ajustement appelé « mass accommodation coefficient » en anglais et dont la valeur est fixée à 0,77. Ces deux équations sont résolues numériquement grâce à la méthode d'Euler avec un pas de temps de 100 ps.

Nous allons maintenant décrire la modélisation des différents termes de l'équation (62). La variation d'énergie interne est reliée à la variation de température via la capacité thermique massique c_s et la masse de la particule :

$$\frac{dU}{dt} = \rho_s c_s \frac{\pi}{6} D_p^3 \frac{dT_s}{dt} \quad (64)$$

ρ_s est la masse volumique des suies. Le terme de transfert radiatif est modélisé par un rayonnement de corps noir émis par la surface (πD_p^2) de la sphère d'émissivité ϵ :

$$\dot{Q}_{rad} = \pi D_p^2 \int_0^\infty \epsilon L_{BB}(\lambda, T_s) d\lambda \quad (65)$$

Il faut maintenant déterminer l'émissivité ϵ . En s'appuyant sur l'hypothèse de Kirchhoff (équilibre thermodynamique donc $\Phi_{emis}[W] = \Phi_{abs}[W]$) et sur l'hypothèse d'une particule recevant un éclairement de type corps noir $E_{BB}[W \cdot m^{-2}]$, la définition de la section efficace d'absorption est :

$$\Phi_{emis} = E_{BB} C_{abs} \quad (66)$$

De plus, la définition de l'émissivité est le rapport entre le flux émis par la particule sur le flux qu'émettrait un corps noir de même surface. En utilisant l'équation (66) et l'expression de la section efficace d'absorption totale en régime de Rayleigh (équation (29)), on obtient :

$$\epsilon = \frac{\Phi_{emis}}{\pi D_p^2 E_{BB}} = \frac{C_{abs}}{\pi D_p^2} = \frac{4\pi D_p E(m)}{\lambda} \quad (67)$$

Le transfert de chaleur par rayonnement devient alors :

$$\dot{Q}_{rad} = 4\pi^2 D_p^3 \int_0^\infty \frac{E(m)}{\lambda} L_{BB}(\lambda, T_s) d\lambda \quad (68)$$

La conduction est modélisée en régime moléculaire libre par la relation suivante :

$$\dot{Q}_{cond} = \frac{\pi D_p^2 \alpha_T p_0}{2T_0} \sqrt{\frac{R_m T_0}{2\pi W_0} \left(\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} \right)} (T_s - T_0) \quad (69)$$

où p_0 , T_0 , W_0 sont respectivement la pression, la température et la masse molaire du gaz environnant et γ est le rapport des capacités thermiques à pression et à volume constant du gaz environnant (C_p/C_v). α_T est un coefficient d'ajustement appelé « thermal accommodation coefficient » en anglais dont la valeur est fixée à 0,37 [152]. La connaissance précise de ce coefficient est essentielle à la mesure de D_p car, la conduction étant un transfert thermique de premier ordre, le diamètre primaire calculé avec la décroissance temporelle de température est fortement dépendant de α_T . On peut même montrer qu'après une certaine durée (lorsque la sublimation devient négligeable), D_p est proportionnel à ce coefficient [190]. Les valeurs de α_T qu'on trouve dans les études récentes tournent autour de 0,3 ($\pm 0,1$ environ) [191, 192]. Enfin, les pertes thermiques par sublimation sont modélisées grâce à l'enthalpie de vaporisation du carbone ΔH_v :

$$\dot{Q}_{sublim} = -\frac{\Delta H_v dM}{W_v dt} \quad (70)$$

Les valeurs et formules utilisées pour fixer les paramètres du modèle peuvent être consultées dans Michelsen et al. [180].

2.5.4.2.3 Méthodes d'étalonnage pour la mesure de f_v

On a vu dans la section 2.5.4.2.1 que le signal de LII doit être étalonné afin de déterminer la fraction volumique de suies f_v . Nous allons détailler dans cette section les méthodes d'étalonnage couramment utilisées. Le signal de LII instantané collecté par un capteur à la longueur d'onde λ_s peut s'exprimer à partir de la luminance des suies L_s (Equation (60)) et d'un facteur d'étalonnage τ :

$$S_{LII}(t, \lambda_s) = \tau L_s(T_s(t), \lambda_s) = \tau \frac{6\pi}{\lambda_s} f_v E(m(\lambda_s)) l_v L_{BB}(T_s(t), \lambda_s) \quad (71)$$

L'objectif de tout étalonnage est donc de déterminer ce facteur τ . La méthode la plus simple et la plus répandue est d'utiliser une mesure d'extinction. En effet, la mesure du coefficient d'extinction K_{ext} se résume à mesurer l'intensité d'un faisceau laser avant et après passage dans l'aérosol. Celui-ci est alors directement relié à f_v avec la relation (58). On mesure ainsi une fraction volumique de suies moyenne sur le trajet d'interaction flamme/faisceau laser. τ est ensuite ajusté pour retrouver cette fraction volumique moyenne sur les images de LII. La supposition d'une section efficace d'absorption massique peut même permettre d'étalonner le système de mesure en concentration massique C_s [154]. Cette méthode souffre cependant de plusieurs limitations et de sources d'erreurs. Premièrement, la température d'incandescence des suies doit être supposée (terme T_s dans l'équation l'Equation (71)). Cette contrainte est contournée en utilisant des densités d'énergie laser élevées afin de chauffer les suies jusqu'à leur température de sublimation qu'elles ne peuvent dépasser sans être transformées en phase gazeuse. On suppose ainsi que le signal LII produit en tout point de la flamme provient de suies à la température de sublimation. Cette hypothèse pose plusieurs problèmes : premièrement, la méthode devient intrusive puisqu'une partie de la

matière composant les suies est vaporisée et ne contribue donc pas au signal de LII détecté [193, 194]. Deuxièmement, la température de sublimation des suies varie entre 3500 et 4500 K selon les études et les flammes étudiées [178, 194, 195]. Cette variabilité de température est d'autant plus importante qu'on utilise généralement une flamme laminaire de référence pour étalonner le signal de LII car une mesure d'extinction par simple passage dans la flamme d'intérêt n'est pas envisageable à cause de concentrations de suie souvent trop faibles. Cela suppose également que la température de sublimation des suies dans la flamme laminaire soit identique à celle obtenue dans la flamme d'intérêt. Les propriétés optiques des suies ($E(m)$ ici) peuvent également différer selon que l'on soit dans la flamme d'étalonnage ou dans la flamme d'intérêt. Afin de s'affranchir de l'utilisation d'une flamme d'étalonnage différente de la flamme d'intérêt, certaines études proposent un étalonnage par extinction directement dans la flamme d'intérêt [196-198]. Cette variante est appelée « simultaneous extinction calibration ». Les variations d'énergie laser tir-à-tir et, dans le cas d'une nappe, spatiales posent également des contraintes supplémentaires si la température de sublimation n'est pas atteinte pour certains tirs lasers ou en différentes positions de la nappe laser. Les effets de focalisation et de déviation du faisceau laser dues aux gradients d'indice rencontrés en flamme ont notamment été étudiés par Sun et al. [199]. Enfin, l'absorption du faisceau laser (aussi appelé « laser trapping ») dans le milieu étudié est un problème majeur dans le cas où les suies n'atteignent plus la température de sublimation suite à une absorption conséquente. Une bonne illustration de ce problème est reportée dans l'étude de Roussillo et al. [200] où l'énergie contenue dans la nappe laser est complètement absorbée après uniquement une moitié de traversée de la flamme. Ceci empêche alors la mesure de fraction volumique sur un côté de la flamme et par voie de conséquence entache les mesures de l'autre côté d'une erreur qui croît avec la diminution de l'énergie contenue dans la nappe.

Afin de s'affranchir de la méthode classique, De Iuliis et al. [201] et Snelling et al. [202] proposent en 2005 une nouvelle méthode d'étalonnage basée sur une mesure du signal d'incandescence à deux longueurs d'ondes qu'ils baptisent LII auto-compensée à deux couleurs (2C-AC-LII). Si on reprend l'expression (71) avec une détection t_d secondes après l'impulsion laser sur un temps Δt_d et pour un intervalle spectral $\Delta \lambda_s$ centré sur λ_s , on obtient :

$$S_{LII} = \tau \int_{t=t_d}^{t_d+\Delta t_d} \int_{\lambda_s-\Delta \lambda_s/2}^{\lambda_s+\Delta \lambda_s/2} L_{BB}(T_s(t), \lambda) \frac{6\pi}{\lambda} f_v E(m(\lambda)) l_v dt d\lambda \quad (72)$$

Si on considère que toutes les grandeurs physiques sont constantes en fonction de λ et de t , on obtient la relation suivante :

$$S_{LII} = \tau L_{BB}(T_{s,eff}, \lambda_s) \frac{6\pi}{\lambda_s} f_v E(m(\lambda_s)) l_v \Delta t_d \Delta \lambda_s \quad (73)$$

avec $T_{s,eff}$ la température effective des suies représentant une température constante qui produit la même luminance de corps noir que les suies étudiées dont la température décroît au cours du temps. En utilisant deux mesures sur deux intervalles spectraux $\Delta \lambda_{s1}$ et $\Delta \lambda_{s2}$ respectivement centrés sur λ_{s1} et λ_{s2} et en les divisant l'une par l'autre, on obtient le rapport suivant :

$$\frac{S_{LII, \lambda_{s2}}}{S_{LII, \lambda_{s1}}} = \frac{\tau_2 L_{BB}(T_{s,eff}, \lambda_{s2}) \lambda_{s1} E(m(\lambda_{s2})) \Delta \lambda_{s2}}{\tau_1 L_{BB}(T_{s,eff}, \lambda_{s1}) \lambda_{s2} E(m(\lambda_{s1})) \Delta \lambda_{s1}} \quad (74)$$

En utilisant la loi de Wien pour les luminances de corps noir aux deux longueurs d'ondes, on peut isoler la température effective des suies :

$$T_{s,eff} = C_2 \left(\frac{1}{\lambda_{s1}} - \frac{1}{\lambda_{s2}} \right) \left[\ln \left(\frac{\tau_1 S_{LII,\lambda_{s2}} \lambda_{s2}^6 E(m(\lambda_{s1})) \Delta\lambda_{s1}}{\tau_2 S_{LII,\lambda_{s1}} \lambda_{s1}^6 E(m(\lambda_{s2})) \Delta\lambda_{s2}} \right) \right]^{-1} \quad (75)$$

C'est le principe de la mesure de température par pyrométrie à deux couleurs. τ_1 et τ_2 sont déterminés avec une source de référence de luminance connue que l'on place devant le système de collection. En pratique, un filament d'émissivité connue et porté à une température donnée ou une sphère intégrante munie d'un spectromètre étalonné sont utilisés pour cette étape. Si S_{ref} représente le signal collecté provenant de la source référence de luminance L_{ref} , alors :

$$\tau = \frac{S_{ref}}{\Delta t \Delta \lambda_s L_{ref}(\lambda_s)} \quad (76)$$

La température effective peut ensuite être réinjectée dans l'expression (73) pour en extraire la fraction volumique de suies, ce qui aboutit à l'expression suivante pour f_v :

$$f_v = \frac{S_{LII,\lambda_s}}{S_{ref}} \frac{\lambda_s}{6\pi E(m(\lambda_s)) l_v} \frac{L_{ref}(\lambda_s)}{L_{BB}(T_{s,eff}, \lambda)} \quad (77)$$

Le principal avantage de cette méthode est que la température d'incandescence est mesurée et prise en compte. Cela permet de s'affranchir de l'hypothèse selon laquelle toutes les particules de suie sont à une température fixe. Il n'est donc plus nécessaire d'avoir recours à des fluences élevées et la mesure est alors moins sensible à une distribution non uniforme de l'énergie et au phénomène d'absorption du faisceau laser. En effet, les variations d'énergie laser tir-à-tir ou spatiales sont prises en compte par la mesure de température. On s'affranchit également des différences de propriétés optiques des suies entre la flamme de référence et la flamme d'intérêt. Cependant, les indices optiques doivent quand même être supposés pour la mise en œuvre de cette technique (voir équation (75)), ce qui constitue la première source d'incertitude de la technique [203]. Cette technique a été appliquée à des flammes de diffusion laminaires en OD [201, 202] et en 2D [204] pour déterminer la fraction volumique. Crosland et al. [203] ont étudié la possibilité de passage en milieu instationnaire en appliquant la technique en mesures instantanées dans une flamme laminaire. Ils ont identifié le bruit quantique comme une seconde source d'incertitude juste derrière la méconnaissance de l'indice de réfraction. En effet, le bruit quantique étant aléatoire, il est beaucoup plus impactant sur des images instantanées que sur des moyennes temporelles. Cet effet est illustré sur la Figure 24 où l'image instantanée (b) est plus bruitée que l'image moyenne réalisée sur un échantillonnage de 100 images instantanées (c). Ce bruit se retrouve également sur les mesures instantanées de température instantanées (Image a). Ils observent que le bruit sur l'image aux grandes longueurs d'ondes est plus grand que celui existant sur l'image aux courtes longueurs d'ondes. Ce dernier constat est probablement dû à la réponse spectrale du système de détection. Un des moyens de réduire cette source d'incertitude est alors d'appliquer un filtre passe-bas sur l'image ou de la « binner », c'est-à-dire de réduire sa résolution spatiale en moyennant ou en sommant des groupes de pixels de la caméra. Ils concluent finalement qu'une application en flamme turbulente semble possible avec des rapports signal-à-bruit (SNR) suffisants.

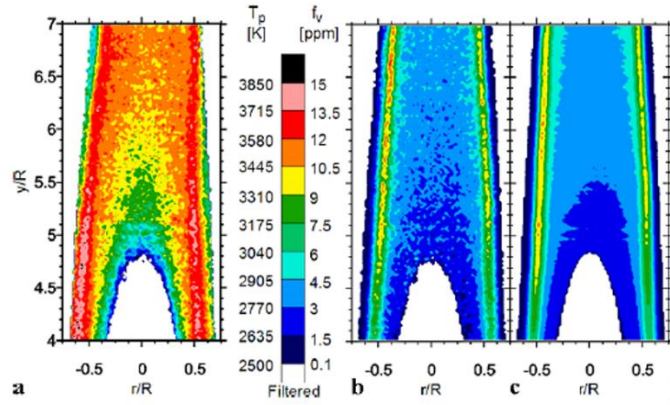


Figure 24 : Mesures issus de Crosland et al. [203] - (a) : Champ instantané de température. (b) : Champ instantané de fraction volumique. (c) : Champ de fraction volumique moyenné sur 100 images instantanées.

Un couplage intéressant entre la LII et la technique de diffusion a été proposé par Reimann et al. [205] en 2009 afin de mesurer le diamètre des particules primaires, la fraction volumique et un rayon de giration équivalent monodisperse dans une flamme plate produite par un brûleur McKenna et avec utilisation d'une seule caméra placée à un angle de diffusion de 90° . L'utilisation d'une source laser à 532 nm permet d'être dans la gamme sensible de la caméra pour la diffusion. Cependant, des interférences avec la fluorescence des HAP peut être observée lors d'une excitation dans le visible. Bejaoui et al. [206] reportent l'existence d'un signal de fluorescence non-négligeable jusqu'à 680 nm et ils recommandent alors d'utiliser une longueur d'onde d'excitation supérieure à 700 nm. D_p est mesuré par TiRe-LII et f_v par LII à une seule longueur d'onde avec étalonnage par extinction. Puis le rapport entre la fraction volumique et le signal de diffusion permet d'obtenir le rayon de giration des agrégats sous l'hypothèse d'avoir une distribution monodispersée. Des hypothèses doivent cependant être réalisées pour les paramètres fractals k_f et D_f et pour l'indice de réfraction complexe $\tilde{m}$. Les résultats de cette étude sont résumés sur la Figure 25. On observe bien la croissance et l'agrégation des suies avec la hauteur qui se traduisent par une augmentation de D_p , de R_g et de f_v .

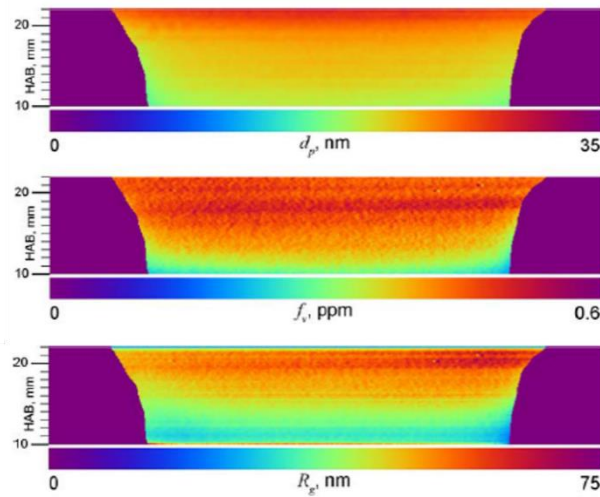


Figure 25 : Champs provenant de Reimann et al. [205]. Haut : Champ de D_p . Milieu : Champ de f_v . Bas : Champ de R_g .

2.6 Techniques de mesures utilisées dans la thèse pour l'analyse des flammes et des précurseurs de suie

2.6.1 Sélection des techniques de mesure

Comme détaillé dans la section 2.3, la production de suies est gouvernée par plusieurs paramètres : le temps de résidence (champs de vitesse), les espèces chimiques et la température. Les champs de vitesse seront mesurés par la technique de PIV qui est une technique usuelle pour l'acquisition de champs bidimensionnels de vitesse. En ce qui concerne les espèces chimiques, la LIF sur les HAP sera mise en place et permettra d'obtenir des informations sur les premières étapes de la formation des particules de suie. Des mesures de LIF sur le radical OH seront également effectuées et permettront une caractérisation front de flamme, des gaz brûlés et de l'oxydation puisque OH est une espèce oxydante majeure des HAP et des suies (voir section 2.1.5). Enfin, la température sera mesurée par thermocouple pour sa simplicité de mise en œuvre, sa fiabilité et son incertitude de mesure suffisante pour les variations de température auxquelles on souhaite accéder (voir section 2.6.4). Des techniques optiques existent pour accéder à la température mais n'ont pas été sélectionnées. Sans être exhaustif, on peut citer la diffusion Raman anti-stokes cohérente [207] qui est considérée comme la mesure de référence de par sa précision de mesure, mais qui demande en contrepartie des équipements sophistiqués, l'émission à deux couleurs [208] qui est plus adaptée aux flammes laminares axisymétriques mais qui ne permet pas la mesure en dehors des zones de suies ou encore la diffusion Rayleigh [209] qui est, quant à elle, inadaptée aux milieux chargés en gouttes et/ou particules.

2.6.2 Fluorescence induite par laser

2.6.2.1 Fluorescence induite par laser sur le radical OH

La fluorescence induite par laser (LIF), est un diagnostic laser qui permet d'obtenir la distribution spatiale de la concentration d'une ou d'un ensemble de molécules, même lorsque celles-ci sont présentes à l'état de trace. Cette méthode de mesure sélective, non-intrusive, résolue spatialement et temporellement est largement employée dans le domaine de la combustion. Pour étudier la formation des suies, cette technique

est principalement utilisée pour obtenir des informations sur la richesse locale, la position du front de flamme, les espèces oxydantes et gaz brûlés (LIF-OH) ou les précurseurs (LIF-HAP).

Le principe de cette méthode consiste à exciter les molécules d'intérêt avec une impulsion laser. Lorsqu'une molécule reçoit un photon d'énergie $h\nu$ (h étant la constante de Planck et ν la fréquence de l'onde électromagnétique), celle-ci pourra absorber cette énergie et l'emmagasiner sous plusieurs formes : par le biais de transitions électroniques (modification de la distribution des électrons vers des niveaux de plus haute énergie) ou grâce à des modes de stockage d'énergie par vibration ou rotation de ses atomes. Ces différentes manières de stocker l'énergie correspondent à des niveaux discrets quantifiés. La molécule ainsi excitée pourra ensuite retrouver son état initial selon différents processus résumés sur le schéma simplifié représenté sur la Figure 26 : l'émission stimulée d'un photon par interaction avec un autre photon de même longueur d'onde (principe de fonctionnement du laser), le quenching résultant des échanges d'énergie suite à des processus de collisions avec les autres molécules du milieu (désexcitation non-radiative) ou l'émission spontanée d'un photon aussi appelée fluorescence. Ce sont les photons issus de la fluorescence que l'on détecte en LIF.

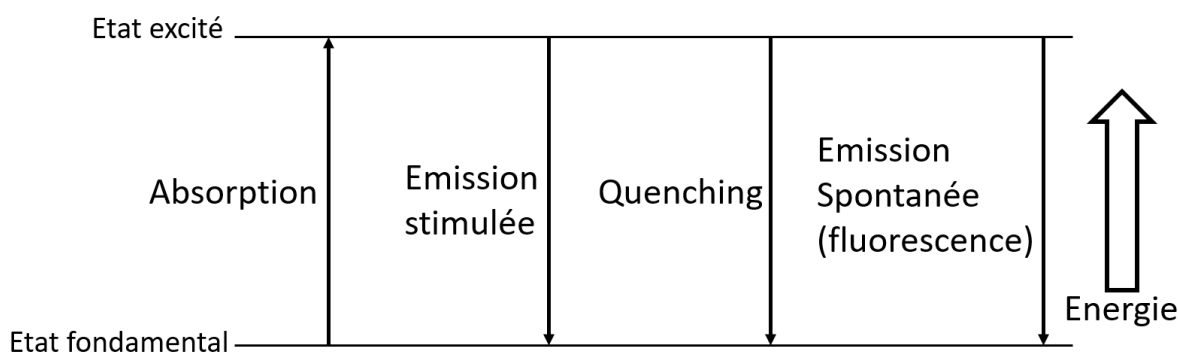


Figure 26 : Schéma des différents phénomènes de transition entre niveaux électroniques.

Si on veut exciter un niveau rovibronique donné (combinaison de transition électronique, vibrationnelle et rotationnelle) avec un faisceau laser, on devra accorder sa longueur d'onde avec la différence d'énergie entre le niveau initial de la molécule et le niveau souhaité. Un exemple de schéma énergétique pour le radical OH est présenté sur la Figure 27 (a) et (b). On observe la répartition des niveaux électroniques ($X^2\Pi$, $A^2\Sigma^+$...) et vibrationnels (v' , v'') sur la Figure (a) tandis que la Figure (b) propose un zoom sur les niveaux rotationnels des états vibroniques $X^2\Pi$ ($v'' = 0$) et $A^2\Sigma^+$ ($v' = 1$). On remarque que les différences d'énergie entre les niveaux électroniques sont plus importantes qu'entre les niveaux vibrationnels, elles-mêmes plus élevées que pour les niveaux rotationnels. La transition entre l'état électronique fondamental $X^2\Pi$ et le niveau excité $A^2\Sigma^+$ correspond à une longueur d'onde voisine de 310 nm. Elle est favorisée pour les études en flamme car c'est la seule transition existante dans l'UV proche et elle est aisément atteignable avec une source laser à colorant doublée en fréquence. L'état initial vibrationnel de la molécule est $v'' = 0$. On remarque de plus que l'absorption sera plus efficace pour des valeurs de v' faibles (voir thèse de Bresson [210], figure 13). Le choix de la transition vibrationnelle se porte alors sur la transition $X^2\Pi$ ($v'' = 0$) vers $A^2\Sigma^+$ ($v' = 1$) correspondant à une longueur d'onde d'excitation proche de 283 nm. On préfère l'état vibrationnel $v' = 1$ à $v' = 0$ car, même si la probabilité d'absorption de cette raie est plus faible, les gammes de concentrations rencontrées en flamme et l'absorption intense dans la bande ($v'' = 0$, $v' = 0$) génèrent une forte absorption du laser. De plus, le signal de fluorescence et l'excitation se superposent spectralement, ce qui

peut entraîner la détection de signaux parasites provenant du faisceau laser. Lorsque un niveau rovibronique est peuplé après absorption, deux phénomènes vont répartir les électrons sur les niveaux vibrationnels et rotationnels proches : le VET (vibrational energy transfer) et le RET (rotational energy transfer), respectivement (voir thèse de Bresson [210] section 2.3.4). Ceci signifie que le signal de fluorescence provenant d'une excitation de longueur d'onde correspondante à la transition ($v'' = 0$, $v' = 1$) comportera une contribution de cette transition mais aussi de la transition ($v'' = 0$, $v' = 0$) dont la longueur d'onde est située aux alentours de 309 nm. Il devient alors plus aisé de mettre en place un filtrage spectral. Pour ce qui est du choix de la bande rotationnelle, les raies dites principales (qui conservent le spin) comme Q_1 , Q_2 , P_1 , P_2 , R_1 , R_2 sont privilégiées car elles sont plus intenses.

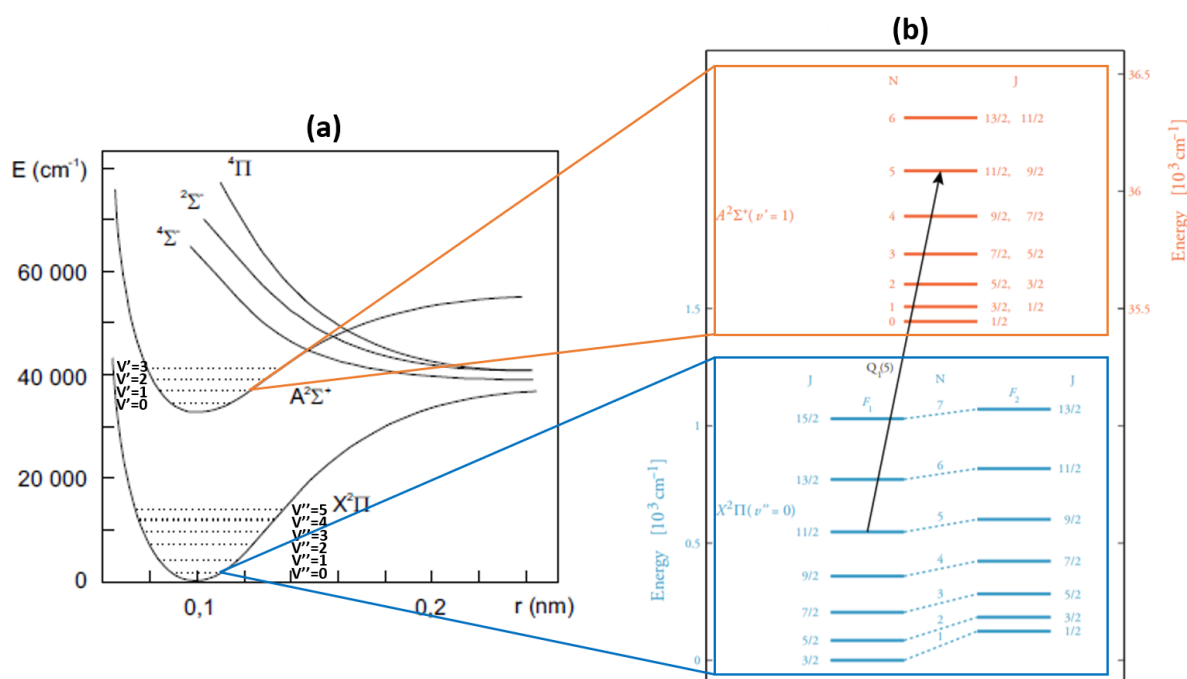


Figure 27 : (a) : Diagramme énergétique des niveaux électroniques et vibrationnels pour le radical OH. (b) : Niveaux rotationnels dans les niveaux vibroniques fondamental $X^2\Pi$ ($v'' = 0$) et excité $A^2\Sigma^+$ ($v' = 1$).

2.6.2.2 Fluorescence induite par laser sur les précurseurs de suies (HAP)

La LIF est une technique prometteuse pour détecter les HAP de manière non-intrusive et résolue temporellement et spatialement en flamme. Il est cependant complexe d'obtenir des informations quantitatives avec ce diagnostic. En effet, contrairement aux molécules diatomiques comme OH, CO ou encore NO, il est difficile d'être sélectif avec la LIF car les HAP sont de « gros » édifices moléculaires qui absorbent et émettent dans les mêmes gammes spectrales et avec un spectre d'absorption continu (sans raies). Globalement, les HAP absorbent dans l'UV entre 200 et 300 nm et dans une moindre mesure dans le visible pour les plus grands et émettent dans l'UV et le visible à des longueurs d'onde plus grandes lorsque leur taille augmente (voir Figure 28). La spectroscopie des HAP pétrogéniques a été étudiée dans des solutions liquides et en phase gaz à des températures allant de 300 K à des températures de flamme. En ce qui concerne le spectre d'absorption, une augmentation de la température induit une diminution de la section efficace d'absorption, une perte progressive des raies spectrales au profit d'un spectre continu et un décalage spectral global vers le rouge [211, 212]. Ossler et al. [213, 214] ont étudié la spectroscopie des HAP

allant de deux à quatre cycles benzéniques (naphtalène, anthracène, fluorène, pyrène) dans une cellule pouvant monter jusqu'à 1200 K puis avec une injection dans une flamme pour deux d'entre eux (pyrène et naphtalène) afin d'étudier leur fluorescence à température de flamme. Ils montrent qu'il est possible de sélectionner différentes classes de tailles de HAP en utilisant une détection spectrale et temporelle appropriée (mesure de la décroissance temporelle du signal de fluorescence) et une excitation à 266 nm. En flamme, il est cependant difficile de retrouver les spectres obtenus dans la cellule à cause de la présence d'autres HAP issus de la pyrolyse.

En ce qui concerne les HAP pyrogéniques, les études se sont surtout concentrées sur la possibilité de discriminer différentes classes de taille de HAP en flamme. En utilisant une excitation à 266 nm, on obtient une bande de fluorescence couvrant la gamme 280 - 400 nm généralement attribuée aux HAP de 2 à 3 cycles benzéniques [215, 216] et une bande dans le domaine visible attribuée aux HAP de plus grande masse moléculaire [217]. Différentes expériences ont été réalisées avec cette longueur d'onde d'excitation afin de discriminer ces différentes tailles de HAP [218, 219]. Comme on peut le voir sur la Figure 28, la section efficace d'absorption se décale vers les grandes longueurs d'onde lorsque la taille des HAP augmente. Il est donc possible d'utiliser plusieurs longueurs d'onde d'excitation pour les discriminer. Récemment, Bejaoui et al. [206] ont étudié les spectres de fluorescence recueillis dans deux flammes différentes (méthane-air prémélangée et flamme de diffusion jet de Diesel) et pour des longueurs d'onde d'excitation de 266 à 680 nm. Des signaux de fluorescence sont détectés avec une excitation à 680 nm dans les deux flammes. A une longueur d'onde fixée, alors qu'il est possible de discriminer les classes de taille en fonction de la hauteur (donc du temps de résidence) dans la flamme de diffusion, il est impossible d'en faire de même dans la flamme de prémélange où toutes les classes de taille de HAP coexistent spatialement et temporellement. Peu d'espèces candidatent à une absorption au-dessus de 400 nm : les grands HAP péricondensés (trois cycles ou plus partagent des atomes de carbone) comme le coronène ou le benzopyrène (en bleu sur la Figure 28), les grands HAP catacondensés (deux cycles partagent des atomes de carbone) comme le tetracène ou le pentacène et enfin les HAP contenant des cycles à 5 atomes de carbone comme le fluoranthène et l'acénaphthylène. Il est probable que ces signaux proviennent de cette dernière classe sachant que les HAP des deux autres classes sont peu susceptibles d'être présents en quantité suffisante en flamme. De plus, l'excitation dans le visible n'est possible qu'à haute température car les hauts niveaux vibrationnels de l'état électronique fondamental sont plus peuplés. L'énergie requise pour peupler le niveau électronique supérieur est alors moindre [220]. L'acénaphthylène devient le meilleur candidat si on considère ce phénomène (voir 3.2.3 de [206]).

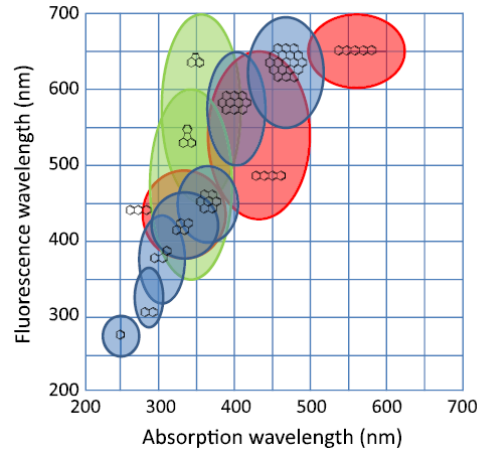


Figure 28 : Absorption et fluorescence de différents HAP à température ambiante [206]. Bleu : HAP péricondensées, rouge : HAP catacondensées, vert : HAP avec un cycle à 5 carbones.

2.6.3 Vélocimétrie par image de particules (PIV)

La vélocimétrie par image de particules est un diagnostic optique largement utilisé dans le domaine de la mécanique des fluides afin de mesurer les champs de vitesse 2D ou 3D de l'écoulement. Nous détaillerons ici les grandes lignes de cette technique qui a beaucoup évolué depuis sa création et dont les possibilités et champs d'application sont maintenant très étendus. Le lecteur pourra se référer à Raffel et al. [221] pour une explication plus approfondie. L'écoulement est préalablementensemencé avec des particules ou des gouttes. Le principe de la PIV est de mesurer le déplacement de ces particules sur un temps court. Les particules doivent suivre les mouvements du fluide, cela peut être évalué par le nombre de Stokes St qui compare la viscosité du fluide et l'énergie cinétique de la particule :

$$St = \frac{1}{18} \frac{\rho_p d v_F}{\mu_F} \quad (78)$$

ρ_p est la masse volumique de la particule, d est le diamètre caractéristique de la particule jouant le rôle de traceur, v_F est la vitesse du fluide et μ_F représente la viscosité dynamique du fluide. Si $St \gg 1$, alors les forces du fluide sur la particule l'emportent sur son inertie et elles suivront les lignes de courant de l'écoulement, ce qui est indispensable pour la PIV. Des particules solides d'oxyde de zirconium ou d'oxyde de titane sont utilisées en flamme pour leurs températures de fusion élevées. Afin de mesurer le déplacement δ des particules, l'écoulement est illuminé avec deux impulsions laser séparées d'un temps Δt_{PIV} ou, dans le cas de mesures à haute cadence, avec un faisceau laser continu [222]. La diffusion élastique du laser par les particules est collectée par des caméras. Les couples d'images séparées d'une durée Δt_{PIV} sont ensuite analysées avec un algorithme de corrélation afin de mesurer le déplacement δ des particules d'une image à l'autre (voir Figure 29).

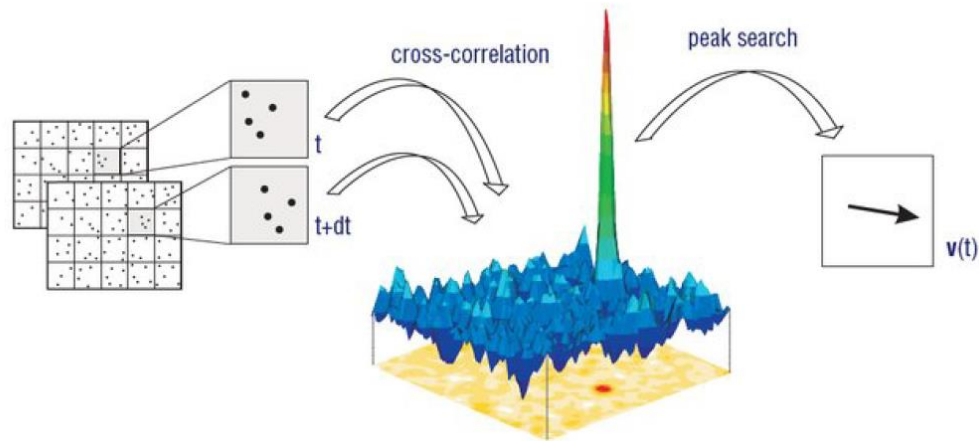


Figure 29 : Principe d'analyse des images de PIV [200].

Grâce à un étalonnage spatial des images, on peut ensuite calculer la vitesse locale associée à δ et Δt_{PIV} . La précision de la technique dépend de la taille des particules, de la qualité de l'ensemencement (densité de particules), de la nappe laser (homogénéité et épaisseur), de la taille de la fenêtre d'interrogation sélectionnée pour la corrélation.

2.6.4 Mesures de température par thermocouple

La température du milieu, paramètre clef pour la compréhension de la formation des suies dans une flamme (voir section 2.3.2), a été mesurée avec un thermocouple. La mesure de température par thermocouple est employée de manière usuelle dans de nombreuses applications pour sa simplicité, son faible coût et les larges gammes de température couvertes. En effet, selon les métaux utilisés, des températures de -270 à 2600 °C peuvent être atteintes. Les couples d'alliage de platine et de rhodium sont souvent utilisés en combustion car leur température maximale d'utilisation se situe aux alentours de 1800 °C. Un thermocouple de type B par exemple est composé de platine-rhodium (30%) et de platine-rhodium (6%). Il est cependant important de prendre des précautions lorsque la soudure est placée au voisinage du front de flamme où les températures peuvent être supérieures à la température maximale du thermocouple. Bien évidemment, cette technique de mesure est intrusive et peut, sous certaines conditions, perturber la flamme. Skovorodko et al. [223] ont étudié comment l'écoulement, les réactions chimiques et les transferts thermiques dans une flamme 1D prémélangée de méthane sont modifiés lors de l'insertion d'un thermocouple. La température mesurée par les thermocouples est systématiquement supérieure à la température calculée numériquement (Figure 30 (a)). Cette différence de température est attribuée à la décélération des gaz aux alentours du thermocouple qui favorise le dégagement de chaleur dans les zones réactives. L'écart maximal observé est d'environ 100 K et il est réduit lorsque les dimensions du thermocouple sont réduites.

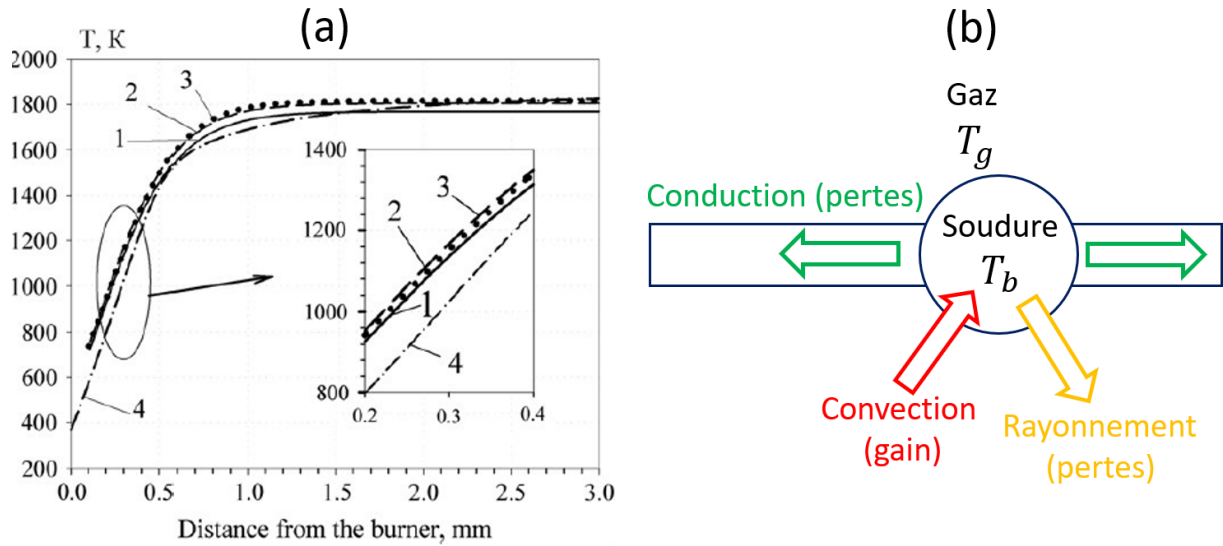


Figure 30 : (a) : Température en fonction de la distance à la sortie du brûleur – 1 : Thermocouple de section cylindrique de 24 μm . 2 : Thermocouple de section rectangulaire 10 x 110 μm . 3 : Thermocouple de section rectangulaire 20 x 125 μm . 4 : Température calculée numériquement. (b) : Transferts thermiques entre la soudure d'un thermocouple et le milieu environnant (système : soudure).

Un autre élément important lors du post-traitement des mesures par thermocouple dans un environnement à haute température est la correction des pertes thermiques par rayonnement et conduction (Figure 30 (b)) qui conduisent à des différences entre la température du gaz T_g et celle de la soudure T_b . Pour des fils de thermocouple de faible diamètres, les pertes par conduction peuvent être négligées [224]. En régime stationnaire, la température du gaz peut alors s'écrire :

$$T_g = T_b + \frac{\sigma \epsilon T_b^4}{h} \quad (79)$$

avec σ la constante de Stefan-Boltzmann, h le coefficient de convection pouvant être estimé à partir du nombre de Nusselt de l'écoulement (pouvant être calculé à partir du nombre de Prandtl) et ϵ l'émissivité du thermocouple. Cette émissivité peut être estimée par la moyenne de l'émissivité des deux métaux ou alliages formant la jonction. Lors d'une expérience en flamme en présence de suie, l'émissivité peut changer à cause du dépôt de particules sur la surface du thermocouple. On observe alors, lorsque le thermocouple est placé dans la flamme, une évolution temporelle composée d'une rapide augmentation de la température mesurée suivie d'une décroissance rapide correspondant à une période d'émissivité variable puis, une fois que toute la surface du thermocouple est recouverte, une décroissance plus lente liée à l'augmentation du diamètre du thermocouple à cause du dépôt de suies [225]. T_b peut alors être déterminée comme étant la température maximale mesurée au cours du temps ou par un fit exponentiel de la croissance rapide ou linéaire de la décroissance lente (voir Supplementary Materials de De Falco et al. [225]).

Des comparaisons en flamme avec des techniques de mesure optique [226] ou avec des températures calculées [223] montrent des différences pouvant aller jusqu'à 100 K. Cet écart est considéré comme acceptable au regard des variations de température que l'on souhaite mesurer pour analyser la formation des suies. En effet, on désirera surtout connaître les régions où la température du milieu devient favorable à la formation de PAH, des suies, ou à l'oxydation tout en sachant que ces gammes de température s'étendent sur plusieurs centaines de degrés.

Chapitre 3. Dispositifs expérimentaux et procédures de traitement des données brutes

3.1 Banc de combustion SIRIUS

Nous avons fait, dans le Chapitre 2, le constat d'un manque de données expérimentales sur la formation des particules de suie dans des configurations de combustion prémélangées, swirlées et stratifiées, représentatives des nouvelles chambres de combustion aéronautiques ultra-low NOx. C'est dans l'optique de combler le manque de connaissances détaillées dans ce type de flamme que le brûleur SIRIUS (Swirl stratified burner for the study of Soot production) a été imaginé et conçu. L'architecture et le fonctionnement du brûleur sont détaillés dans cette section. L'usinage et l'installation de ce banc de combustion ont été réalisés par l'atelier du CORIA.

3.1.1 Architecture du brûleur

La conception du banc de combustion SIRIUS est basée sur les caractéristiques du brûleur swirlé et stratifié de SANDIA Livermore qui a été associé dans le passé à des études de flammes pauvres prémélangées de méthane [227, 228]. Les principales différences entre les deux brûleurs résident dans les dimensions et la capacité du banc SIRIUS à être utilisé en régime de pression élevée. Le détail du brûleur SIRIUS est indiqué sur la Figure 31 dans le but de détailler son principe de fonctionnement. Il se compose de trois tubes concentriques de diamètres respectifs 10, 20 et 29,5 mm, le dernier étant entouré par un poreux de section carrée de 93 mm de côté. Le tube central est scellé en son extrémité avec une pastille en céramique (partie blanche sur la Figure 31 (a)) agissant comme un « bluff-body ». Cette pastille a pour rôle d'améliorer la stabilisation de la flamme par la production d'une zone de recirculation de gaz chauds servant à réchauffer la surface de la pastille mais également les fluides sortant du conduit interne. Deux injections indépendantes d'air et de combustible prémélangés sont utilisées dans les deux couronnes comprises entre le poreux et le tube central scellé. L'écoulement dans la couronne la plus proche du centre (tube bleu sur la Figure 31 (b)), dit écoulement interne, est axial (orienté vers le haut). L'écoulement externe (tube jaune sur la Figure 31 (b)) peut, quant à lui, être swirlé. En effet, il se compose de deux injections d'air situées à la base du brûleur : une injection axiale (axe x orienté vers le haut) et une injection tangentielle (dans le plan yz) assurée grâce à la pièce verte représentée sur la vue 3D de la Figure 31 (c). Le swirl de l'écoulement externe est contrôlé par le rapport de débit entre le débit axial $\dot{m}_{o,axial}$ et tangential $\dot{m}_{o,tang}$. Les richesses des mélanges combustible/air interne Φ_i et externe Φ_o sont contrôlées indépendamment, ce qui permet de faire varier la stratification en sortie du brûleur. Conformément à ce qui a été défini pour le brûleur de SANDIA, l'intensité du swirl est quantifiée grâce au paramètre SFR (« swirl flow ratio ») qui est le rapport entre le débit tangential et le débit total de l'écoulement externe :

$$SFR = \frac{\dot{m}_{o,tang}}{\dot{m}_{o,tang} + \dot{m}_{o,axial}} \quad (80)$$

La stratification est, quant à elle, quantifiée avec le paramètre SR (« stratification ratio ») qui est le rapport entre les richesses interne et externe :

$$SR = \frac{\Phi_i}{\Phi_o} \quad (81)$$

Le centrage des tubes peut être réglé précisément car ils sont fixés sur une base sphérique leur permettant de s'incliner plus ou moins dans le plan zy. Le réglage est effectué avec des vis accessibles depuis la partie inférieure du brûleur.

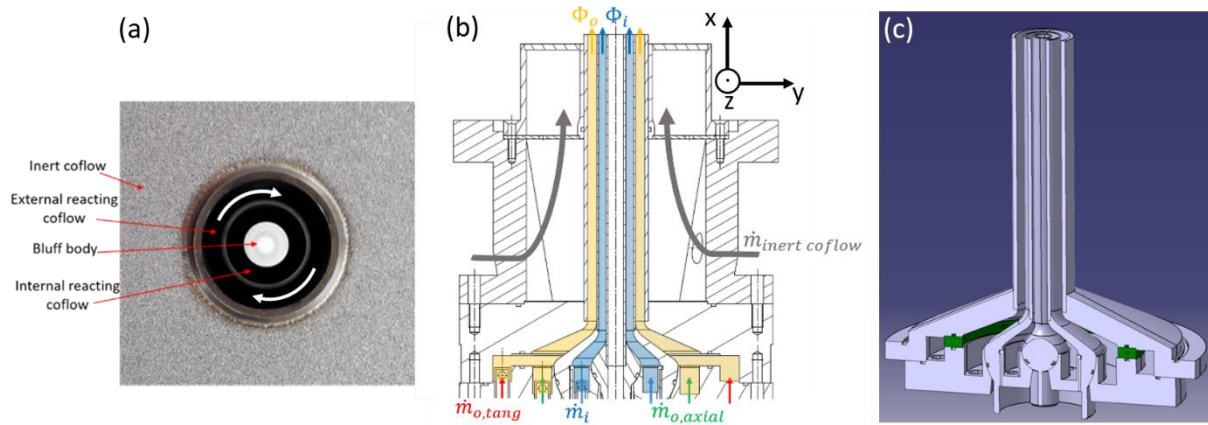


Figure 31 : (a) Vue de dessus de la sortie du brûleur SIRIUS. (b) Plan de coupe du brûleur. (c) Vue 3D du brûleur.

3.1.2 Contrôle et alimentation de l'installation

Le descriptif de l'alimentation en gaz du brûleur est visible sur la Figure 32. L'air provient du compresseur du laboratoire CORIA (8 bar) et l'éthylène d'un cadre de gaz stocké à l'extérieur du bâtiment. Un filtre est placé juste avant les débitmètres afin d'éliminer les éventuelles poussières contenues dans l'air. L'éthylène est détendu à une pression de 8 bar avant d'arriver dans une vanne pneumatique qui permet de contrôler l'arrivée du combustible dans l'installation. Cette vanne sert d'élément de sécurité et se ferme automatiquement dans les cas suivants : activation par l'utilisateur du bouton d'arrêt d'urgence, détection de monoxyde de carbone ou de gaz explosif dans la pièce ou extinction du moteur de la hotte d'extraction. L'alimentation en air se sépare ensuite en quatre tuyaux alimentant la couronne externe (tangentielle et axial), la couronne interne et le poreux. La ligne d'éthylène se divise quant à elle en trois écoulements destinés à alimenter les éléments suivants : couronne externe (tangentielle et axial) et interne. Les débits sont régulés par des débitmètres Bronkhorst préalablement étalonnés. Des mélangeurs combustible/air sont installés juste après les débitmètres et juste avant l'injection des fluides dans le brûleur. Plusieurs capteurs permettent de contrôler la température et la pression à différents endroits du banc de combustion : des thermocouples sont placés dans la cheminée d'extraction afin de protéger thermiquement le moteur de la hotte et un capteur de pression permet de mesurer la pression dans la ligne de combustible juste avant les débitmètres. Enfin, l'allumage est commandé par une bougie à arc électrique pouvant rapidement entrer et sortir de la flamme grâce à un vérin pneumatique.

Le fonctionnement du banc dans son ensemble est contrôlé à distance par un programme LabVIEW qui pilote les débits, l'ouverture et la fermeture de la vanne de carburant et affiche les mesures recueillies sur les capteurs. Le programme qui gère la sécurité de l'installation expérimentale via la fermeture d'urgence de la vanne de combustible est exécuté sur un microprocesseur dédié (National Instruments CompactRIO) situé dans l'armoire électrique installée dans la pièce où se trouve le brûleur tandis que l'utilisateur contrôle le banc à distance dans un local distinct.

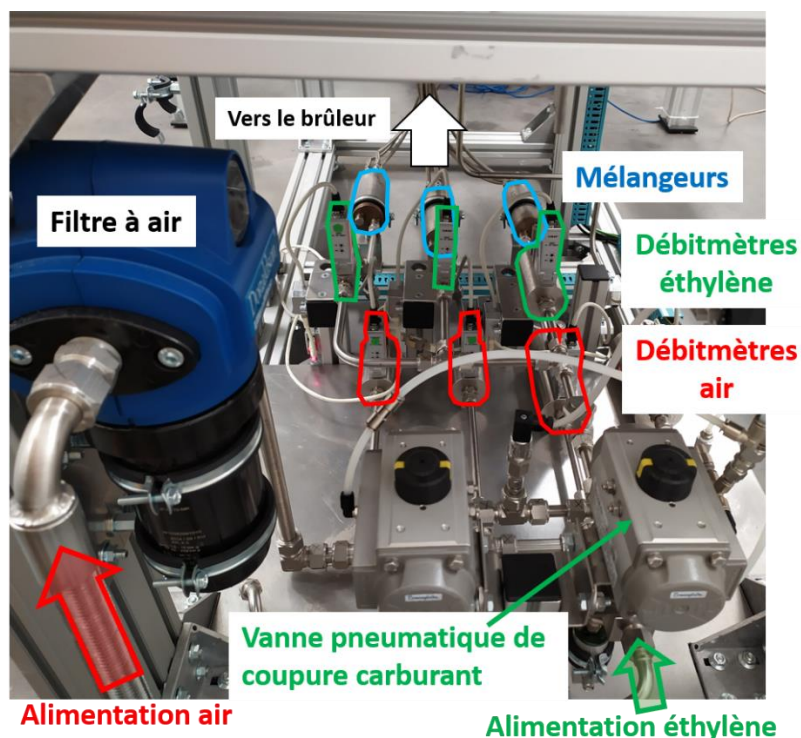


Figure 32 : Alimentation en gaz du brûleur.

3.1.3 Points de fonctionnement

Les points de fonctionnement étudiés dans ma thèse ont été définis afin de produire des flammes présentant des productions de suie plus ou moins fortes. Les paramètres d'écoulement et de mélange pour chaque condition opératoire sont détaillés dans le Tableau 1. La richesse globale $\Phi_g (= 0,5(\Phi_o + \Phi_i))$ ainsi que les débits totaux injectés dans les deux couronnes sont maintenus constants (autant que le permet la précision des débitmètres) pour toutes les conditions opératoires tandis que les richesses et rapports entre le débit tangentiel et le débit axial sont modifiés afin de faire varier SFR et SR. La puissance de flamme P varie de 13,6 kW à 15,6 kW selon les conditions opératoires.

N° point	SFR	SR	Φ_i	Φ_o	Φ_g	$P[kW]$	$m_o[g/s]$	$m_i [g/s]$
1	0,20	3,00	2,21	0,74	1,47	13,6	4,20	0,69
2	0,25	3,00	2,21	0,74	1,47	13,6	4,20	0,69
3	0,30	3,00	2,21	0,74	1,47	13,6	4,20	0,69
4	0,20	2,11	1,96	0,93	1,45	15,5	4,20	0,68
5	0,25	2,10	1,96	0,93	1,45	15,6	4,23	0,68
6	0,30	2,14	1,96	0,92	1,44	15,5	4,19	0,68

Tableau 1 : Détails des différents paramètres d'injection pour chaque condition opératoire.

Des photographies des flammes obtenues pour chaque point de fonctionnement en fonction de la stratification et du swirl sont présentées sur la

Figure 33. On observe sur ces images une intensité de l'émission orangée relative au rayonnement des suies différente selon les conditions opératoires. De manière générale, cette émission lumineuse augmente avec la stratification et diminue lorsque le swirl augmente. On observe également, en particulier pour les points 1 et 2, que cette émission est localisée près de l'axe du brûleur dans la partie basse, puis s'étend radialement dans la partie haute.

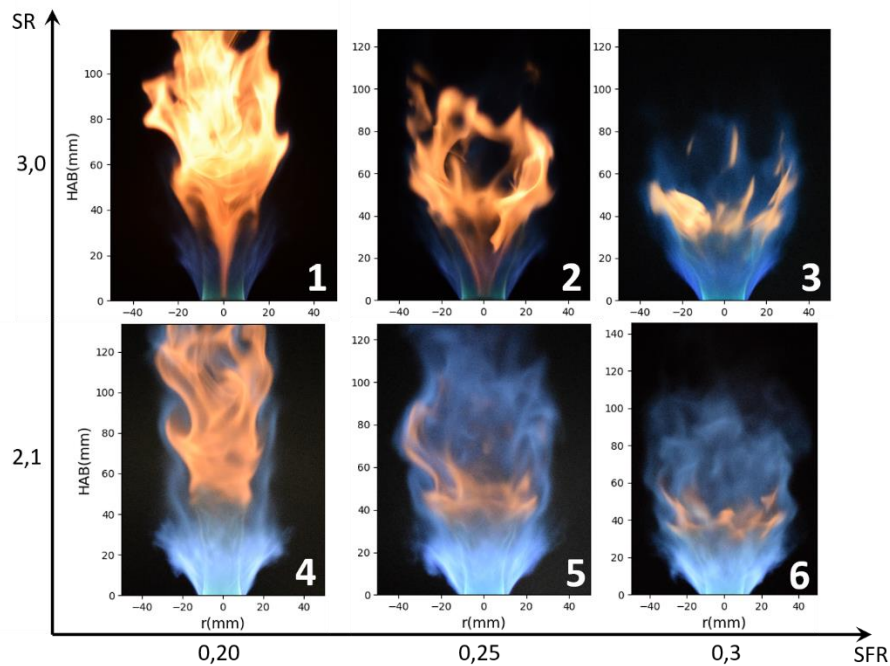


Figure 33 : Photographies des flammes correspondant aux points de fonctionnement en fonction de la stratification (axe des ordonnées) et de l'intensité du swirl (axe des abscisses).

3.2 Techniques de mesure

3.2.1 PIV

3.2.1.1 Dispositif expérimental

Le dispositif de PIV qui a été mis en place permet la détermination expérimentale du champ de vitesse dans le plan xy (Figure 31 (b)). L'ensemencement de l'écoulement est assuré par deux ensemenceurs à lit fluidisé insérés en parallèle de l'admission en air. Des particules d'oxyde de zirconium ZrO_2 sont utilisées principalement pour leur capacité à résister aux températures élevées. Seul l'écoulement axial de la couronne externe est ensemencé car il assure la plus grande partie du débit externe et que l'ensemencement de l'écoulement tangentiel présente un risque d'obturation au niveau de la pièce qui permet le mélange des deux écoulements (pièce verte sur la Figure 31 (c)). Comme observé sur la Figure 34, les ensemenceurs à lit fluidisé sont placés juste après les régulateurs de débit d'air. Une partie de l'air, dont la quantité est contrôlée par une vanne de régulation, est prélevée et envoyée dans l'ensemencement. L'air passe ensuite au travers d'un poreux sur lequel sont déposées les particules d'oxyde de zirconium. L'écoulement principal et l'air chargé en particules sont ensuite mélangés dans un mélangeur avant injection dans le brûleur. Une vanne quart-de-

tour permet de couper si nécessaire la dérivation de l'écoulement dans l'ensemenceur. L'utilisation d'une vanne de régulation est très importante car elle permet de contrôler la concentration de particules dans l'écoulement et donc la densité de particules collectées sur les images de PIV qui est un paramètre clef dans le post-traitement des images par l'algorithme de corrélation.

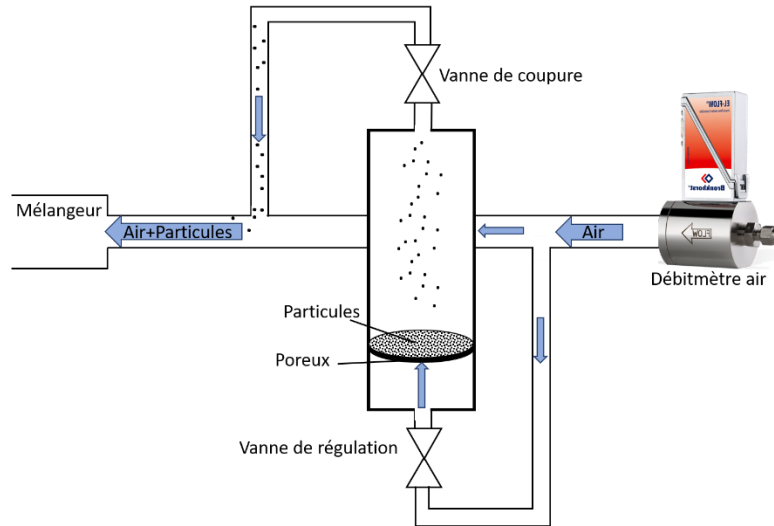


Figure 34 : Schéma de principe de l'ensemenceur à lit fluidisé

La source laser utilisée est un laser double cavité Nd:YAG (Evergreen) doublé en fréquence délivrant des paires d'impulsions à une cadence de 10 Hz et à une longueur d'onde de 532 nm. Des tests ont été effectués afin de fixer la valeur du temps inter-impulsion. En effet, ce paramètre doit être optimal afin d'enregistrer deux images successives présentant des déplacements de particules associés aux gradients de vitesse de l'écoulement. Il a été fixé à $10 \mu s$ pour toutes les conditions opératoires. En ce qui concerne l'acheminement du faisceau laser jusqu'à la flamme, un périscope positionné en sortie de la source laser permet de contrôler la hauteur du faisceau. Le faisceau laser est ensuite mis en forme au moyen de trois lentilles : une sphérique (distance focale = 1 m) servant à focaliser la nappe laser au niveau du volume de mesure et une paire de lentilles cylindriques divergente ($f = -12,5 \text{ mm}$) et convergente ($f = 500 \text{ mm}$) afin de former une nappe laser dans le plan xy. Il en résulte au niveau du volume de mesure une nappe laser de 50 mm de hauteur et d'environ 0,2 mm d'épaisseur. Les particules illuminées par cette nappe laser sont imagées sur une caméra CCD (Jai TM4200CL, 2048 x 2048 pixels) munie d'un filtre interférentiel centré à 532 nm et de largeur à mi-hauteur égal à 10 nm (Edmund Optics #86-628). La fréquence d'acquisition de la caméra est suffisante pour notre application car elle est capable d'acquérir des paires d'images à une fréquence de 10 Hz avec un temps inter-image de $10 \mu s$.

3.2.1.2 Traitement des données brutes

Lors des expériences de PIV, on obtient des paires d'images de particules qui se déplacent de quelques pixels entre les deux images. Comme décrit la section précédente, les signaux sont collectés avec une caméra capable de d'enregistrer des paires d'images avec un temps inter-image court, permettant ainsi de faire de la PIV avec une seule caméra dans des écoulements à haute vitesse. Cette caractéristique est appelée « double-frame ». Dans le cas d'un capteur CCD « full-frame », la conversion photon – charge est rapide, mais

la conversion des charges en signal numérique par le convertisseur analogique-numérique est lente (50 à 100 ms). Une caméra « double-frame » stocke les charges dans des cellules blindées au rayonnement et collecte les photons de la seconde image en même temps que les charges de la première sont converties en signal numérique. La deuxième image a donc nécessairement un temps d'exposition égal au temps de conversion charges-signal numérique de la première : environ 50 à 100 ms. La deuxième image va donc intégrer tous les signaux parasites sur une longue durée en plus du signal d'intérêt. Pour une flamme produisant des suies, le principal signal parasite est le rayonnement thermique des suies. Il présente cependant une structure spatiale différente de celui des particules de ZrO_2 puisqu'il n'est pas ponctuel mais plutôt continu (faibles gradients). Il est donc possible de le supprimer lors du post-traitement en appliquant un filtre passe-haut sur les images. Nous avons utilisé ce type de filtrage pour la deuxième image de chaque paire d'image de PIV. Le calcul des déplacements est ensuite effectué grâce au logiciel Dynamic Studio avec une fenêtre d'interrogation adaptative de taille finale 16x16 pixels. On obtient finalement un champ en deux dimensions de 127 x 127 vecteurs avec un espacement de 0,4 mm. Le déplacement en pixel est converti en déplacement en mm dans le repère du brûleur grâce à un étalonnage effectué avec une mire. Les champs de vitesse sont ensuite calculés en divisant les déplacements par le temps inter-image.

3.2.2 PLIF-OH

3.2.2.1 *Dispositif expérimental*

Pour l'excitation du radical OH pour les mesures de PLIF, il est possible d'utiliser une longueur d'onde située autour de 283 nm (voir section 2.6.2.1). Pour cela, on utilise un laser à colorant (rhodamine 590 dilué dans de l'éthanol) « SIRAH precision scan ». Le colorant est excité par un laser de pompe Nd:YAG doublé en fréquence (532 nm) à la cadence de 10 Hz. Le système est accordé à 282,75 nm correspondant à la transition d'absorption $Q_1(5)$ du radical OH représentant la transition vibrationnelle (1, 0) de la transition électronique $X^2\Pi \leftarrow A^2\Sigma^+$. Cette raie spectrale a été sélectionnée car elle possède un coefficient d'absorption élevé, elle est spectralement isolée et elle dispose d'une faible dépendance à la température [210]. La longueur d'onde d'excitation exacte est ajustée avant chaque expérience en balayant les longueurs d'onde autour de la raie $Q_1(5)$ afin de reconstruire le spectre d'excitation. Ce spectre expérimental est ensuite comparé à un spectre théorique simulé avec le logiciel de calcul spectroscopique Lifbase [229]. La comparaison du spectre expérimental et numérique est présentée sur la Figure 35 (a). En sortie du laser, le faisceau passe par un périscope afin de régler sa position en hauteur par rapport à la base du brûleur. Un jeu de lentilles est ensuite utilisé : une sphérique (distance focale = 1 m) qui va servir à focaliser le faisceau au volume de mesure et une paire de lentilles cylindriques divergente ($f = -12,5$ mm) et convergente ($f = 500$ mm) pour former une nappe laser dans le plan xy de 50 mm de hauteur et 200 μ m d'épaisseur environ. L'énergie dans la nappe laser au volume de mesure est ~ 4 mJ par impulsion pour une largeur temporelle de 6 ns (Figure 35 (b)). Le signal de fluorescence est collecté avec une caméra intensifiée (Princeton instrument PIMAX4 emiCCD, dynamique de 16 bit) équipée d'un objectif UV (Cercor) de focale 100 mm et d'ouverture f/2,8. La cadence d'acquisition de la caméra est fixée à 3,33 Hz, ce qui correspond à une image toutes les trois impulsions laser. Le temps d'ouverture de la caméra est fixé à 40 ns afin de collecter la fluorescence tout en limitant l'acquisition de signaux parasites. Le signal de fluorescence est isolé spectralement à l'aide de filtres optiques : un filtre passe-haut Schott WG-295 ($\lambda_{coupure} = 295$ nm), un filtre passe bande UV Schott UG11 ($\lambda_{coupure} = 380$ nm) et un filtre passe-bande centré à 315 nm avec une largeur à mi-hauteur de 15 nm (Semrock FF01-315/15-50). Afin de corriger des éventuelles inhomogénéités spatiales de la nappe laser, des images de PLIF d'acétone obtenues dans une cuve optique remplie d'un mélange homogène d'air et d'acétone vapeur ont été acquises. Les images de fluorescence sur OH sont ensuite normalisées par le profil en énergie de la nappe laser déduit des images de PLIF-acétone (Figure 35 (c)). Cette étape est décrite en détail dans la section suivante.

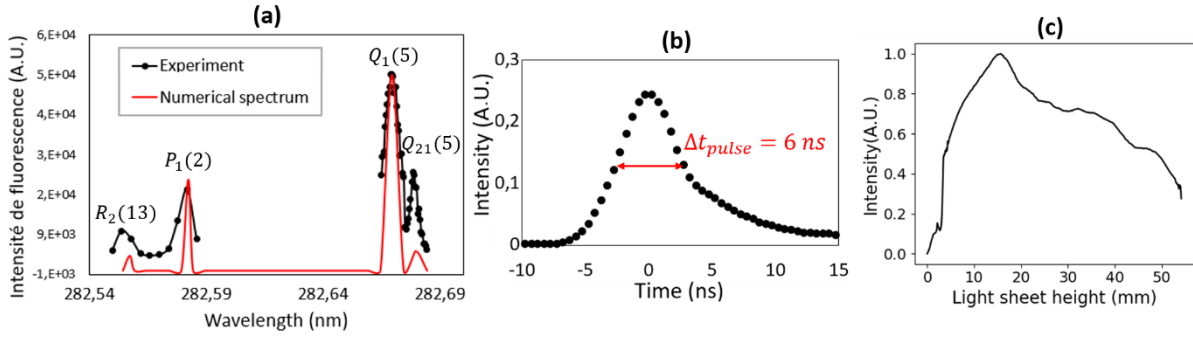


Figure 35 : (a) : Spectre d'excitation du radical OH, le spectre numérique est recalé en termes de longueur d'onde sur le spectre expérimental qui est tracé en fonction de la longueur d'onde indiquée par le laser à colorant. Ici on doit par exemple régler le laser sur environ 282,67 nm pour exciter la transition $Q_1(5)$. (b) Trace temporelle d'une impulsion du laser à colorant enregistrée à l'aide d'une photodiode (largeur à mi-hauteur indiquée en rouge). (c) Profil vertical de la nappe laser.

3.2.2.2 Acquisition et post-traitement des images de PLIF-OH

Les images brutes de fluorescence induite par laser sur le radical OH présentent un bon SNR (rapport signal-à-bruit) d'environ 30. Une image moyenne du bruit de fond obtenu sans flamme est néanmoins utilisée et soustraite à chaque image de fluorescence. Le signal parasite collecté provenant de l'émission naturelle de la flamme est négligeable pour les temps d'intégration utilisés (40 ns). Comme expliqué dans la section précédente, on corrige également les inhomogénéités spatiales de la nappe laser avec une image de fluorescence d'acétone en phase vapeur contenue dans une cuve optique. On suppose que le mélange d'air et d'acétone est homogène dans la cuve. En pratique, la nappe laser affleure la sortie du brûleur afin de réaliser les mesures à partir de HAB = 0 mm. On ne peut cependant pas atteindre cette hauteur avec la cuve car son support mécanique touche le brûleur. Les caméras sont donc déplacées sur l'axe y et la mesure est effectuée à $r = -80$ mm. En cette position, la nappe laser n'a pas la même épaisseur qu'au centre du brûleur mais, puisqu'elle est collimatée grâce à la lentille cylindrique, on peut supposer que son profil vertical est similaire à celui à $r = 0$ mm. On peut distinguer sur la Figure 36 (a) un exemple d'assemblage vertical de deux images de LIF-acétone puisque la cuve n'est pas assez haute pour couvrir les 50 mm du champ de la caméra. On observe bien l'absorption du laser par l'acétone qui pénètre la cuve par la droite de l'image. Afin de ne pas prendre en compte cette absorption dans la correction, on mesure le profil en entrée de la cuve (pointillés rouges sur la Figure 36 (a)). Un exemple de distribution verticale de l'énergie dans la nappe laser est présenté sur la Figure 36 (b). Finalement, l'image I_{LIF-OH} obtenue après ces traitements sera :

$$I_{LIF-OH} = \frac{I_{brute} - \overline{I_{bruit}}}{\overline{I_{acétone}} - \overline{I_{bruit\ acétone}}} \quad (82)$$

avec I_{brute} l'image brute, $\overline{I_{bruit}}$ l'image de bruit sans flamme, $\overline{I_{acétone}}$ l'image de fluorescence sur l'acétone et $\overline{I_{bruit\ acétone}}$ l'image de bruit pour la mesure du profil vertical enregistrée sans acétone dans la cuve. Les barres sur les différentes quantités signifient que des moyennes temporelles sur 1000 champs instantanés sont utilisés.

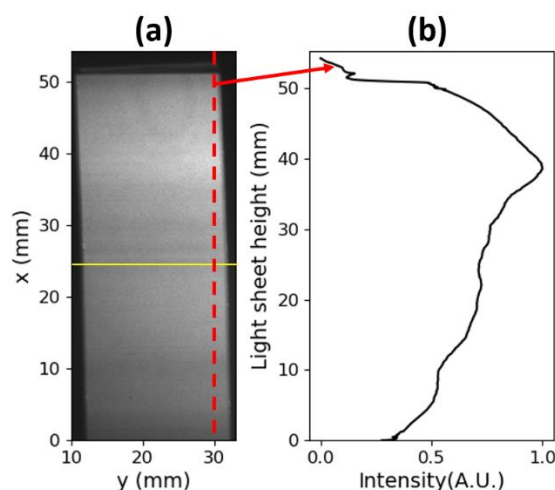


Figure 36 : (a) : Assemblage vertical de deux images de fluorescence délimitées par la ligne horizontale jaune. (b) : Profil vertical de fluorescence à l'entrée du laser dans la cuve au niveau de la ligne pointillée rouge.

3.2.3 PLIF-HAP

La fluorescence induite par laser des HAP est préférablement effectuée à l'aide d'une excitation laser UV située entre 200 et 300 nm même si des longueurs d'onde plus élevées peuvent être utilisées (jusqu'à 700 nm). La source laser utilisée ici est la même que pour les expériences de PLIF-OH, ce qui permet d'utiliser la longueur d'onde d'environ 283 nm. Il est également possible de désaccorder la longueur d'onde de celles des transitions de OH tout en conservant l'excitation des HAP, le but étant d'isoler le signal de fluorescence produit par les précurseurs de suie sur les images de fluorescence. Comme décrit dans la section 2.6.2.2, cette longueur d'onde d'excitation couplé à un filtrage spectral du signal de fluorescence dans la gamme 350 - 400 nm (Edmund Optics ref #12-100) permet de détecter principalement les HAP ayant deux à trois cycles benzéniques et, dans une moindre mesure, les mono-aromatiques et certains HAP de plus grande taille comme le fluoranthène. La détection sera assurée avec une caméra intensifiée similaire à celle utilisée pour la PLIF-OH (Princeton instrument PIMAX4 emICCD, dynamique de 16 bits) et équipée du même type d'objectif optique (Cerro UV de focale 100 mm et d'ouverture f/2,8). Le filtrage optique des signaux parasites situés en dehors de l'intervalle spectral couvert par le filtre optique mentionné ci-dessus a été renforcé avec un filtre passe haut Schott WG-295 ($\lambda_{coupure} = 295 \text{ nm}$) et un filtre passe bas GG-400 ($\lambda_{coupure} = 400 \text{ nm}$).

3.2.4 Mesure de température

3.2.4.1 Dispositif expérimental

Les mesures de température ont été réalisées avec des thermocouples de type B (platine-rhodium (30%) et platine-rhodium (6%)). Le diamètre des fils est de 50 μm et celui de la jonction de soudure est d'environ 35 μm (Annexe 1). Le faible diamètre de la jonction garantit une meilleure précision car les pertes par conduction sont minimisées. Un tube en céramique permet de maintenir aisément le point de soudure dans la flamme. Les soudures sont réalisées par arc électrique au laboratoire par Franck Lefebvre, technicien au pôle métrologie du CORIA. Certaines précautions sont cependant à prendre dans son utilisation car la résistance mécanique du thermocouple est faible. Plusieurs thermocouples ont été endommagés au cours des campagnes de mesure dans les zones proches du front de flamme présentant une température et une vitesse élevée. Afin de réduire ces contraintes, les thermocouples sont introduits par le haut au centre de la

flamme et sont ensuite descendus à l'intérieur de la flamme sans s'approcher du front de flamme (flèche rouge sur la Figure 37 (a)). Le thermocouple est fixé sur deux platines de translation manuelles afin de contrôler précisément les déplacements dans le plan xy et le centrage en z est effectué avec un niveau laser avant d'allumer la flamme. En complément des platines de translation, une caméra de visualisation enregistre les images du thermocouple pendant l'expérience afin de situer précisément la position de la soudure dans le repère du brûleur (voir Figure 37 (a)).

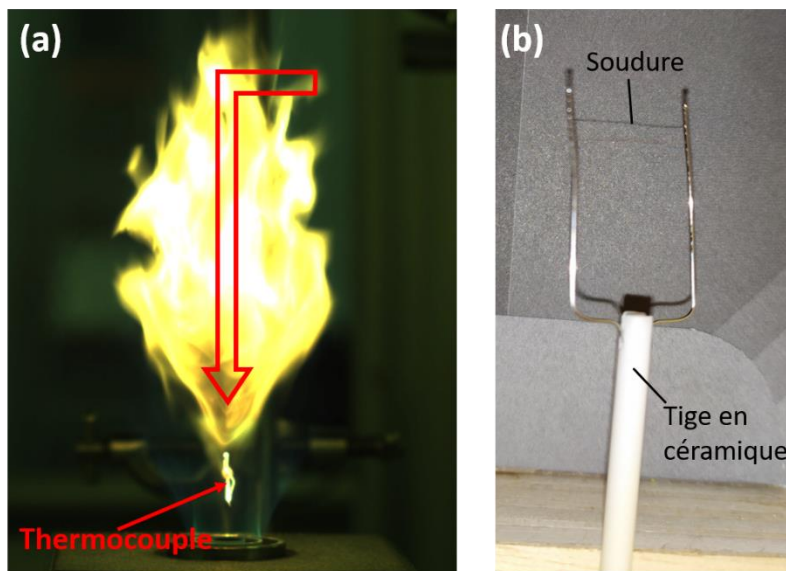


Figure 37 : (a) Image prise par la caméra de visualisation pendant la mesure de température. (b) : Photographie du thermocouple utilisé.

3.2.4.2 Evaluation du dépôt de suie et protocole de mesure

Comme évoqué dans la section 2.6.4, il est possible d'observer un dépôt de suie sur le thermocouple dans des flammes à forte production de particules de suie. Cela a pour effet de réduire progressivement la température de la soudure à cause d'une accentuation des pertes thermiques par rayonnement et par conduction. Ce phénomène a été évalué pour les flammes étudiées. Chronologiquement, les mesures de fraction volumique de suies par LII ont été réalisées avant les mesures de température. Nous avons donc sélectionné une position présentant les fractions de volume moyennes les plus élevées afin d'étudier le cas de dépôt le plus défavorable, c'est-à-dire le point de fonctionnement 1 à une hauteur de 25 mm et une position radiale $r = 0$ mm (mesures de fractions volumiques en section 5.5). Comme exposé dans la section précédente, le thermocouple est positionné dans la flamme pendant toute la durée de la mesure. Il n'a pas été possible d'utiliser un système pneumatique pour insérer rapidement le thermocouple dans la flamme car cela implique un passage à travers le front de flamme et donc une destruction de la soudure du thermocouple. Afin de s'assurer d'une absence de dépôt de suies au début de l'enregistrement, on passe par un point de fonctionnement à haut swirl et sans stratification. Ce point de fonctionnement n'est pas détaillé dans le manuscrit mais il a été analysé par PLIF-OH et présente une concentration spatiale de OH homogène. Cette flamme présente donc des conditions propices à l'oxydation des suies et sera donc utilisée entre chaque mesure pour éliminer le dépôt de suie sur le thermocouple. Une rampe de débit de 5 secondes est utilisée

pour passer de la flamme d'oxydation au point d'intérêt. L'enregistrement des températures est déclenché dès la fin de cette rampe et à la fréquence de 1 kHz. La Figure 38 expose quatre décroissances temporelles obtenues suivant ce protocole.

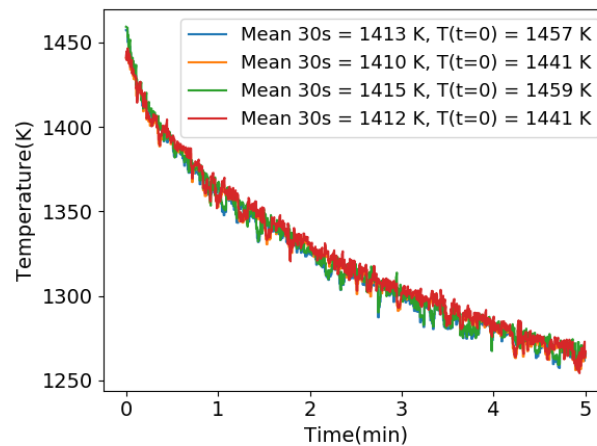


Figure 38 : Décroissances temporelles mesurées par thermocouple pour le point 1 (HAB = 25 mm, $r=0$ mm).

Globalement, on remarque que le protocole d'oxydation remplit bien son rôle et qu'il est répétable. Une décroissance relative au changement d'émissivité est observée pendant les 30 premières secondes (environ -2 K/s) puis se ralentit progressivement pour atteindre environ -0,3 K/s entre la quatrième et la cinquième minute. Les valeurs moyennes sur les trente premières secondes ainsi que la température maximale (mesurée à $t = 0$ s) sont reportées sur la légende de la Figure 38. On note une fluctuation de l'ordre de 20 K sur la température mesurée à $t = 0$ s provenant principalement du bruit de mesure que l'on retrouve sur tout le profil temporel. La valeur moyenne sur les trente premières secondes et beaucoup moins sensible au bruit de mesure et présente donc une fluctuation moindre (~ 5 K). Elle est cependant entachée d'une erreur systématique maximale de 50 K dans les régions où le dépôt en suie est conséquent. Cette erreur est fonction de la vitesse de dépôt et donc de la position dans la flamme. Afin de s'affranchir de ce type d'erreur, difficilement quantifiable, on pourrait être tenté de considérer seulement la température à $t = 0$ s avec une incertitude de 20 K. Le problème est qu'on étudie ici une flamme turbulente qui présente des fluctuations temporelles de température. Il faut donc absolument moyenner temporellement les températures mesurées afin d'obtenir une température représentative des conditions moyennes rencontrées dans la flamme. Le choix retenu est donc de moyenner les mesures sur les trente premières secondes tout en intégrant une minimisation potentielle de la température de 50 K dans l'incertitude (cas le plus défavorable). On ajoutera à cela une incertitude relative au bruit de mesure. Cette dernière est calculée en appliquant un filtre de Savitsky-Golay sur le profil de température brute puis en soustrayant au signal filtré le signal de température brut afin d'extraire les fluctuations de haute fréquence. L'incertitude est déterminée comme étant trois fois l'écart-type de ces fluctuations (encadrement de 99,7 % des fluctuations). Les résultats seront donc présentés en tenant compte de ces deux sources d'incertitude qui sont volontairement surestimées car certaines sources d'incertitude comme les pertes par conduction ou l'émissivité variable ne sont pas évaluées ici.

La discussion qui suit vise à comprendre si la précision atteinte par la mesure par thermocouple est suffisante dans notre cas. Nous avons vu dans le Chapitre 2 que la température va principalement agir au niveau de deux phénomènes conditionnant la présence de suie dans la flamme : la décomposition du carburant

amenant à la formation des HAP et l'oxydation. La variation caractéristique de température du premier phénomène est de plusieurs centaines de degrés entre la température d'injection (environ 300 K) et le début de la formation des HAP (900 – 1200 K). Mesurer ces variations, associées à la formation des HAP, sera donc aisé même avec une mesure présentant une incertitude de quelques dizaines à centaines de degrés. En ce qui concerne l'oxydation, nous savons qu'elle est favorisée par des températures élevées engendrées notamment par les gaz brûlés pour lesquels on attend des températures supérieures à 1500 K. La discrimination spatiale des conditions de température propices à ces réactions est donc possible avec des mesures par thermocouple. Pour améliorer la précision, réduire l'intrusivité et possiblement obtenir des mesures résolues en temps, il faudrait passer à des diagnostics optiques comme la DRASC par exemple [207].

3.2.5 LII

Plusieurs campagnes de mesure d'incandescence induite par laser ont été réalisées isolément ou simultanément avec d'autres techniques de mesure afin de caractériser les particules de suie produites par le brûleur SIRIUS. Premièrement, des mesures LII ont été réalisées avec un faisceau laser exciteur de même longueur d'onde que celle utilisée pour les mesures de PLIF, c'est-à-dire $\lambda=283$ nm, le but étant de corréler les zones de production de suie avec celles des précurseurs (HAP). Les optiques utilisées pour acheminer le faisceau laser dans la flamme sont les mêmes que pour la PLIF. A cette longueur d'onde d'excitation, un signal de fluorescence des HAP est observé sur les images collectées, empêchant une mesure quantitative précise de la fraction volumique de suies. Cependant, il est tout de même possible d'isoler spatialement sur les images le signal d'incandescence provenant des particules de suie de celui émanant de la fluorescence émise par les HAP (voir section 3.2.9.3). Ceci permet alors d'observer les variations relatives spatiales des signaux d'incandescence dans la flamme. Le système de détection est identique à celui utilisé pour la PLIF : caméra intensifiée PIMAX4 et objectif UV cerco. Le filtrage spectral est constitué d'un filtre optique passe-haut avec une longueur d'onde de coupure à 325 nm (Asahi Spectra ZUL0325) permettant de capter le signal d'incandescence des suies sur une grande partie de la gamme spectrale de la caméra couplé à un filtre optique passe haut Schott WG-305 ($\lambda_{coupure} = 305$ nm).

Une seconde campagne de mesure a été réalisée pour quantifier la fraction volumique de suies. Pour ce faire, la technique de LII planaire autocompensée a été utilisée. Un développement important a été associé à la mise en œuvre de cette technique dans une flamme turbulente (voir section 2.5.4.2). Comme une excitation dans l'infrarouge est nécessaire à la suppression totale de l'excitation de la LIF-HAP [206], la longueur d'onde fondamentale d'une source laser Nd:YAG (Quantel Brilliant Eazy) a été sélectionnée ($\lambda=1064$ nm). Une nappe laser quasi top-hat de 60 mm de hauteur et de 400 μm d'épaisseur au niveau de son interaction avec la flamme est formée avec les optiques infrarouges suivantes (Figure 39 (a) et (b)) : une lentille sphérique de focale 1 m, une lentille cylindrique convexe de focale – 40 mm et une lentille cylindrique concave de focale 300 mm. Le profil de la nappe laser est mesuré avant chaque expérience avec une caméra CMOS (profileur de faisceau USBeamPro). La cadence d'émission des impulsions laser est fixée à 10 Hz et leur largeur temporelle à mi-hauteur est de 6 ns. Une lame demi-onde couplée à un polariseur de Glan-Taylor sont utilisés afin d'atténuer la puissance dans la nappe laser tout en conservant le même régime de fonctionnement du laser (intensité de lampe flash constante et cristaux thermalisés). La technique d'autocompensation reposant sur une mesure bi-chromatique, la détection des signaux est assurée par deux caméras identiques à celles utilisées pour les expériences de fluorescence (PIMAX 4 eMCCD et objectif Cerco UV). Ces caméras sont équipées de filtres optiques passe-bande dans l'intervalle [350 nm - 400 nm] (Edmund Optics ref #12-100) pour l'une et [618 nm - 646 nm] (Semrock FF02-632/28-50) pour l'autre.

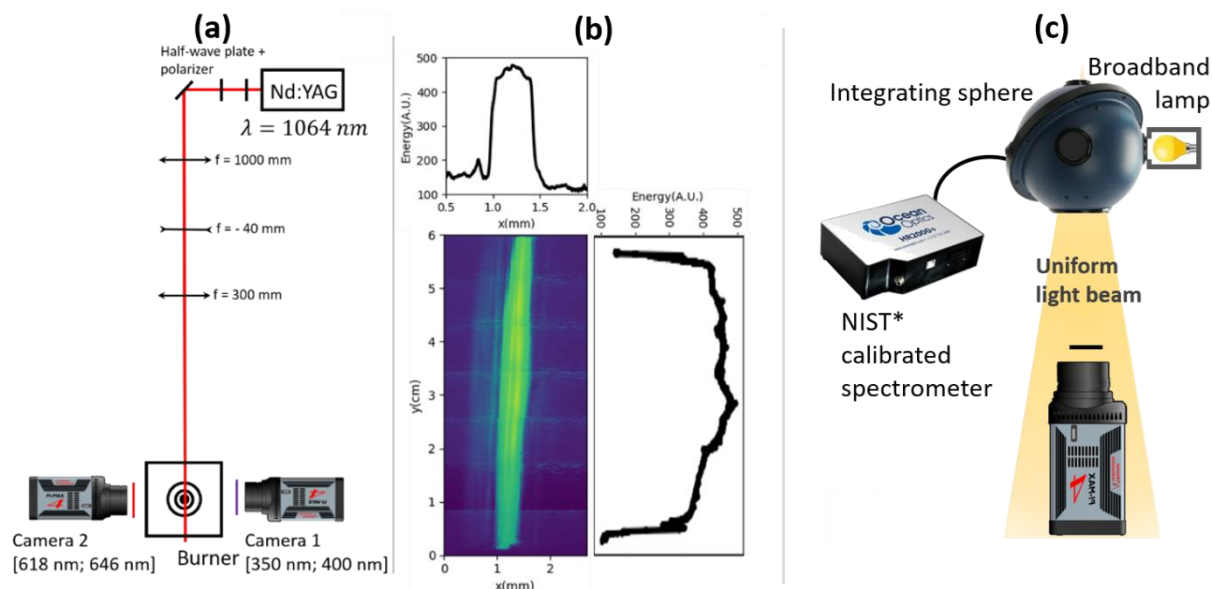


Figure 39 : (a) : Schéma du dispositif expérimental de 2D-AC-LII. (b) Profil de nappe mesuré pour la 2D-AC-LII. (c) Dispositif expérimental d'étalonnage.

Pour la détermination des fractions de volume de suie en LII autocompensée, l'étalonnage des caméras en intensité est indispensable (voir section 2.5.4.2). Le montage expérimental utilisé est détaillé sur la Figure 39 (c). On utilise une sphère intégrante dont la paroi interne est peinte en blanc afin d'homogénéiser spatialement la lumière émise par une lampe illuminant l'intérieur de la sphère. Cette lumière est réémise par une sortie circulaire et forme un faisceau uniforme dans un angle solide d'environ $2\pi \text{ sr}$. Un spectromètre fibré mesure l'intensité lumineuse dans la sphère sur la gamme spectrale [350 nm - 1000 nm] et la relie à la luminance du faisceau de sortie grâce à un étalonnage préalable réalisé par le NIST (National Institute of Standards and Technology) (voir la courbe de la luminance spectrale en sortie de sphère, Annexe 2). L'étalonnage est réalisé après chaque expérience avec les mêmes gains et temps d'ouverture des caméras utilisés pendant les expériences en flamme.

3.2.6 Diffusion angulaire à haute cadence

Comme détaillé dans le Chapitre 2, la taille des particules de suie est mesurée par diffusion angulaire à haute cadence. Cette technique de mesure nécessite l'utilisation d'une source laser et de caméras rapides. La disposition des éléments est détaillée sur la Figure 40 (a). Une source laser Nd:YAG (Edgewave) impulsionnelle et doublée en fréquence ($\lambda = 532 \text{ nm}$) fonctionnant à une cadence de 1 kHz avec une largeur temporelle à mi-hauteur de 10 ns est utilisée. Afin de garantir un profil spatial de faisceau constant, le laser fonctionne à pleine énergie (22 mJ par impulsion) puis il est atténué avec une lame demi-onde et un polariseur de Glan-Taylor qui renvoie la composante h de la polarisation (parallèle au plan de diffusion) vers un bloqueur de faisceau. Une nappe de $120 \mu\text{m}$ d'épaisseur (Figure 40 (b)) et de 50 mm de hauteur au volume de mesure est formée avec le jeu de lentilles optiques suivant : une lentille sphérique de distance focale 1 m, une lentille cylindrique divergente de distance focale -20 mm et une lentille cylindrique convergente de distance focale 500 mm. Trois caméras Phantom V2012 équipées d'objectifs ZEISS Milvus 2/100M (focale 100 mm et ouverture f/2,0) et de filtres interférentiels à 532 nm (FWHM = 10 nm) placées à des angles de diffusion de 45° , 90° et 135° sont utilisées pour détecter les signaux de diffusion. Les mesures d'étalonnage incluant la sphère intégrante sont effectuées selon la même configuration que pour la LII (voir Figure 39 (c)).

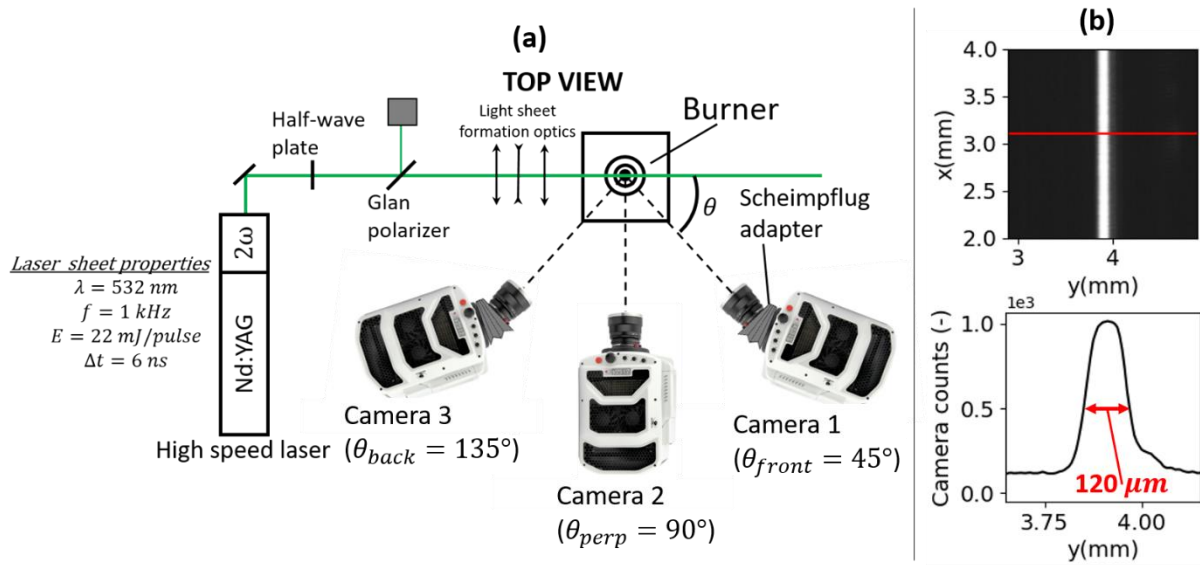


Figure 40 : (a) : Schéma expérimental de la diffusion angulaire. (b) : Profil d'intensité de la nappe au volume de mesure.

3.2.7 Diffusion spectrale

La disposition des éléments constituant le dispositif qui seront cités ci-après peut être visualisée sur la Figure 41. Les mesures de diffusion spectrale nécessitent une excitation large-bande et une détection résolue en longueur d'onde. Pour cela, on utilise une source dite LDLS (Laser Driven Light Source modèle Energetiq EQ-99FC) où un plasma de Xénon est formé entre deux électrodes, ce dernier étant ensuite excité avec une diode laser focalisée. Le spectre d'émission du plasma s'apparente alors à un continuum de lumière dans le visible (voir Annexe 2). Le faisceau de sortie est injecté dans une fibre optique au bout de laquelle est fixé un miroir parabolique permettant de réduire la divergence du faisceau. La source de lumière est montée sur un bras rotatif autorisant une variation de l'angle de diffusion. Cette technique est en cours de développement et n'a pas pu être appliquée sur le brûleur SIRIUS. L'objet d'étude est un aérosol de particules de suie produit avec un générateur commercial appelé miniCAST [230]. Cet appareil produit des particules de suie avec une flamme de diffusion de propane. Les gaz brûlés contenant les particules de suie sont ensuite quenchés et dilués afin de limiter les réactions chimiques au sein de l'aérosol. Le miniCAST est une source de production de suie stable dans le temps et le large éventail de particules de suie qu'il est capable de produire a fait l'objet de nombreuses études [65, 177, 231], ce qui en fait un appareil idéal pour le développement de techniques de mesure. L'aérosol est injecté par l'intermédiaire d'un tuyau au centre de rotation du bras rotatif et un écoulement co-annulaire d'air permet d'obtenir un jet stable quasiment laminaire. La lumière diffusée, provenant de l'interaction entre les particules de suie et la lumière blanche, est collectée avec deux lentilles optiques de focales 200 mm et 100 mm puis focalisée dans un spectromètre (Acton SP2150i) munie d'une fente d'entrée de $100 \mu\text{m}$ de large. La dispersion de la lumière au sein du spectromètre est assurée par un réseau de 150 traits/mm blazé à 800 nm et centré à 600 nm. Le spectre obtenu est transformé en image numérique au moyen d'une caméra intensifiée (Princeton instruments PIMAX4-1024EMB- HR-FO-P46-CM-FM-SM-SF) dont la sensibilité est maximale dans la gamme 500 - 850 nm. On utilisera la sphère intégrante détaillée dans la section 3.2.4.2 pour l'étalonnage en intensité du système de mesure. L'étalonnage spectral est effectué avec un laser He-Ne à 632 nm, un laser Nd:YAG doublé à 532 nm et une lampe Hg/Ne (Princeton Instruments IntelliCal) possédant diverses raies d'émission situées dans la gamme spectrale étudiée. Dans un

but de comparaison avec la méthode optique, une mesure de distribution de taille par SMPS (marque TSI) est effectuée après dilution de l'aérosol par deux systèmes de dilution en série (Palas VKL 10).

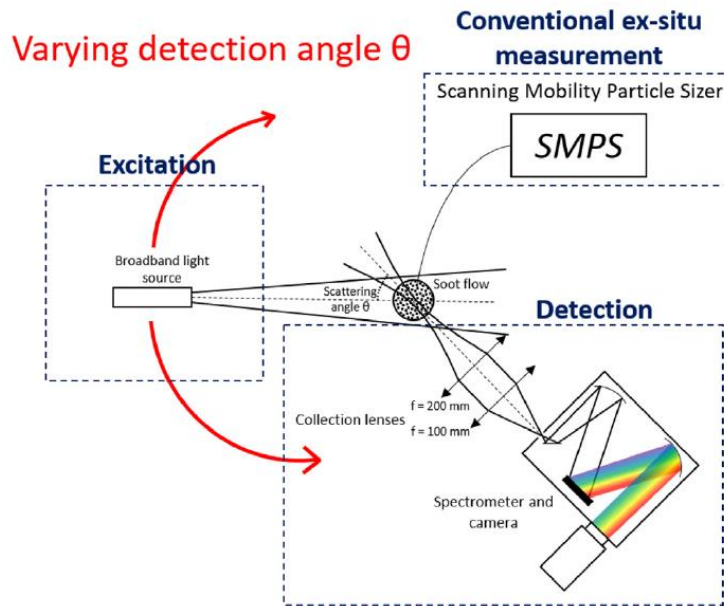


Figure 41 : Dispositif expérimental pour la diffusion spectrale.

3.2.8 Mesures *ex-situ* par prélèvement

3.2.8.1 SMPS

Le prélèvement des particules de suie est effectué directement dans la flamme. Pour cela, on utilise le dispositif de mesure présenté sur la Figure 42. La sonde de prélèvement est un tube en inox dans lequel circule un débit d'azote. Ce tube est percé à mi-longueur d'un trou de 1 mm de diamètre. Cet écoulement produit au niveau de l'orifice une dépression par effet Venturi provoquant l'aspiration du gaz à proximité du trou. L'aérosol est alors instantanément dilué par le jet d'azote ce qui permet de figer thermiquement les réactions chimiques ainsi qu'une partie de l'aggrégation des particules de suie. En sortie du tube, l'aérosol est à nouveau dilué avec un dispositif de dilution commercial (Dekati FPS-4000). Dans la suite de ce travail, le système de dilution sera appelé FPS. Le FPS permet de réguler le facteur de dilution entre 10 et 120, pour des températures de prélèvement pouvant atteindre 350°C. Il est constitué de deux étages de dilution : une dilution à chaud et une seconde à froid. La dilution à chaud permet de figer l'agglomération et d'éviter la condensation de la vapeur d'eau ou d'espèces gazeuses condensables sur les particules. La seconde dilution à froid permet d'éjecter l'aérosol dilué à la température et à la pression ambiante afin d'être analysé par les appareils de mesure disposés en aval. Un capteur de pression différentielle est placé juste avant le FPS. Cette pression sera gardée constante pendant toutes les expériences afin que les paramètres de dilution restent inchangés d'une mesure à l'autre. Un autre tuyau relié à une pompe elle-même raccordée à un échappement est aussi installé à cet endroit. Une vanne régulant le débit dans cette ligne de gaz permet également de contrôler la pression mesurée par le capteur en amont du FPS. L'aérosol est directement amené jusqu'au SMPS après la dilution. Ce montage a été développé en parallèle dans le cadre de la thèse d'Aurélien Perrier et tous les détails expérimentaux ne seront pas forcément détaillés ici.

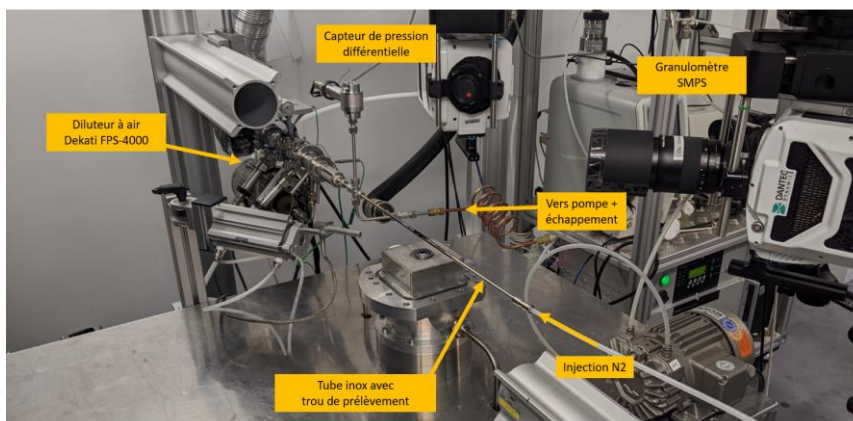


Figure 42 : Dispositif expérimental de prélèvement.

3.2.8.2 TEM

Le prélèvement des particules destinées à être analysé par microscopie est effectué avec les mêmes sonde de prélèvement et système de dilution que pour l'analyse en ligne (SMPS). Des grilles en cuivre recouvertes d'un film de carbone spécifiques aux dépôts pour analyse TEM (Oxford Instruments 51-1625-0209) sont directement exposées à l'aérosol dilué en sortie de FPS. Le dépôt de particules est beaucoup plus lent par cette technique que par insertion directe dans la flamme ou la thermophorèse joue un rôle prépondérant. Cette technique est cependant plus simple à mettre en place et les agrégats déposés sont représentatifs de ce qui est mesuré par SMPS.

3.2.9 Couplage simultané des techniques de mesure optiques

3.2.9.1 Synchronisation temporelle

Le couplage des différentes techniques de mesure optique sera effectué au moyen de deux dispositifs expérimentaux. Le premier inclut le couplage de la LII non-quantitative et des fluorescences des HAP et de OH. Un laser à colorant sert à exciter et produire les trois différents signaux de mesure alors que deux caméras équipées de filtres optiques seront utilisées pour leur détections (cités dans les sections ci-dessus pour les techniques individuelles). Un ajout de la PIV nécessite d'utiliser une seconde source laser émettant à $\lambda = 532 \text{ nm}$ et de combiner ensuite deux nappes laser : $\lambda = 532 \text{ nm}$ pour la PIV et $\lambda = 283 \text{ nm}$ pour la fluorescence ou la visualisation des suies. A cet effet, une lame dichroïque possédant une réflectivité de 99% à 532 nm et une transmittivité de 99% à 283 nm est utilisée. La caméra pour les mesures PIV est placée à 90° par rapport à la nappe laser tandis qu'une des caméras utilisées pour les autres mesures est placée à côté de la caméra PIV avec un petit angle. La déviation angulaire du plan de mise au point est compensée par l'utilisation d'une monture Scheimpflug. Il est important de noter que la caméra PIV est située à 90° afin d'enregistrer uniquement les déplacements des particules dans le plan xy. Pour ce qui est de la synchronisation temporelle, un générateur d'impulsion électrique (Modèle Berkeley Nucleonics 577 20 MHz) est utilisé. L'impulsion laser UV ainsi que la détection de la fluorescence sont réalisées entre les deux impulsions laser PIV (6 μs après la première). Une mesure avec une photodiode rapide des deux signaux émis par les deux sources laser permet de s'assurer de la synchronisation des impulsions (voir Figure 43). La

fluorescence des HAP ainsi que la LII sont détectés sur une seule caméra au moyen d'un filtre passe-haut de longueur d'onde de coupure 325 nm (fabricant ASAHI) et d'un filtre UG-11.

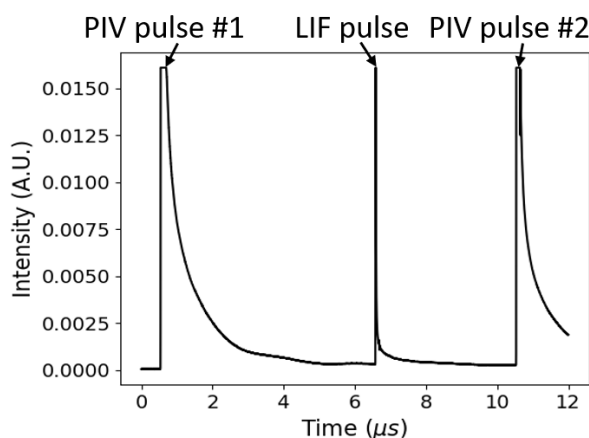


Figure 43 : Synchronisation temporelle mesurée avec une photodiode pour les mesures couplées avec les lasers à 283 nm et à 532 nm.

3.2.9.2 Recalage spatial

Lors de l'application de techniques optiques planaires sur plusieurs caméras en simultanément, un recalage spatial précis des champs ainsi mesurés s'avère nécessaire. Pour s'assurer que les champs sont enregistrés à la bonne hauteur et connaître précisément la position de l'axe vertical ($r = 0$ mm), on utilise un outillage gradué s'encastrant dans la tête d'injection et dont la première graduation coïncide avec la position $HAB = 0$ mm. On vérifie au préalable que l'axe de l'outillage est bien vertical grâce à un niveau laser. Une règle graduée fixe indiquant la hauteur dans la flamme est tracée au mur avec un niveau laser pour vérifier à tout moment que l'outillage est bien positionné : on vérifie alors que le niveau laser indique la même valeur de HAB sur l'outillage et sur le mur. Lorsque deux caméras PiMAX 4 équipées des mêmes objectifs optiques sont placées de part et d'autre du brûleur, on fixe le champ de l'une d'entre-elles grâce à la procédure décrite ci-dessus, puis on ajuste la position de la seconde caméra pour que le champ visualisé coïncide avec celui de la première caméra grâce à une mire transparente. Puisque les optiques et les capteurs CCD sont identiques, il est possible d'obtenir les mêmes champs de visualisation au pixel près. Pour cela, les caméras sont installées sur des platines de translation micrométriques autorisant une course de 63 mm (Newport UMR12.63). Cette dernière caractéristique est importante car on aura besoin d'enregistrer des images à deux hauteurs espacées de 50 mm (une image entre $HAB = 0$ et $HAB = 50$ mm et une autre entre $HAB = 50$ et $HAB = 100$ mm) de manière à analyser la majeure partie de la flamme. La même procédure est utilisée lorsqu'on ajoute une troisième caméra pour la PIV. Pour les mesures de LII autocompensée, des rapports entre les images des caméras sont effectués sur des signaux pouvant présenter de forts gradients. Il est donc important de s'assurer que les champs visualisés sont parfaitement coïncidents. On utilise pour cela des images de la mire transparente auxquelles on applique des transformations de rotation, de translation, d'étirement et de contraction. Un exemple de cette procédure est présenté sur la Figure 44. Les deux images brutes sont présentées sur la Figure 44 (a) et (b) et la somme de ces deux images sans transformation est présentée sur la Figure 44 (c). On constate des différences de position des marques de la mire surtout dans la partie droite de l'image. L'image (d) représente la somme des images (a) et (b) après transformation. On constate une superposition quasiment parfaite des marques. Pour les calculs de LII impliquant de forts gradients

d'intensité, on appliquera également un filtre optique passe-bas aux images enregistrées afin de lisser ces gradients et de réduire les erreurs liées à un décalage éventuel d'un ou deux pixels. Pour toutes les mesures, la résolution spatiale sera calculée grâce à cette mire transparente étalonnée en dimension.

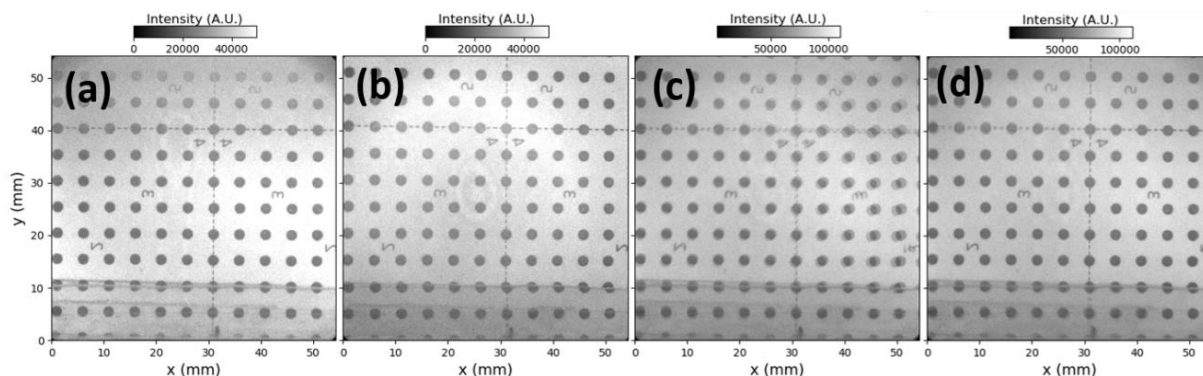


Figure 44 : (a) Image de mire enregistrée avec la caméra 1. (b) Image de mire enregistrée avec la caméra 2. (c) Somme des images des deux caméras sans correction. (d) Somme des deux images avec correction.

3.2.9.3 Séparation des signaux de LII et de PLIF-HAP

Dans les deux sections précédentes, la configuration expérimentale autorisant les mesures simultanées de LII, de PIV et de fluorescence induite par laser sur OH et sur les HAP a été présentée. Dans cette configuration, la fluorescence des HAP et les signaux de LII sont enregistrées sur la même caméra. On obtient donc une image contenant des signaux provenant du radical OH ainsi que des signaux provenant du rayonnement thermique des suies. Cependant, comme le montreront les sections 5.4 et 5.5, les résultats de ces expériences non couplées ont révélé que, la plupart du temps, ces deux signaux ne coexistent pas spatialement et temporellement. Une séparation des deux quantités par un post-traitement des images a donc été mise en place. La procédure de séparation des deux contributions au signaux de mesure est illustrée sur la Figure 45. Elle se décompose en plusieurs étapes :

- Les images brutes de LII (suie)/PLIF-HAP (Figure 45, a) et de PLIF-OH (b) sont enregistrées et stockées. L'image (a) indique un signal résiduel de fluorescence de OH qui disparaît lorsque le faisceau laser est désaccordé de la raie rotationnelle $Q_1(5)$.
- Un masque est créé à l'aide d'un seuillage de l'image (b) afin d'extraire la position du radical OH. Ce masque est ensuite utilisé pour supprimer le signal résiduel de OH sur l'image (a). Il en résulte l'image (c).
- Les signaux d'incandescence de suie et de fluorescence des HAP sont séparés sur l'image (c) à l'aide d'un seuillage. La valeur du seuil est déterminée grâce à un algorithme triangle [232] qui s'est avéré empiriquement être adapté. L'histogramme de l'image HAP/suie (c) sur laquelle l'algorithme triangle est appliqué est présenté sur l'image (d) avec les pixels attribués aux suies en orange et les pixels attribués au HAP en noir. Le résultat de cette procédure de séparation de signaux est illustré par les images (e) et (f) correspondant aux particules de suie et aux HAP, respectivement. Pour le succès de cette étape, il est impératif d'utiliser une porte d'intégration de caméra relativement longue (100 ns) afin que le signal d'incandescence soit nettement supérieur au signal provenant des HAP.

On observe sur ces figures que la méthode de séparation de signaux proposée peut être limitée car il n'y a pas de discontinuité spatiale claire entre les suies et les HAP, en particulier dans la partie inférieure de la

flamme. Dans ce cas, la limite de niveau de gris suie / HAP est forcément dépendante du seuillage fixé. On note également que, dans la zone de recirculation centrale (voir section 5.1 pour plus d'informations) et en bordure des poches de suie (faible intensité du signal LII) le signal de mesure peut être attribué aux HAP alors qu'ils appartiennent en réalité à des suies. C'est le cas par exemple de quelques pixels le long du filament en bas à droite de la zone de recirculation centrale. Malgré ses limitations, cette méthode paraît suffisamment précise pour une évaluation qualitative simultanée de la position des particules de suie et des HAP dans la flamme. Obtenir une telle corrélation est néanmoins une information de premier plan pour l'étude de la formation des particules de suie. Il est important de rappeler que pour ces mesures couplées, le signal de LII n'est pas étalonné en termes de fraction volumique de suies et seules des informations qualitatives sont déduites de l'analyse de ces images.

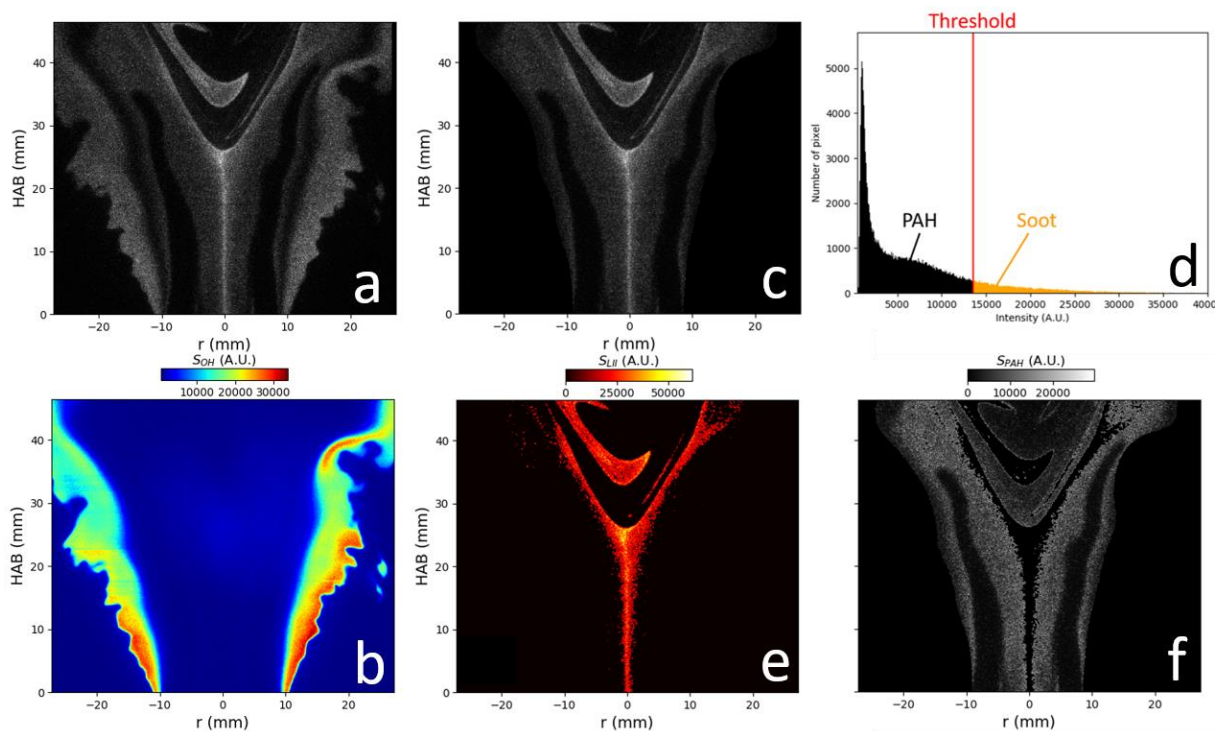


Figure 45: a : Image brute enregistrée sur la caméra suie / HAP. b : Image brute enregistrée sur la caméra de PLIF-OH. c : Image (a) masquée du signal résiduel de fluorescence de OH. d : Histogramme de l'image (c) avec le seuil en rouge, les pixels attribués aux HAP en noir et les pixels attribués aux suies en orange. e : Image finale des pixels attribués à l'incandescence des particules de suie. f : Image finale des pixels attribués à la fluorescence des HAP.

Chapitre 4. Développement des techniques optiques

4.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la description des développements de diagnostics optiques qui ont été effectués durant ma thèse. Les deux premiers développements concernent des diagnostics qui ont été appliqués sur le brûleur SIRIUS : la LII autocompensée et la diffusion angulaire haute cadence. Ces deux techniques de mesure permettent de faire de l'imagerie quantitative dans la flamme et d'accéder à des paramètres clés pour la compréhension des processus de formation des particules de suie dans les flammes turbulentes : la fraction volumique, le diamètre des particules primaires et le diamètre des agrégats. Il sera même possible d'obtenir un suivi résolu en temps de cette dernière grandeur physique grâce à l'utilisation de matériel haute cadence. Enfin, un troisième développement sera présenté : la diffusion spectrale. Il s'agit d'une adaptation de la technique de diffusion angulaire à laquelle on ajoute une autre source d'information provenant du traitement de la variation spectrale du signal diffusé. Ce développement original n'a cependant pas été mis en œuvre sur le brûleur SIRIUS. Il s'agit d'un travail préparatoire qui vise à permettre la mesure de distribution de taille des suies en milieu confiné pour de futures applications à haute-pression.

4.2 Incandescence induite par laser autocompensée

4.2.1 Introduction et motivation

Cette section est consacrée à la description des travaux menés dans le cadre du développement de la LII autocompensée pour une mise en œuvre au sein de flammes turbulentes. Cette technique possède de nombreux avantages qui ont été décrits dans la section 2.5.4.2. Son application en mesure à deux dimensions en flamme turbulente n'a, à notre connaissance, jamais été rapportée dans la littérature scientifique. Comme nous le verrons dans les sections suivantes, les signaux collectés dans les flammes étudiées sont peu intenses, notamment à cause des faibles fractions volumiques de suie (voir Figure 49). Un long temps d'ouverture de la caméra doit alors être utilisé afin d'obtenir un meilleur rapport signal-à-bruit (SNR). Un temps d'ouverture de 100 ns pour la mesure des fractions volumiques analogue à celui utilisé par Tian et al. et par Roussillo et al. [113, 233] a été fixé. Cependant, cette longue durée peut causer une erreur sur la détermination de f_v en LII autocompensée. En effet, la fraction volumique, déterminée à partir l'équation (77), considère une température effective constante sur la durée d'intégration du signal. On sait que cette hypothèse n'est pas valide car les particules de suie se refroidissent après leur interaction avec l'impulsion laser. La relation qui lie la fraction volumique de suies à la température peut alors être réécrite en prenant en compte ce refroidissement et on obtient alors :

$$f_{v,CC} = \frac{S_{LII,\lambda_s}}{S_{ref}} \frac{\lambda_s \Delta t_d}{6\pi E(m(\lambda_s)) l_v} \frac{L_{ref}(\lambda_s)}{\int_{t=t_d}^{t_d+\Delta t_d} L_{BB}(T_s(t, D_p, T_{peak}, T_{gaz}), \lambda) dt} \quad (83)$$

$f_{v,CC}$ est la fraction volumique calculée en tenant compte du refroidissement (indice « CC » pour « cooling considered » en anglais), λ_s est la longueur d'onde de détection, t_d est le délai entre le maximum de l'impulsion laser et le début de l'ouverture de la porte de la caméra et Δt_d la durée d'ouverture de la porte d'intégration du signal de mesure. On remarque dans cette expression que le terme de luminance de corps noir des particules de suie est fonction du temps via l'évolution temporelle de leur température d'incandescence. L'erreur relative produite sur la mesure de f_v si on ignore ce refroidissement est présentée

sur la Figure 46. Celle-ci est égale au rapport entre les équations (77) et (83), ce qui amène à l'expression suivante :

$$erreur\ relative\ f_v = \frac{\Delta t_d L_{BB}(T_{s,eff}, \lambda)}{\int_{t=t_d}^{t_d+\Delta t_d} L_{BB}(T_s(t, D_p, T_{peak}, T_{gaz}), \lambda) dt} \quad (84)$$

On observe que l'erreur relative sur f_v peut atteindre environ 15 % pour une durée d'intégration du signal de mesure de 60 ns. On observe également que cette erreur dépend de la vitesse à laquelle les particules de suie se refroidissent (en abscisse). En effet, plus la vitesse de refroidissement sera élevée et plus l'écart entre le numérateur et le dénominateur de l'équation (84) sera grand. Dans notre expérience où on définit une durée d'intégration de 100 ns, on peut s'attendre à ce que cette erreur soit non négligeable. Une méthode de correction de cette erreur, a alors été proposée et développée. Elle est réalisée en deux étapes. La première étape consiste à recueillir des informations sur l'allure de la décroissance temporelle du signal de LII, ce qui permet par ailleurs de mesurer le diamètre des particules primaires par LII résolue en temps. La seconde étape consiste à évaluer la fraction volumique de suies en tenant compte de cette décroissance temporelle ($f_{v,CC}$).

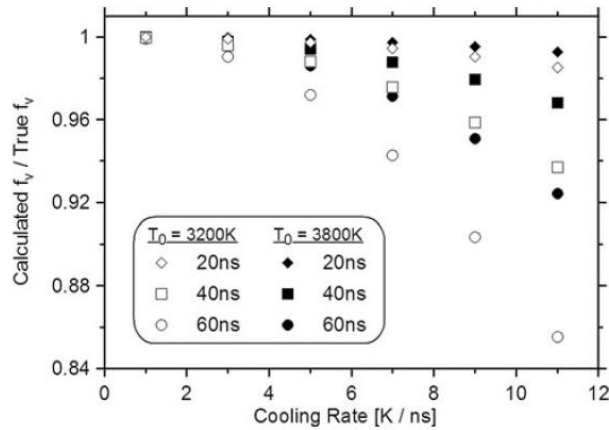


Figure 46: Erreur relative commise sur la fraction volumique lorsqu'elle est calculée sans prendre en compte la décroissance temporelle de température (figure issue de Crosland et al. [203]).

Les différentes étapes d'acquisition, d'étalonnage ainsi que le post-traitement des données seront détaillées dans les sections suivantes avant d'exposer les résultats de l'étude. Nous illustrerons les développements liés à cette technique d'incandescence induite par laser avec des mesures réalisées sur le point de fonctionnement 1 et sur la partie basse de la flamme, c'est-à-dire pour un HAB allant de 0 à 50 mm et un r entre -25 et 25 mm.

4.2.2 Etalonnage

Comme précédemment détaillé dans le Chapitre 3, afin de mettre en œuvre la LII autocompensée, on dispose deux caméras en vis-à-vis sur lesquelles des filtres optiques sont installées pour isoler deux intervalles spectraux distincts. La caméra 1 collecte la lumière dans l'intervalle [618 - 646 nm] tandis que la caméra 2 est centrée sur l'intervalle [350 - 400 nm]. Ces caméras, munies de leur filtres optiques respectifs ont été étalonnées en intensité avec une sphère intégrante (dont la luminance de sortie est connue). Le plan de sortie de la sphère coïncide avec le plan laser. Cependant, puisque la section de la sortie de la sphère ne

couvre pas l'ensemble du champ couvert par les caméras, on enregistre quatre images à des positions différentes de la sphère que l'on ré-assemble ensuite. Un exemple d'image ré-assemblée est présenté sur les Figure 49 (a) et (b). On observe une légère dissymétrie gauche-droite en termes d'intensité qui confirme qu'un étalonnage sur tout le capteur est fortement conseillé. Un filtre Gaussien d'écart-type 5 pixels est appliqué aux images d'étalonnage des deux caméras afin de réduire le bruit introduit dans les calculs impliquants celles-ci. Dans le même temps, et afin de compléter la caractérisation du système de détection, nous nous sommes intéressés à la réponse des caméras en fonction du gain de l'intensificateur et en fonction de la durée d'ouverture. Le fabricant des caméras garantit une linéarité de la réponse de la caméra pour un gain d'intensificateur et une durée d'ouverture fixés. En revanche, il est légitime de se demander si, à éclairage identique, la réponse de la caméra évolue linéairement selon les consignes de gain et de durée d'ouverture imposés. Nous avons utilisé la sphère intégrante pour vérifier cela et les résultats sont reportés sur la Figure 47. On se rend compte que la réponse des caméras en fonction de ces deux paramètres est affine mais avec une pente différente de 1. On observe également sur le graphique du bas que les caméras répondent différemment selon la longueur d'onde du rayonnement incident. Il est possible, en utilisant les équations des régressions affines affichées sur les graphiques, d'accéder à la réponse théorique de la caméra pour un gain et un temps d'ouverture quelconque. On préférera cependant étalonner le système de détection pour les durées d'ouverture et gains exacts utilisés lors des mesures afin de réduire les erreurs liées aux différentes régressions.

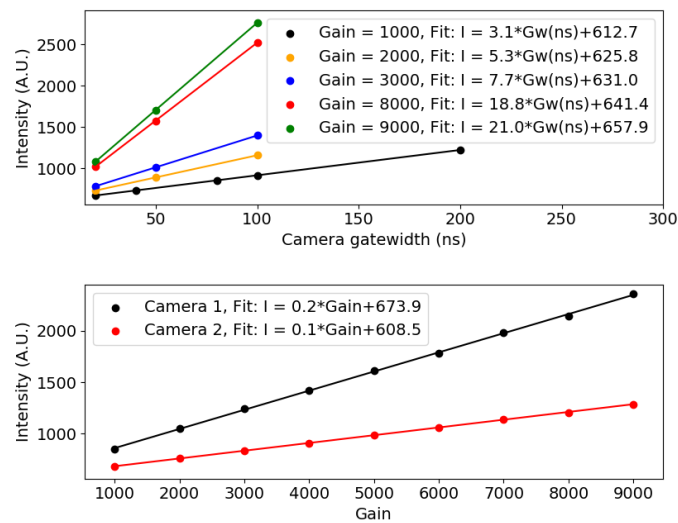


Figure 47 : Haut : Réponse I de la caméra 1 en fonction de la largeur temporelle de l'ouverture (abrégée Gw) pour plusieurs gains et régression affine associée. Bas : Réponse des caméras en fonction du gain de l'intensificateur.

4.2.3 Acquisition et post-traitement des images pour les mesures de f_v

L'un des paramètres expérimentaux à fixer en LII est la densité d'énergie (J/m^2) du laser au volume de mesure. Comme évoqué dans le Chapitre 2, une densité d'énergie trop élevée aura pour effet de sublimer une partie de la matière solide qui compose les suies, ce qui réduira leur contribution au signal d'incandescence. Pour aborder ce problème, il convient de produire une courbe de densité d'énergie. Celle-ci est calculée avec

la mesure de la surface de la nappe (Figure 39) et l'énergie contenue dans celle-ci (mesurée par un puissancemètre). La courbe de densité d'énergie, visible sur la Figure 48 (a), présente une allure classique pour une nappe de type « top-hat » avec une partie linéaire jusqu'à 200 mJ/cm^2 puis un plateau atteint autour de cette 300 mJ/cm^2 avec une zone de transition entre ces deux valeurs.

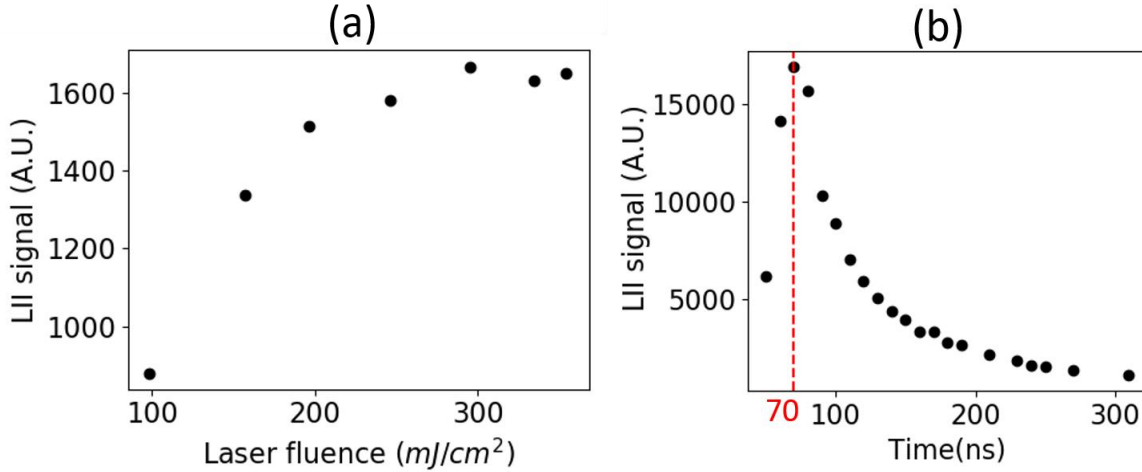


Figure 48 : (a) Signal d'incandescence mesuré en fonction de la fluence du laser. (b) Intensité du signal d'incandescence en fonction du délai entre la consigne Qswitch du laser et la consigne d'ouverture de la caméra (70 ns correspond au maximum de l'impulsion laser).

Dans le cadre de l'étude des flammes produites par le brûleur SIRIUS, nous avons opté pour une densité d'énergie de 315 mJ/cm^2 afin d'optimiser le rapport signal-à-bruit. Cette densité d'énergie provoque certainement de la sublimation des suies mais cette valeur a été choisie afin d'obtenir un signal de mesure exploitable. Comme indiqué plus haut, une porte temporelle de 100 ns et démarrante au maximum de l'impulsion laser a été sélectionnée pour les mesures de fraction volumique sur les images instantanées. La Figure 48 (b) présente la variation du signal d'incandescence enregistrée sur le point de fonctionnement 1 et dans une zone où la production de suie est stationnaire. Les mesures sont réalisées en décalant graduellement le délai entre l'ordre d'ouverture de la cellule de Pockels du laser et le déclenchement de la porte de la caméra. La durée de la porte est réduite à 30 ns pour cette expérience afin d'améliorer la résolution temporelle tout en conservant un rapport signal-à-bruit exploitable sur des images moyennes. Cette expérience permet d'identifier le délai entre la cellule de Pockels et le maximum du signal de LII que l'on notera $t_d = 0$ dans la suite du manuscrit.

Le post-traitement des images de LII est basé sur l'exploitation des équations détaillées dans la section 2.5.4.2.2 et la procédure complète est indiquée sur la Figure 49. Les signaux bruts S_{ref} associés à la sphère intégrante et collectés dans les deux intervalles spectraux sont présentés sur les images (a) et (b). Les signaux instantanés bruts de LII pour le point de fonctionnement 1 (partie basse de la flamme) correspondent aux images (c) et (d). Ces deux paires d'images ainsi que la luminance L_{ref} de la sphère intégrante mesurée par le spectromètre étalon pour les longueurs d'onde associées permettent de calculer la luminance des suies L_s pour les deux domaines de longueur d'onde grâce à la relation suivante :

$$L_s = L_{ref} \frac{S_{LII}}{S_{ref}} \quad (85)$$

Les champs de L_s obtenus pour chaque gamme spectrale sont présentés sur les images (e) et (f). La température d'incandescence effective des particules $T_{s,eff}$ déduite des deux images (i.e. pyrométrie à deux couleurs) est présentée sur l'image (g). Enfin, la distribution spatiale de fraction volumique de suies est indiquée sur l'image (h). Globalement, on note que les signaux bruts d'incandescence sont sujets à un bruit de mesure imputable en grande partie aux faibles concentrations de suie dans la flamme. Notons également que le matériel de mesure utilisé peut également être en partie responsable de ce bruit. En effet, les caméras utilisées sont équipées d'intensificateurs de lumière ayant des rendements quantiques élevés dans l'UV et le proche-UV et qui diminuent dans la fin du domaine spectral visible, notamment dans l'intervalle [618 - 646 nm]. Le signal d'incandescence est également plus faible pour les courtes longueurs d'onde (cf. loi de Planck) donc dans l'intervalle [350 - 400 nm] utilisé dans cette expérience. On note cependant un meilleur rapport signal-à-bruit pour cet intervalle spectral grâce au rôle joué par l'intensificateur. Le filtrage spectral a été sélectionné afin de maximiser l'écart entre les deux intervalles de mesure tout en restant à l'intérieur des gammes spectrales des caméras. En effet, Liu et al. [234] ont mis en évidence le fait que des intervalles spectraux trop proches pouvaient provoquer une erreur non-négligeable sur les mesures des températures d'incandescence et des fractions volumiques. Ils ont alors recommandé d'utiliser des longueurs d'onde les plus distantes possible. L'utilisation de caméras adaptées à la détection de signaux dans le rouge serait alors un choix judicieux pour de futures expériences de manière à décaler les deux intervalles de longueur d'onde vers de plus grandes longueurs d'onde où le rayonnement des suies est plus élevé. Sur la Figure 50, on observe sur des profils de fraction volumique centrés sur l'axe de la flamme que les valeurs calculées sont équivalentes quel que soit l'intervalle spectral utilisé pour la détermination de f_v ([618 - 646 nm] ou [350 - 400 nm]). Comme évoqué précédemment, un bruit de mesure plus important est associé à la fraction volumique de suies calculée dans l'intervalle centré dans le visible. En conséquence, nous présenterons uniquement par la suite des champs de f_v calculés avec le signal UV.

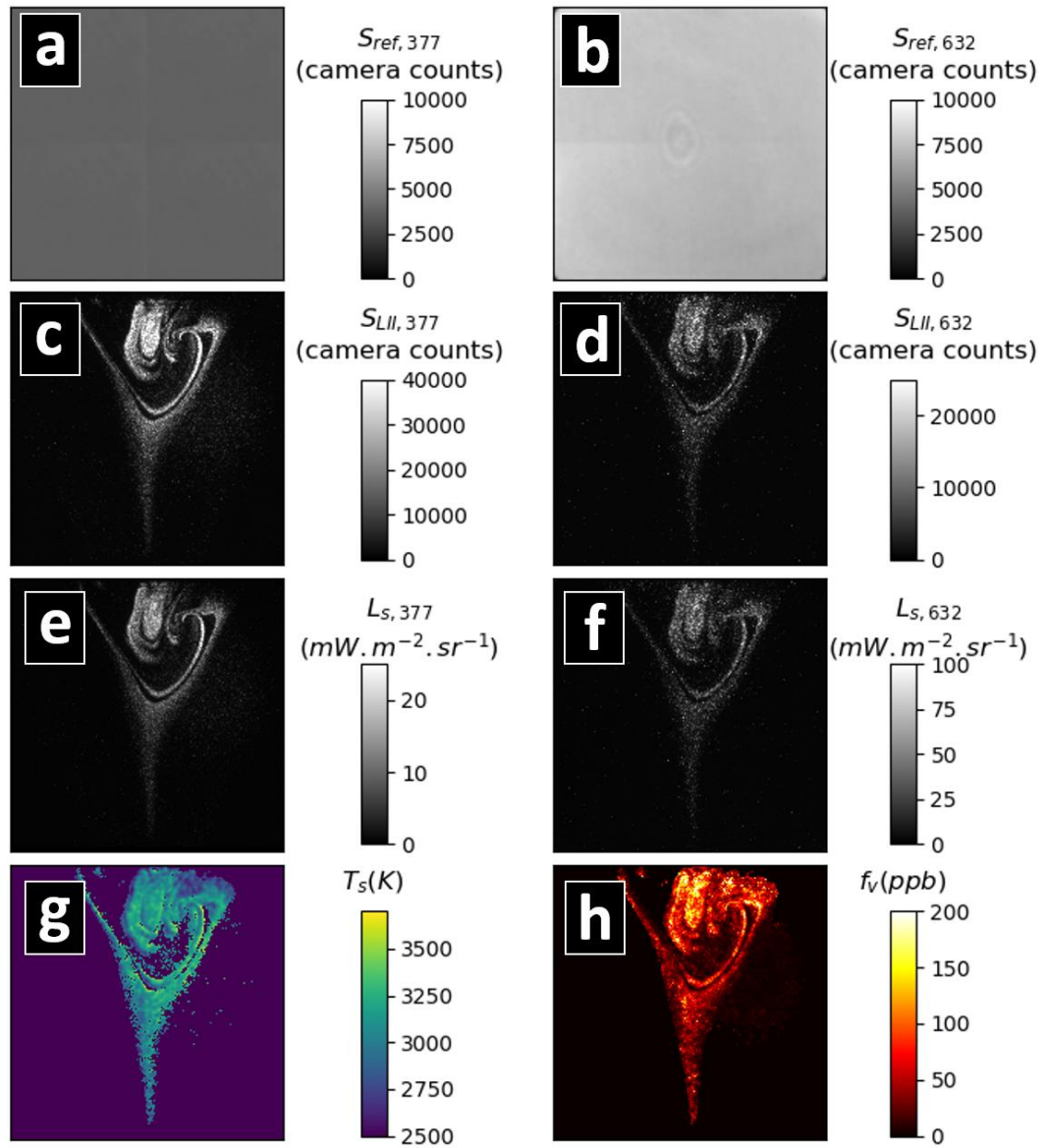


Figure 49 : Post-traitement complet des images pour les mesures de LII autocompensée. (a) et (b) : Images brutes de la sphère intégrante. (c) et (d) : Images brutes de LII. (e) et (f) : Luminance des particules de suie. (g) : Température d'incandescence des particules de suie. (h): Fraction volumique de suies.

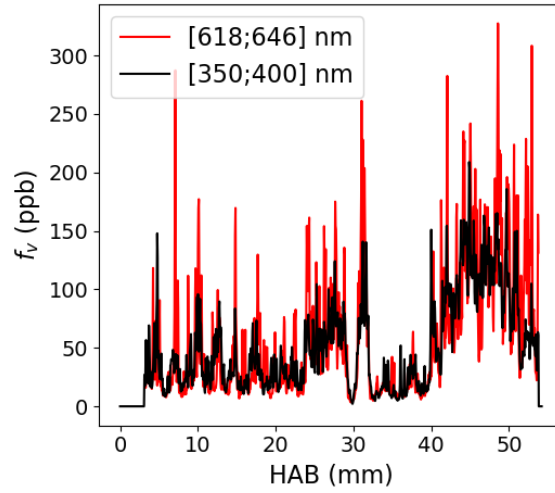


Figure 50 : Comparaison des profils de fraction volumique de suies en fonction de la hauteur au-dessus du brûleur pour $r = 0$ et pour l'image instantanée présentée sur la Figure 49.

Ce bruit dit quantique (« shot noise » en anglais) a été identifié comme l'une des principales sources d'incertitudes pour l'application de la LII autocompensée [203] et spécialement lorsque les signaux de mesure sont de faibles intensités. Sur les champs de $T_{s,eff}$ et de $f_{v,NC}$ présentés jusqu'ici et, afin de réduire l'impact du bruit dans les calculs, un filtre Gaussien d'écart-type égal à 5 pixels a été appliqué aux deux images brutes de LII lors du calcul de la température. Une fois la température déterminée, les images brutes non filtrées ont ensuite été utilisées pour le calcul de f_v . Afin de définir la meilleure stratégie de filtrage numérique, plusieurs combinaisons de filtres ont été testées lors de la détermination de $T_{s,eff}$ et de f_v : aucun filtrage, filtre Gaussien sur les images d'entrées uniquement pour le calcul de T_s , filtre Gaussien pour le calcul de $T_{s,eff}$ et de f_v , filtre médian seulement pour le calcul de T_s et enfin filtre médian seulement pour le calcul de $T_{s,eff}$ et de f_v . Les résultats obtenus avec ces combinaisons de filtres sont reportées sur des mesures réalisées sur un même profil axial instantané (Figure 51). On observe de grandes variations de sur de faibles distances (1 à 2 pixels de large), typiques du bruit quantique. Ce bruit est d'autant plus important qu'il est amplifié lors du calcul de $T_{s,eff}$ par les rapports de signaux de mesure. Le critère de sélection du filtrage a donc été de supprimer le bruit haute fréquence tout en conservant les variations plus lentes et en réduisant au maximum les étapes de filtrage favorisant la perte d'information. Concernant la température d'incandescence (Figure 51 (a)), on note que le filtre Gaussien appliqué aux images de LII donne des profils de température lissés. De plus, ce filtre permet la conservation du profil filtré ce qui n'est pas le cas du filtre médian. Les résultats sans filtrage montrent des variations très importantes de température sur 1 ou 2 pixels (1000 – 1500 K) qu'on peut assurément attribuer au bruit quantique. On observe également que le bruit visible sur les températures se répercute de manière non-linéaire (terme exponentiel) sur les profils de fraction volumique. Les résultats obtenus avec le filtrage médian présentent, là aussi, des variations plus importantes que celles obtenues avec le filtre Gaussien. En utilisant la température provenant des images brutes traitées avec un filtre Gaussien, on observe en revanche peu de différences entre les fractions volumiques de suie calculées avec l'image brute ou avec l'image brute filtrée. Pour cette raison, il a été décidé de ne pas appliquer de filtrage aux images brutes pour le calcul de f_v .

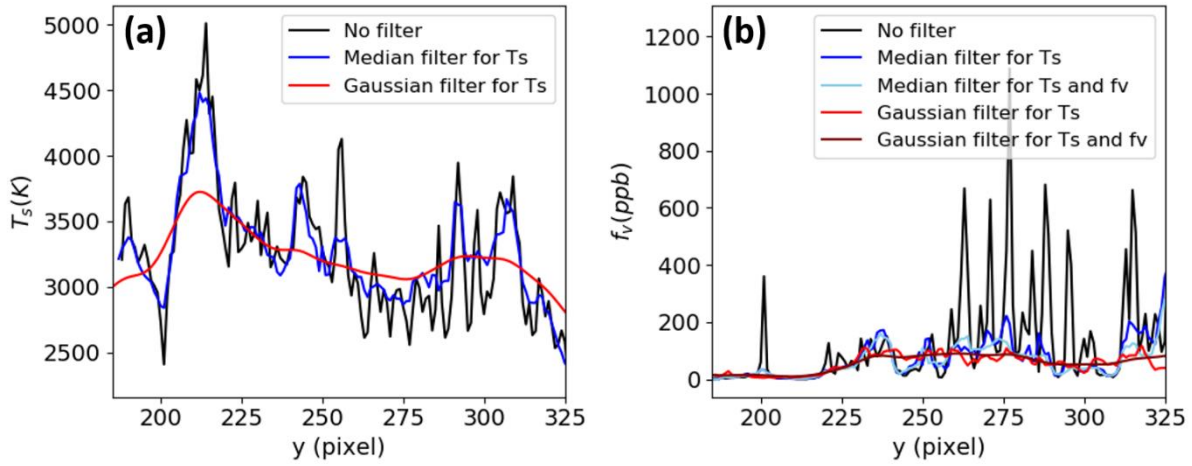


Figure 51 : (a) Profils axiaux ($r = 0$) de température d'incandescence obtenu par différents filtrages numériques appliqués aux signaux bruts enregistrés à un instant donné. (b) Profils axiaux ($r = 0$) de fraction volumique pour différents filtrages numériques appliqués aux signaux bruts enregistrés au même instant.

4.2.4 Acquisition et post-traitement des images pour les mesures de D_p

4.2.4.1 Description de la méthode

Comme expliqué dans le Chapitre 2, la décroissance temporelle de la température d'incandescence peut, avec utilisation d'un modèle, être interprétée en termes de diamètre de particule primaire. Les deux caméras emICCD utilisées n'ont cependant pas des fréquences d'acquisition suffisamment élevées pour enregistrer la décroissance du signal de LII sur une seule impulsion laser. En effet, le temps caractéristique de la décroissance du signal d'incandescence est de l'ordre de la centaine de nanosecondes alors que les caméras ne permettent d'atteindre que 3,33 Hz dans le cas d'acquisition sur toute la surface sensible. Il est possible de décaler légèrement la porte d'ouverture d'une caméra par rapport à l'autre puis, à l'aide du rapport entre les deux images enregistrées, d'obtenir le diamètre des particules primaires [235]. Cette technique souffre cependant de grandes incertitudes pour des diamètres inférieurs à 15 nm. Puisque nous nous attendons à des diamètres de cet ordre de grandeur, cette option n'a pas été sélectionnée. Une autre méthode appelée balayage de porte (ou « gate sweeping » en anglais) a été retenue. Elle consiste à décaler progressivement le délai t_d entre le maximum du signal de LII et l'ordre d'ouverture des caméras. Les signaux LII à chaque t_d sont ensuite moyennés sur un nombre d'évènements donnés et la décroissance moyenne du signal peut ainsi être reconstituée. On obtient ainsi, pour chaque délai, une image moyenne de la température des particules de suie. Comme ceci est fait pour les deux prises de vues avec deux longueurs d'onde de collection, on peut également calculer, pour chaque pixel et chaque évènement, une température. Ainsi, en décalant la porte temporelle, on peut reconstituer la décroissance thermique effective associée (Figure 52 (a)). Cependant, du fait de l'intermittence de la flamme, il convient, pour chaque pixel, de conditionner ce calcul de température aux évènements où des particules de suies sont présentes dans la zone analysée (température effective moyenne conditionnée $\tilde{T}_{s,eff}$). Comme discuté plus haut, cette température est d'autant plus faible que la durée d'intégration des caméras est élevée. Dans le cas de la Figure 52 (a), les températures effectives sont associées à une durée de porte Δt_d de 30 ns. On observe sur cette figure une décroissance progressive et globale des niveaux de température en fonction du temps. Cette décroissance est présentée sur la Figure 52 (b) pour une position donnée dans la flamme. Les courbes continues

proviennent du modèle numérique de décroissance dont le fonctionnement sera détaillé dans la section 2.5.4.2.2.

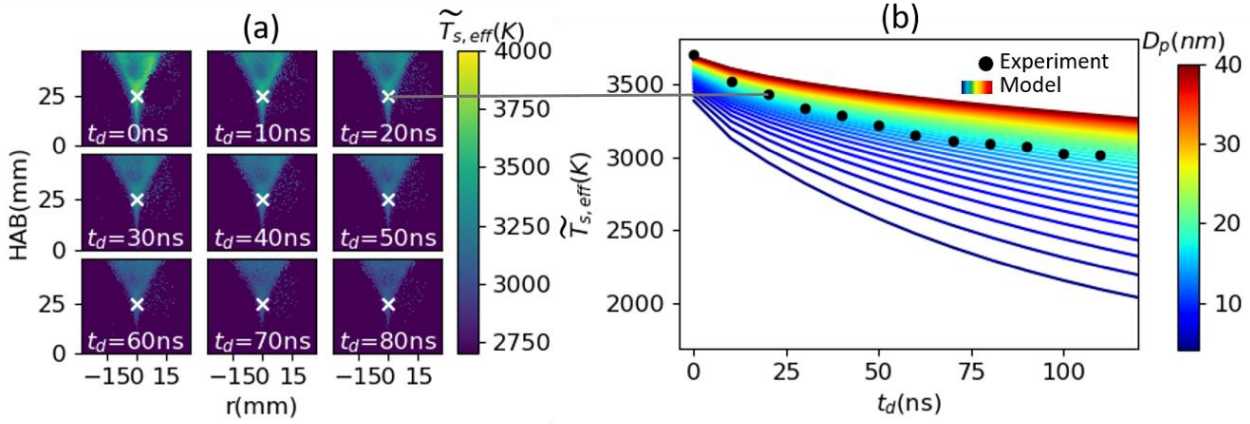


Figure 52 : (a) Evolution du champ de température effective moyen conditionné (pour une durée d'ouverture de 30 ns) pour différents délais temporels. (b) : Exemple de comparaison entre la décroissance temporelle de la température effective expérimentale (position de la croix blanche sur (a)) et le modèle numérique (courbes colorées pour $T_{peak} = 3850$ K) pour une gamme de D_p allant de 5 à 40 nm.

Avant de comparer les résultats obtenus avec le modèle et l'expérience, il est important de se demander si, en l'état, nous comparons le même type de données. En effet, les températures expérimentales sont des températures effectives reposant sur une acquisition du signal LII sur 30 ns tandis que les températures provenant du modèle sont des températures instantanées. Il convient donc de transformer ces températures modélisées en températures effectives. La conversion est illustrée par la Figure 53.

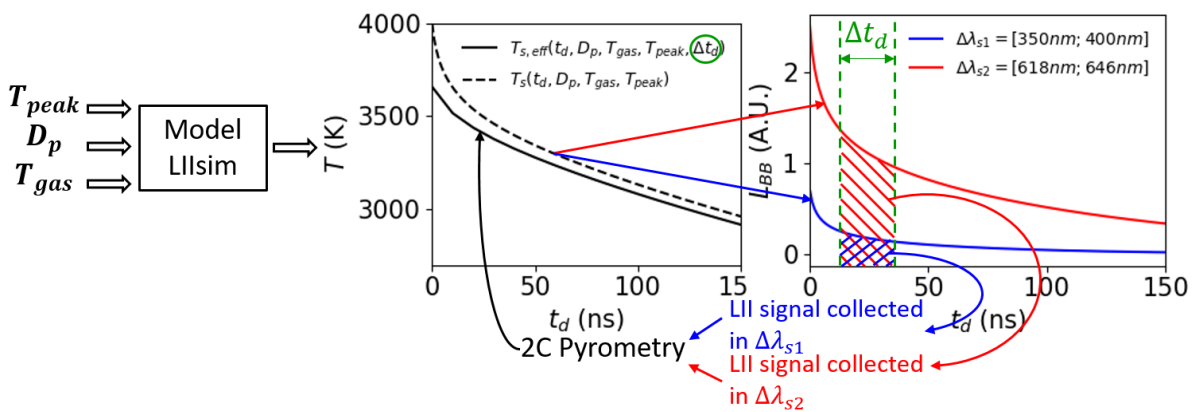


Figure 53 : Evaluation de la température effective (ligne pleine noire) basée sur le signal LII intégré sur la durée d'ouverture Δt_d grâce à la pyrométrie à deux couleurs (équation (75)) et comparée à la courbe de température instantanée (courbe pointillée). Les paramètres utilisés pour cet exemple sont : $D_p = 15$ nm, $T_{gas} = 1550$ K, $T_{peak} = 4000$ K et $\Delta t_d = 30$ ns.

Le modèle LII permet d'obtenir la courbe de décroissance en pointillés noirs. Les luminances de corps noir correspondantes à cette température sont ensuite calculées en utilisant la loi de Wien intégrée sur les intervalles de longueurs d'onde retenus. On procède ensuite à l'intégration temporelle de ces luminances sur Δt_d qu'on multiplie par l'émissivité afin de reconstruire un signal émis par les particules de suie. La température effective calculée pour les particules de suie peut être déterminée de façon analogue à partir du modèle LII à l'aide de la relation suivante :

$$T_{s,eff}^{model}(t_d, \Delta t_d) = C_2 \left(\frac{1}{\lambda_{s1}} - \frac{1}{\lambda_{s2}} \right) \left[\ln \left(\frac{\lambda_{s2}^5 \int_{t_d}^{t_d+\Delta t_d} L_{BB}(t_d, \lambda_{s2}) dt_d}{\lambda_{s1}^5 \int_{t_d}^{t_d+\Delta t_d} L_{BB}(t_d, \lambda_{s1}) dt_d} \right) \right]^{-1} \quad (86)$$

On note que, le modèle LII pilotant la température du corps noir, l'émissivité n'intervient pas dans ce calcul. Le diamètre des sphérules primaires est l'un des paramètres pilotant la décroissance de la température d'incandescence et donc du signal LII. Le principe de détermination de ce paramètre consiste à ajuster le modèle de température effective $T_{s,eff}^{model}$ sur la mesure de $\tilde{T}_{s,eff}$. Ceci est réalisé pour chaque pixel de l'image par une méthode de moindres carrés. Les modélisations sont effectuées avec un logiciel libre appelé LIIsim [186] permettant de calculer des signaux temporels de LII selon trois principaux paramètres physiques : la température maximale T_{peak} ($t_d = 0$ ns), la température du gaz environnant T_{gaz} et le paramètre qui nous intéresse : la taille des particules D_p . Le modèle de Liu et al. [180, 187], décrit dans la section 2.5.4.2.2, est utilisé ici. Une bibliothèque de décroissances temporelles a été calculée pour différents domaines de variation des paramètres suivants :

- D_p allant de 5 à 40 nm avec un pas de 1 nm.
- $T_{peak} = \left[\begin{array}{l} 3400, 3450, 3500, 3550, 3600, 3650, 3700, \\ 3750, 3800, 3950, 4000, 4100, 4200, 4300 \text{ K} \end{array} \right]$
- $T_{gaz} = [1450, 1550, 1650, 1750, 1800 \text{ K}]$

Ces gammes de variation ont été définies et affinées de manière à couvrir toutes les conditions expérimentales rencontrées dans les flammes étudiées. La procédure d'ajustement des courbes est réalisée en recherchant D_p et T_{peak} . La température de gaz T_{gaz} est, quant à elle, considérée uniforme et égale à 1550 K. L'impact de cette hypothèse sera étudié dans la section 4.2.5.2.

Le développement présenté dans ce chapitre est effectué sur le point de fonctionnement 1 tout en considérant une température de gaz uniforme égale à 1550 K. L'effet de cette hypothèse est étudié dans la section 4.2.5.2. L'erreur commise sur le diamètre D_p obtenu si on ne prend pas la largeur de la porte temporelle en compte sera abordée dans la section 4.2.5.1. Hormis dans cette section, tous les D_p sont déterminés avec des comparaisons de température effective. C'est pour cette raison que, sur la Figure 52 (b), les courbes calculées par le modèle ne débutent pas au T_{peak} instantané utilisé comme paramètre d'entrée (3850 K). Toutes les décroissances simulées sont comparées à la décroissance expérimentale pour chaque pixel des images LII avec une méthode de minimisation par moindres carrés.

4.2.4.2 Intermittence et moyenne conditionnée

Comme déjà évoqué, la production de suie en flamme turbulente est un phénomène intermittent. Cela signifie qu'à une position donnée dans la flamme, certaines mesures instantanées ne montreront pas de signal d'incandescence de particules de suie. Lorsque la moyenne des images instantanées est calculée, il peut être intéressant de tenir compte de cette intermittence. Pour les fractions de volume de suie, une absence de signal d'incandescence signifie une concentration en suie en dessous du seuil de détectabilité et une fraction volumique égale à zéro peut donc être supposée. En revanche, pour les températures

d'incandescence, l'absence de signal n'indique pas une température nulle mais plutôt une impossibilité de mesurer la température en cette position. Il est donc important de prendre en compte cet effet lors du calcul de la moyenne de la température surtout lorsqu'on veut obtenir des données quantitatives sur la température des suies comme dans le cadre de la mesure de D_p . Pour ce faire, un seuil de signal brut d'incandescence en dessous duquel on ne tient pas compte de la mesure dans la moyenne conditionnée est à définir. L'expression de la température moyenne conditionnée pour une température effective sur N mesures instantanées est alors donnée par (l'accent tilde est utilisé pour toutes les moyennes conditionnées) :

$$\tilde{T}_{s,eff} = \frac{\sum_{i=0}^N T_{s,eff,i} \delta_i}{\sum_{i=0}^N \delta_i} \quad (87)$$

$\delta_i = 1$ si le signal brut de l'instantané i est supérieur au seuil et $\delta_i = 0$ dans le cas contraire. L'effet du choix du seuil sur la mesure de D_p sera étudié dans la section 4.2.5.2. On définira aussi l'indice d'intermittence Ω comme la probabilité de l'événement « aucune suie dans le volume de mesure » :

$$\Omega = 1 - \frac{\sum_{i=0}^N \delta_i}{N} \quad (88)$$

Ω est égal à 1 lorsque aucune particule de suie n'est détectée et égal à 0 lorsque les particules de suie sont présentes.

4.2.4.3 Impact de l'instationnarité du milieu sur la mesure

La technique de balayage de porte est souvent appliquée en flamme stationnaire puisque, à une position donnée, la taille, les propriétés physico-chimiques et la température des suies varient peu à densité d'énergie laser et Δt_d fixés [236]. Les variations tir-à-tir de ces paramètres peuvent cependant poser des problèmes dans un milieu instationnaire. A cause de la non-linéarité de l'intensité du signal LII par rapport aux paramètres précédemment cités, le diamètre D_p moyen réel peut-être différent du D_p provenant de la moyenne des signaux de LII. Ce problème a été notamment soulevé par Chen et al. [181], mais aucune étude se penchant sur le sujet n'est reportée dans la littérature scientifique. Il a donc été décidé de l'étudier afin d'évaluer son impact sur nos mesures. Pour ce faire, une comparaison du D_p obtenu par notre méthode (moyenne des signaux) au D_p moyen calculé sur 10000 décroissances instantanées est réalisée. Afin de simuler les variations observables en flamme turbulente, une dispersion Gaussienne a été utilisée pour calculer les paramètres T_{peak} , T_{gaz} et D_p . Un exemple de distributions est présenté sur la Figure 54 (a, b et c) et les décroissances correspondantes sont tracées en noir sur la Figure 54 (d). Ces 10000 décroissances instantanées sont ensuite moyennées (courbe rouge) afin de reproduire le signal expérimental.

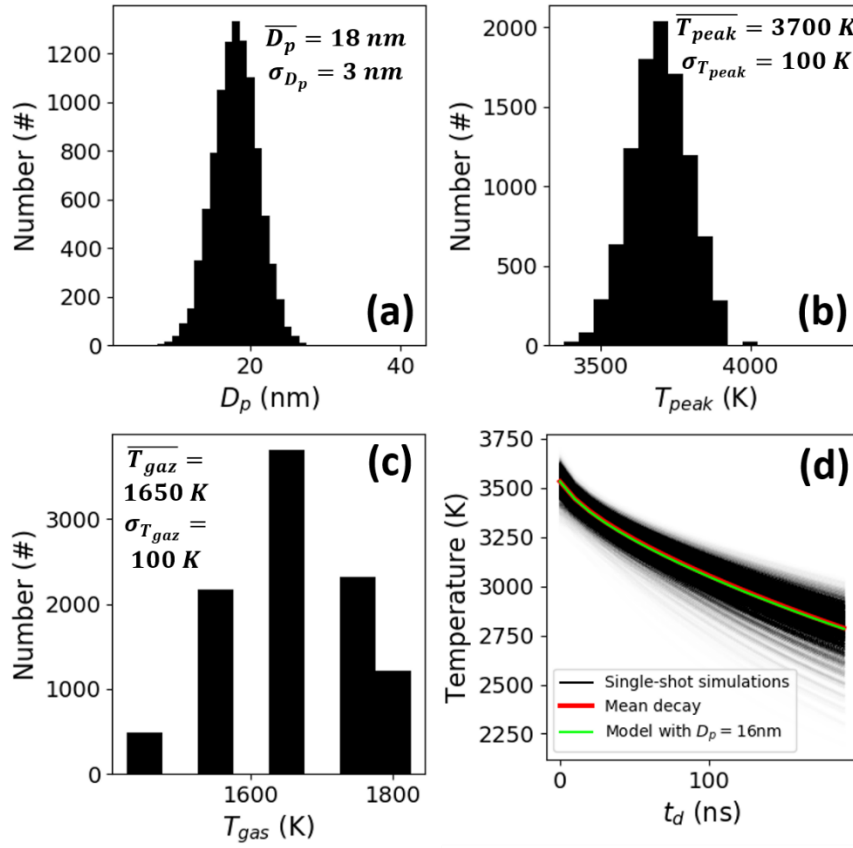


Figure 54 : (a): Distribution en D_p avec $\overline{D_p} = 18 \text{ nm}$ et $\sigma_{D_p} = 3 \text{ nm}$. (b): Distribution en T_{peak} avec $\overline{T_{peak}} = 3700 \text{ K}$ et $\sigma_{T_{peak}} = 100 \text{ K}$. (c): Distribution en T_{gas} avec $\overline{T_{gas}} = 1650 \text{ K}$ et $\sigma_{T_{gas}} = 100 \text{ K}$.

On effectue ensuite une analyse de cette courbe de façon similaire à ce qui a été réalisé pour les données expérimentales (voir section 4.2.4.1). La différence entre le mode $\overline{D_p}$ de la distribution en diamètre et le D_p de la courbe verte est ensuite traitée. On observe une erreur de 2 nm pour le cas représenté sur la Figure 54. Il est estimé que ce cas est représentatif des variations que l'on peut retrouver dans la flamme en se basant sur les variations temporelles observées sur T_{peak} et sur T_{gas} et sur les variations spatiales de D_p dans l'intégralité de la flamme (voir Figure 55). Néanmoins, la même opération a été répétée pour une gamme étendue de paramètres des distributions en D_p , T_{peak} et T_{gas} afin de détecter si certaines combinaisons de paramètres induisent des erreurs plus importantes. Les valeurs des paramètres testés sont :

- $\overline{D_p} = [9, 15, 21, 27, 33 \text{ nm}]$
- $\sigma_{D_p} = [1, 2, 3, 4 \text{ nm}]$
- $\overline{T_{peak}} = [3600, 3700, 3800, 4000 \text{ K}]$
- $\sigma_{T_{peak}} = [50, 100 \text{ K}]$
- $\overline{T_{gas}} = [1550, 1650, 1750, 1850 \text{ K}]$
- $\sigma_{T_{gas}} = [50, 100 \text{ K}]$

L'erreur maximale calculée sur les 1280 configurations possibles que couvrent ces intervalles est alors de 4 nm et l'erreur moyenne est égale à 0,6 nm. Ces calculs permettent de conclure que la méthode proposée est robuste et permet de déterminer le $\overline{D_p}$ de la distribution temporelle avec une faible erreur. En revanche, comme il s'agit d'une modélisation d'un signal LII pour une distribution monodisperse du diamètre des sphérules primaires, on retiendra que les champs de diamètre obtenus représentent un diamètre équivalent

monodisperse qui donne un poids plus important aux particules de grande taille qui se refroidissent moins rapidement que les petites.

4.2.5 Mesure de taille des sphérules primaires des suies par TiRe-LII

Les résultats de D_p obtenus pour la partie basse du point de fonctionnement 1 sont présentés sur la Figure 55. Ces mesures montrent des diamètres compris entre 8 et 20 nm avec une augmentation globale lorsqu'on se rapproche du centre de la flamme. Les décroissances temporelles de températures effectives correspondants à quatre positions ont été ajoutées sur les côtés de la figure. Ces quatre points, nommées (a), (b), (c), (d) ont été choisis de manière à balayer toute la flamme et toute la gamme de D_p mesurée. Les dix courbes simulées représentant le plus fidèlement l'expérience ont été tracées afin d'évaluer l'incertitude liée à la dispersion des températures effectives. Une étude approfondie de cette source d'erreur est proposée dans la section 4.2.5.3. Enfin, l'indice d'intermittence mesuré pour chaque décalage temporel est indiqué. On note que cet indice est retrouvé quasi-constant au cours du temps, ce qui est un indicateur de robustesse quant à la procédure de calcul des moyennes conditionnées dont l'impact sur D_p est évalué dans la section 4.2.5.2.

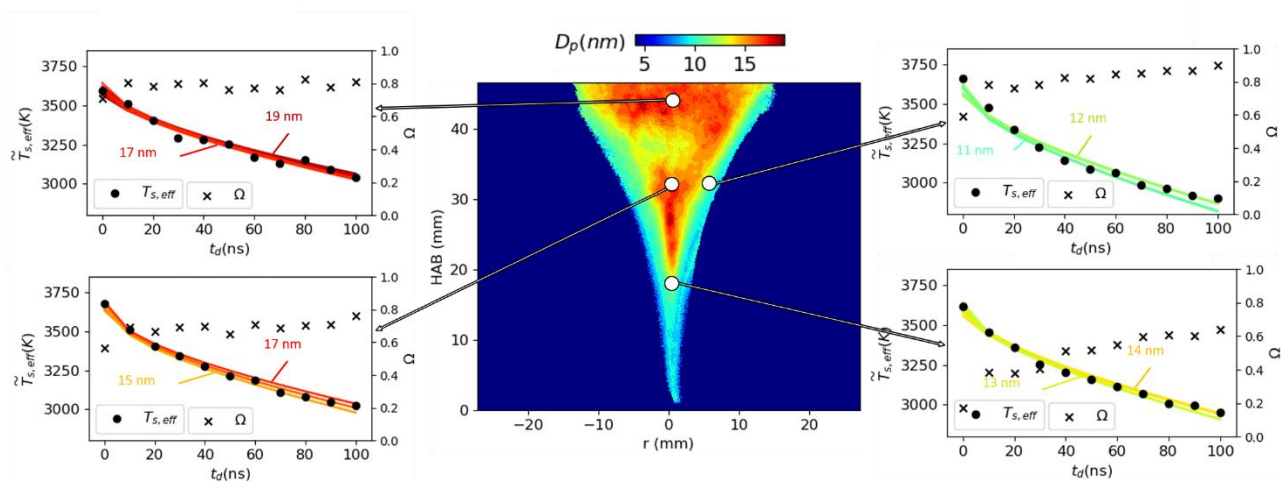


Figure 55: Au centre : Champ 2D de diamètre primaire déterminé par TiRe-LII. Sur les côtés : Mesures expérimentales (points noirs) et modèle numérique (courbes colorées) de décroissances temporelles de températures effectives à quatre positions différentes. Les couleurs des courbes sont associées à la légende de la figure centrale. L'indice d'intermittence est aussi reporté sur ces graphiques (croix noires).

4.2.5.1 Impact de la prise en compte de la largeur temporelle de la porte d'ouverture de la caméra

Afin de quantifier l'impact de la prise en compte de la largeur de la porte temporelle de la caméra sur la détermination de D_p , ce diamètre a été recalculé le long de l'axe central de la flamme à l'aide des décroissances simulées des températures instantanées et non effectives (courbes noires pleines contre pointillés sur la Figure 53). Cette comparaison est présentée sur la Figure 56 avec les courbes noires pleine (durée d'ouverture prise en compte) et pointillés (durée d'ouverture non prise en compte). On remarque que l'absence de prise en compte de la durée d'intégration induit une surestimation de D_p en dessous de 15

nm et une sous-estimation au-dessus de cette valeur. Les différences sont cependant assez mineures avec en moyenne 1 nm et au maximum 2 nm.

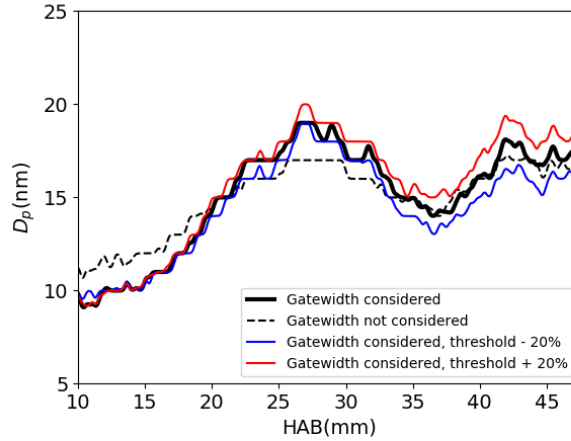


Figure 56 : Profil axial de D_p sans prise en compte de la porte d'ouverture de la caméra (trait pointillé), avec prise en compte de la porte d'ouverture de la caméra (trait noir plein) avec une variation du seuil de calcul des moyennes conditionnées de -20% (trait bleu) et +20% (trait rouge).

4.2.5.2 Sensibilité aux paramètres de post-traitement

La sensibilité de la mesure de D_p aux paramètres de post-traitement que sont la température du gaz environnant ainsi que le seuil utilisé pour calculer les moyennes conditionnées de température effective s'est investiguée ici. Le calcul des moyennes conditionnées, effectué selon l'équation (87), nécessite un seuillage des images de température. Celui-ci est déterminé manuellement pour chaque point de fonctionnement. Il est assez facile pour l'expérimentateur de le fixer car les niveaux de gris dans les zones de suie sont largement supérieurs à ceux du fond des images. Nous avons néanmoins étudié l'impact d'une augmentation et d'une diminution de ce seuil de $\pm 20\%$. Le résultat de cette étude est affiché sur la Figure 56 pour un profil obtenu le long de l'axe central de la flamme. On observe des différences de 1 nm au maximum sur D_p en comparaison de celui obtenu avec le seuillage original. Le deuxième paramètre étudié et qui doit être fixé lors de la comparaison avec la simulation numérique est la température du gaz T_{gaz} dans lequel baigne la particule de suie. L'influence de ce paramètre a déjà été abordée par Will et al. [237] qui ont estimé une erreur sur D_p pouvant aller jusqu'à 30 % pour une erreur sur la température de 10 % avec une méthode de mesure différente de celle qu'on utilise ici et qui consiste à utiliser le rapport entre les intensités recueillies à deux instants de la décroissance. Pour le point de fonctionnement 1, la température de gaz est fixée à 1550 K dans toute la flamme. Des mesures par thermocouple ont cependant montré des températures pouvant s'écarter de plusieurs centaines de degrés de cette valeur (voir section 5.3). Afin de quantifier l'impact d'une telle différence sur la détermination de D_p , nous avons recalculé ce diamètre aux points de mesure de température réalisées par thermocouples placés sur l'axe central du brûleur et en faisant l'hypothèse suivante : $T_{gaz} = T_{thermocouple}$. Les résultats de cette comparaison sont visibles sur la Figure 57. On observe que les températures sur l'axe central varient en réalité entre 1450 et 1720 K, soit près de 300 K d'écart avec la valeur de 1550 K sélectionnée. Dans le bas de la flamme, $T_{thermocouple} < 1550$ K et D_p est légèrement sous-estimé pour $T_{gaz} = 1550$ K. Inversement, D_p est surestimé dans le haut de la flamme là où $T_{thermocouple} > 1550$ K. L'amplitude des erreurs sur le diamètre reste cependant faible (~ 1 -2 nm).

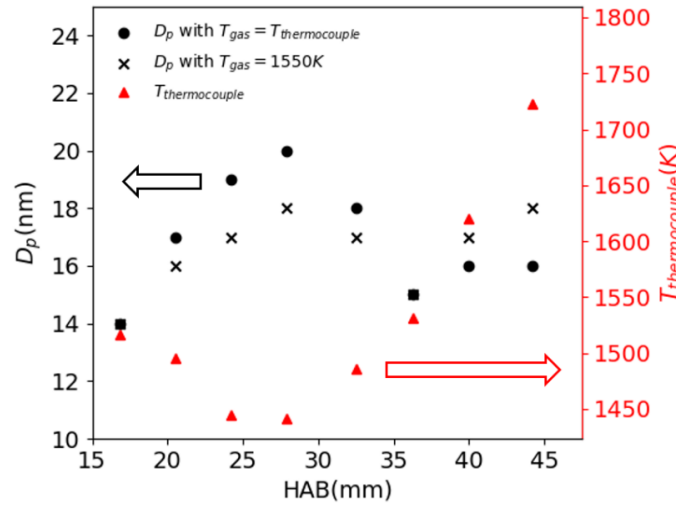


Figure 57 : Effet de la température du gaz sur la détermination de D_p . Les triangles rouges indiquent les températures de gaz mesurées. Les cercles pleins noirs indiquent les D_p calculées avec $T_{gaz} = T_{thermocouple}$. Les croix noires indiquent les D_p calculés avec $T_{gaz} = 1550 K$.

4.2.5.3 Impact de la dispersion des températures effectives mesurées

Après avoir observé le faible effet du paramètre T_{gaz} qui a été imposé lors de l'ajustement du modèle, on peut s'interroger sur l'unicité du couple D_p, T_{peak} obtenu. Pour étudier cela, les décroissances expérimentales pour les positions (a), (b) (c) et (d) représentées sur la Figure 55 ont été encadrées par les dix décroissances numériques les plus proches de celles incluses dans la bibliothèque. On obtient de faibles variations de D_p entre ces dix courbes (i.e. 2 nm au maximum). On reporte dans la Figure 58, pour ces mêmes points, les différences entre les décroissances simulées de la bibliothèque et les décroissances expérimentales calculées lors de la minimisation par moindres carrés pour chaque couple D_p, T_{peak} du modèle. Ces figures permettent de confirmer la convergence de nos comparaisons car un seul groupe de solutions aboutissant à une faible valeur de moindre carré est retrouvé systématiquement en chaque position étudiée dans la flamme. On note également que la valeur minimale de l'erreur n'est jamais située sur une des bornes des paramètres. Cela confirme que les intervalles de paramètres choisis pour réaliser la bibliothèque de décroissance sont suffisamment étendus. Les gammes de solution s'étendent bien plus en termes de température maximale T_{peak} qu'en termes de diamètre. Cette observation est rassurante puisque c'est ce dernier paramètre qu'on essaie de déterminer : la méthode est alors bien plus sensible à D_p qu'à T_{peak} . On estime l'étendue des solutions en D_p à 2 ou 3 nm en moyenne. Le point (a), qui est situé dans une zone où la présence de suie est très intermittente, présente cependant une dispersion de l'erreur plus élevée.

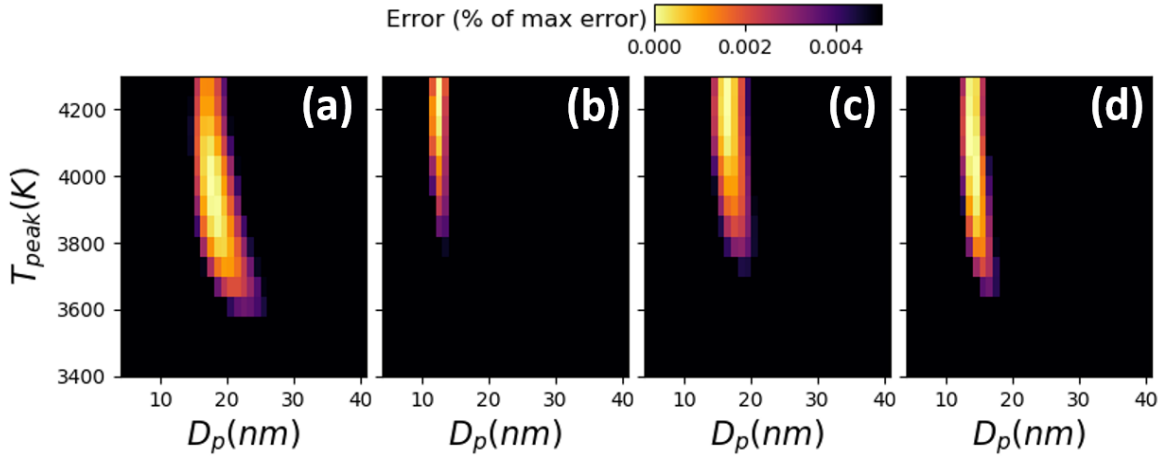


Figure 58 : Différences entre les décroissances de la bibliothèque et les décroissances expérimentales. Les positions (a), (b) (c) et (d) correspondent à celles de la Figure 55.

4.2.5.4 Conclusion sur la mesure de D_p

Les tests et études de sensibilité qui ont été effectuées et répertoriées dans les sections précédentes permettent de s'assurer que la méthode de détermination de D_p proposée est robuste et précise. En effet, cette méthode dite de balayage de porte n'est habituellement pas utilisée en flamme turbulente. On se rend pourtant compte que son utilisation dans ce type de flamme est envisageable et apporte des résultats avec une incertitude correcte estimée à un écart-type de 3 nm. Les interrogations que l'on peut relever dans la littérature scientifique avec ce type de méthode concernent surtout une différence entre le diamètre issu d'un échantillon de signaux instantanés moyennés et le diamètre moyen réel. Nous avons pu voir dans la section 4.2.4.3 que l'erreur produite par l'analyse du signal moyen reste acceptable par rapport aux autres incertitudes de mesure.

4.2.6 Etude de l'impact de la largeur temporelle de la porte de la camera sur f_v

Dans cette section, la fraction volumique de suies calculée avec la prise en compte de la décroissance temporelle de la température (équation (83)) est comparée à la méthode classique où seule la température effective constante est considérée (équation (75)). Les champs de températures effectives instantanées et moyennées sont présentés sur les Figure 59 (a) et (b). Ces champs de température présentent des inhomogénéités spatiales qui reflètent bien l'intérêt de l'utilisation de la LII autocompensée dans ce type de flamme. Le diamètre primaire moyen a été précédemment déterminé et la température du gaz a été imposée. Pour le calcul de la fraction volumique instantanée avec considération de la durée de la porte d'ouverture de la caméra $f_{v,CC}$ (équation (83)), le modèle LII doit être utilisé. On se propose de considérer le D_p moyen précédemment déterminé. On suppose alors qu'en valeur moyennée, lorsque les suies sont présentes en une position donnée, le diamètre des sphérules reste inchangé. Il s'agit d'une hypothèse forte, mais elle permet de considérer un refroidissement thermique local de façon assez représentative puisque la décroissance mesurée est à la base de la détermination de D_p . En revanche, pour chaque mesure instantanée, on recherche la valeur de T_{peak} qui permet de retrouver le signal de la température effective instantanée. Ceci permet de considérer les fluctuations tir-à-tir d'énergie du laser. La procédure utilisée est donc la suivante. On isole tout d'abord dans la bibliothèque de décroissances simulées les courbes dont le D_p

correspond à celui mesuré en TiRe-LII et en considérant une valeur de T_{gaz} correspondante à celle sélectionnée (par exemple dans le cas présent 1550 K pour le point de fonctionnement 1). Parmi ces courbes, on sélectionne celle dont la température effective sur 100 ns (temps d'ouverture utilisé pour les mesures de f_v) est la plus proche de la température effective expérimentale. La luminance de corps noir associée à cette décroissance est ensuite calculée puis intégrée lors du calcul de $f_{v,CC}$ (équation (83)).

Les fractions volumiques instantanées et moyennées calculées avec cette procédure sont présentées sur les Figure 59 (c) et (d). Afin de comparer cette fraction volumique avec celle calculée sans la prise en compte de la décroissance de la température, deux zones d'intérêt (appelées « ROI ») de section carrée de 4 mm de côté sont définies :

- ROI 1 centrée sur HAB = 23 mm et $r = 0$ mm
- ROI 2 centrée sur HAB = 44 mm et $r = 0$ mm

Ces deux zones ont été choisies car elles correspondent à des intermittences différentes : 0,05 pour ROI 1 et 0,62 pour ROI 2. Le Tableau 2 résume les fractions de volume de suie moyennes calculées pour les deux ROIs. Puisque l'ordre de grandeur de l'incertitude sur D_p a été estimé à 3 nm, il est aussi reporté dans ce tableau les valeurs de $f_{v,CC}$ calculées en prenant $D_p + 3$ nm et $D_p - 3$ nm (2^{ème} et 3^{ème} ligne du tableau). Si le refroidissement n'est pas considéré, on observe une sous-estimation des fractions de volume de suie jusqu'à 7 % dans la ROI 1 et 6 % dans la ROI 2. On remarque aussi que l'erreur de ± 3 nm introduite sur D_p se propage à hauteur de plus ou moins 10 % environ. L'impact de cette erreur est plus important dans le bas de la flamme où les diamètres sont plus petits et où un léger changement de D_p provoque une plus grande variation de la décroissance temporelle de température que pour de grands diamètres (voir Figure 52 (b)). L'utilisation de la méthode de correction que l'on propose doit être restreinte aux cas où l'incertitude sur D_p est faible car son impact sur la fraction volumique de suies finale peut être important. De manière générale, l'impact de la décroissance temporelle de la température sur la fraction volumique est évalué ici en moyenne à environ 10 %, ce qui reste faible en comparaison des autres sources d'incertitudes intervenant en LII comme par exemple la méconnaissance l'indice optique des suies.

	ROI 1 ($D_p = 15$ nm, $\Omega = 0,05$)		ROI 2 ($D_p = 17$ nm, $\Omega = 0,62$)	
	Instantané	Moyenne conditionnée	Instantané	Moyenne conditionnée
Refroidissement pris en compte ($f_{v,CC}$)	42 ppb	34 ppb	113 ppb	49 ppb
Refroidissement pris en compte ($D_p + 3$ nm)	37 ppb (- 12 %)	30 ppb (- 12 %)	104 ppb (- 8 %)	44 ppb (- 10 %)
Refroidissement pris en compte ($D_p - 3$ nm)	47 ppb (+ 12 %)	39 ppb (+ 15 %)	127 ppb (+ 12 %)	54 ppb (+ 10 %)
Refroidissement ignoré	39 ppb (-7 %)	34 ppb (0 %)	106 ppb (- 6 %)	46 ppb (- 6 %)

Tableau 2 : Fractions volumiques de suie déterminées avec et sans prise en compte de la décroissance temporelle de la température dans les deux zones d'intérêt ROI 1 et ROI 2.

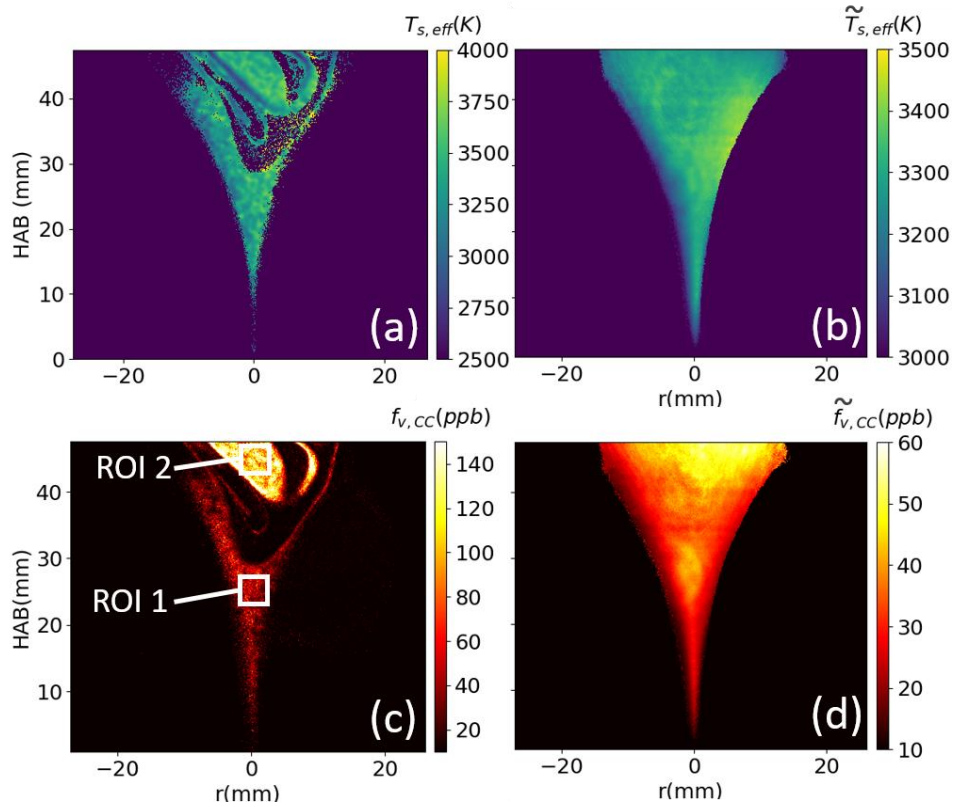


Figure 59 : Températures effectives instantanée (a) et moyenne conditionnée (b) pour une durée d'intégration de 100 ns. Fractions volumiques instantanée (c) et moyenne conditionnée (d) calculées avec la prise en compte de la décroissance de la température.

4.2.7 Conclusion sur les développements de la LII

L'étude réalisée dans ma thèse évalue la possibilité d'appliquer la LII autocompensée en configuration planaire en flamme turbulente. Cette méthode présente l'avantage de fournir des champs instantanés de fraction volumique de suies en prenant en compte les inhomogénéités spatiales de température. L'application en flamme peu suitée nécessite d'étendre la durée d'ouverture des caméras afin d'atteindre un SNR suffisant. Cela soulève la question de la considération de la décroissance temporelle du signal de LII dans l'exploitation des signaux. Une méthode intégrant cette considération est proposée. Elle consiste à déterminer dans un premier temps le diamètre des particules primaires par LII résolue en temps, puis à utiliser cette information comme marqueur de la décroissance temporelle et l'inclure ensuite dans le calcul de la fraction volumique de suies. En comparant cette méthode à la méthode « classique » qui considère une température effective constante, on se rend compte que la différence sur la fraction volumique de suies reste inférieure à 10 %, ce qui est assez faible en comparaison des autres sources d'erreurs pouvant jouer également un rôle sur les résultats final. Nous concluons donc qu'il n'est pas nécessaire d'appliquer un traitement de données aussi détaillé lorsque l'objectif de l'expérience est d'évaluer la fraction volumique de suies avec une précision modérée. En revanche, cela confirme que la LII autocompensée peut être appliquée en flamme turbulente et qu'une porte d'intégration longue (100 ns dans le cas présent) n'a pas un impact significatif sur la mesure. Par ailleurs, cette technique de mesure permet l'évaluation d'un diamètre équivalent monodisperse des sphérules primaires. Les diamètres D_p déterminés ici sont bien sûr sujets aux hypothèses utilisées dans le modèle de décroissance. La valeur du coefficient d'accommodation thermique α_T joue notamment un rôle central dans la quantification de D_p . Puisqu'on analyse seulement la

décroissance temporelle de la température et que l'absorption du laser n'est pas prise en compte dans le modèle, il est possible que la sublimation d'une partie de la matière composant les suies lors de l'interaction avec le laser induise une erreur sur les D_p ainsi déterminés. Ces différentes sources d'incertitudes sont à prendre en compte lors de l'analyse des résultats et une quantification de ces incertitudes représente une poursuite importante à ce travail, notamment dans la perspective d'une comparaison des résultats à ceux obtenus avec d'autres techniques de mesure ou à partir de simulations numériques. La technique apporte néanmoins une information additionnelle très intéressante pour la caractérisation de la production de suie dans une flamme puisqu'elle apporte une description spatiale du diamètre des sphérules avec une résolution non envisageable à partir de prélèvements et d'analyses au microscope électronique. Les fractions volumiques présentées dans le Chapitre 5 sont calculées en ignorant la décroissance de la température car cette dernière modifie faiblement le résultat et que D_p n'a pas pu être mesuré pour tous les points de fonctionnement par manque de signal d'incandescence.

4.3 Diffusion angulaire haute cadence en deux dimensions

4.3.1 Description de la technique

Le contexte et les raisons qui nous ont amené à développer la diffusion angulaire planaire haute cadence en flamme turbulente ont été rappelés dans le Chapitre 2. Le dispositif expérimental est, quant à lui, détaillé dans le Chapitre 3. Pour rappel, on collecte de façon simultanée le signal diffusé par les suies avec trois caméras fonctionnant à haute cadence. L'application de la technique de diffusion en deux dimensions et en flamme turbulente, siège de gradients de signaux élevés, est un défi expérimental et demande plusieurs vérifications afin de s'assurer de la qualité des mesures. La Figure 60 montre la configuration géométrique pour ce type de mesure associé au signal de mesure collecté par un pixel à de la caméra à un angle de diffusion θ_{sca} fixé. Le volume de mesure V_m est défini comme l'intersection entre la flamme, la nappe laser et le volume de collection. Différents éléments relatifs à cette géométrie particulière doivent être abordés. Premièrement, les plans de mise au point des caméras situées à des angles de diffusion différents de 90° ne sont pas parallèles à la nappe laser. Cela peut provoquer des défauts de mise au point sur certaines parties du volume de mesure si la profondeur de champ est inférieure à la largeur du volume de mesure, comme c'est le cas sur la configuration présentée sur la Figure 60. Une solution technique à cette problématique est proposée dans la section 4.3.3. Deuxièmement, les images enregistrées à des angles différents de 90° présentent une distorsion due au fait que la surface de nappe imagée est différente de la surface apparente vue depuis le détecteur. Cette caractéristique nous conduit donc à appliquer une transformation mathématique aux images expérimentales afin de faire correspondre précisément les positions des pixels des trois images. La section 4.3.4 traite de cette étape. Une autre contrainte découlant de la seconde contrainte est que le volume de mesure est de dimensions variables en fonction de l'angle de diffusion utilisé. Nous ferons par suite l'hypothèse que ce dernier évolue en $V_m(\theta) \propto 1/\sin\theta_{sca}$, ce qui correspond à l'approche théorique moyennant la simplification géométrique du volume de mesure. Une validation de l'utilisation de la technique de mesure sur un aérosol servant de référence grâce à une comparaison avec une mesure annexe ex-situ sera finalement discutée.

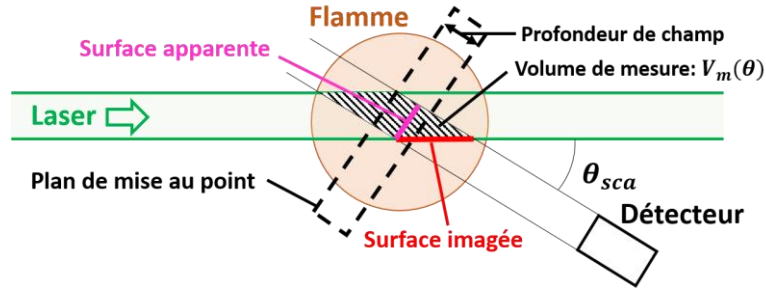


Figure 60 : Configuration géométrique pour la mesure de diffusion pour un pixel et à un angle de diffusion θ_{sca} quelconque.

4.3.2 Procédure d'analyse des données

Les données brutes de mesure consistent en trois images, chacune étant associée à un angle de diffusion qu'on appellera $\theta_{back}(= 137^\circ)$, $\theta_{perp}(= 94^\circ)$ et $\theta_{front}(= 45^\circ)$ et dont les niveaux de gris correspondent à l'intensité du signal de diffusion. Une fois que les images sont corrigées de la distorsion, on obtient trois champs dont les pixels se superposent et que l'on peut additionner ou multiplier. De manière similaire aux méthodes d'analyse présentées dans le Chapitre 2, nous nous servons du rapport de dissymétrie R_{vv} (équation (47)) afin de s'affranchir d'un nombre important de paramètres inhérents à l'expérience et aux particules de suie. Le seul paramètre défini à l'avance est la dimension fractale des agrégats qu'on fixe à 1,77, valeur typique pour des particules de suies résultantes d'une agglomération par diffusion. On peut ensuite choisir, à partir du rapport R_{vv} , de déterminer un rayon de gyration équivalent monodisperse R_g^* ou, en considérant une distribution de taille log-normale et son écart-type géométrique $\sigma_{g,geo}$, le diamètre médian $D_{g,geo}$ grâce à l'expression suivante de R_{vv} pour une population polydisperse:

$$R_{vv}(\theta, \theta_{ref}) = \frac{V_m(\theta) \int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f(q(\theta), R_g) p(D_g, D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) dD_g}{V_m(\theta_{ref}) \int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f(q(\theta_{ref}), R_g) p(D_g, D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) dD_g} \quad (89)$$

θ_{ref} étant un angle (parmi les trois disponibles) considéré comme référence dans cette équation. Cette approche permet une détermination de champs en deux dimensions de taille des agrégats de suie. Puisque cette opération est répétée sur une série d'images enregistrées à haute cadence, on accède donc à un suivi dynamique résolu en temps de la taille des particules. Cette mesure ne nécessite que l'usage de deux des trois angles requis pour l'expérience. Les données enregistrées sur le troisième angle peuvent donc être réutilisées afin d'obtenir des informations supplémentaires. Sans étalonnage absolu en intensité, la mesure avec une caméra permet d'obtenir des variations relatives d'intensité qui, moyennant une hypothèse d'avoir une nappe homogène en intensité, est donnée par la relation suivante :

$$I_{vv} = \underbrace{I_0 N_{agg} D_p^{6-2D_f} k_f^2 \frac{\pi^4}{4} \frac{F(m)}{\lambda^4}}_{\text{Amplitude } A} \underbrace{\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f(q, R_g) p(D_g, D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) dD_g}_{\text{Terme de taille } T} \quad (90)$$

Le terme de droite, appelé terme de taille T , est dépendant de la taille des agrégats. Ce terme peut donc être estimé à partir de l'analyse précédente résultant du rapport de diffusion à deux angles. Le terme de gauche appelé amplitude A est, quant à lui, dépendant de plusieurs paramètres : l'intensité du laser I_0 , la concentration en nombre d'agrégats N_{agg} , la taille des particules primaires D_p , le préfacteur fractal k_f , la longueur d'onde du laser λ et la fonction de diffusion $F(m)$ elle-même dépendante de l'indice optique m . Puisque nous ne disposons pas d'une mesure absolue de I_{vv} , nous proposons donc de déterminer le signal

S_A qui est directement proportionnel à l'amplitude A au facteur d'étalonnage près. S_A est calculé en divisant l'intensité du signal enregistré au troisième angle par le terme de droite ($S_A = I_{vv}/T$). Ce terme est dépendant d'un nombre important de paramètres mais pourra être utilisé conjointement à d'autres techniques où, sous l'hypothèse de la connaissance de certaines valeurs de ces paramètres, il sera possible d'obtenir des informations supplémentaires sur les particules.

Afin de réduire le temps de calcul du traitement des images où il faudrait résoudre numériquement les équations du rapport de dissymétrie pour chaque pixel, les expressions de $D_{g,geo}$, R_g^* et T ont été précalculés en fonction de R_{vv} pour $\theta = \theta_{ref}$ (et $\sigma_{g,geo}$ dans le cas où on considère une distribution polydisperse) fixés. La Figure 61 représente les évolutions de ces relations pour $\theta = \theta_{front}$, $\theta_{ref} = \theta_{back}$ et $\sigma_{g,geo} = 1,6$. Une fonction polynomiale est ajustée sur ces courbes afin d'obtenir une relation directe de conversion de R_{vv} en R_g^* , $D_{g,geo}$ ou T .

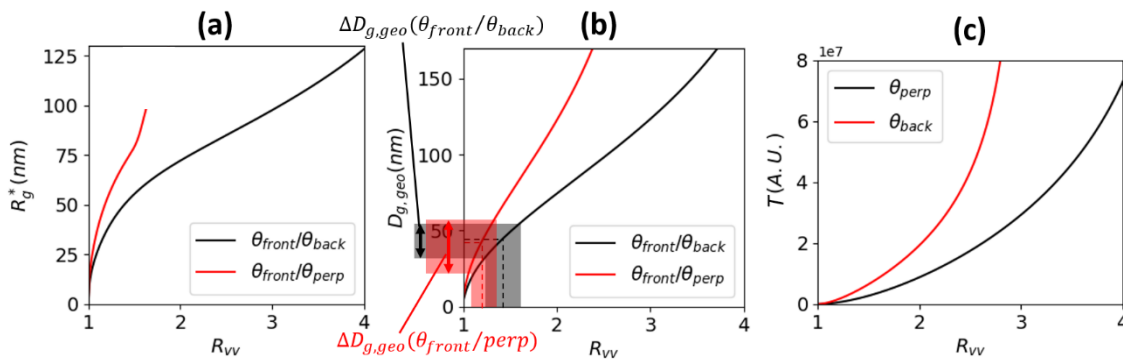


Figure 61 : R_g^* (a) et $D_{g,geo}$ (b) en fonction du rapport entre les intensités diffusées en polarisations verticale-verticale pour $\theta = \theta_{front}$, et $\theta_{ref} = \theta_{back}$ ou $\theta_{ref} = \theta_{perp}$ et $\sigma_{g,geo} = 1,6$. (c) : A pour θ_{perp} ou θ_{back} avec la taille calculée à l'aide des deux autres angles.

4.3.3 Mise au point des caméras

Afin de corriger les défauts de mise au point, des montures Scheimpflug sont installées entre les objectifs et les capteurs des caméras pour les angles θ_{front} et θ_{back} . Ces montures permettent d'inclure un décalage angulaire entre l'axe optique de l'objectif optique et la normale au capteur de la caméra, ce qui crée une rotation du plan de la mise au point et donc une coïncidence avec la nappe laser. Le réglage de l'angle est effectué avec une mire placée de manière que sa surface soit rasante et parallèle à la nappe laser. On ajuste ensuite l'angle du Scheimpflug jusqu'à obtention d'une mise au point sur toute l'image. La même opération est répétée à partir d'images de signaux de diffusion de la nappe laser par des particules de fumée de spectacle dont la taille est suffisamment élevée pour produire des points isolés sur les images enregistrées. Cela permet aussi de parfaire la mise au point à la position exacte de la nappe laser et non à une position voisine approchée comme cela peut être le cas sur une mire de réglage. Toutes ces opérations sont réalisées avec les objectifs optiques totalement ouverts afin d'être dans le cas d'une profondeur de champ faible et donc d'être le plus précis possible.

4.3.4 Correction de la distorsion

La correction de la distorsion est effectuée en deux étapes et à l'aide du logiciel DaVis. La première étape consiste à enregistrer des images d'une mire de réglage dont la distance entre les points est étalonnée et

que l'on place à la position de la nappe laser. Un modèle sténopé (« pinhole » en anglais) est ensuite utilisé afin de replacer la mire dans le repère des caméras. Ce modèle permet de relier la position des points de la mire d'une image enregistrée avec angle avec celles d'une image enregistrée à un autre angle. Des transformations sont ensuite appliquées aux images afin de faire correspondre les pixels. Le résultat est une superposition quasiment parfaite des trois images de mire (voir Figure 62 (a)). Cette étape permet également d'étalonner la résolution spatiale des images qui est de $93 \mu m/pix$ dans notre étude. Le problème avec ce type d'étalonnage est qu'il peut subsister une légère différence entre la position de la mire de réglage et la position réelle de la nappe laser. Même si cette différence est faible, elle peut provoquer un décalage de quelques pixels et on rappelle que l'on doit ici faire correspondre les images au pixel près à cause des gradients de signaux intenses pouvant exister dans la flamme. Afin d'être certain de bien tenir compte du plan de la nappe laser et non de la mire qui peut être légèrement décalée, une deuxième étape d'étalonnage spatial est réalisée. Pour cela, l'analyse de la diffusion de la nappe laser par des particules micrométriques (fumée de spectacle) est effectuée. On obtient des images constituées de points lumineux isolés dont la surface est comprise entre 1 et 10 pixels (Figure 62 (b)). On observe sur ces images qu'il existe de légers décalages de quelques pixels entre les points imagés sur les différentes caméras. Un algorithme de corrélation similaire à ceux utilisés en PIV est appliqué pour quantifier cette différence et définir les coefficients des polynômes utilisés pour transformer ces images. Cette même loi de transformation sera ensuite appliquée aux images de diffusion par les suies. Afin d'illustrer la précision de ce processus à deux étapes, deux régions d'intérêt appelées ROI A et ROI B ont été définies sur les images de diffusion enregistrées sur la fumée de spectacle. Un zoom sur ces ROI est proposé sur la Figure 62 (c). On ne retrouve pas strictement les mêmes images car la forme des groupes de pixels peut varier d'une caméra à l'autre et certains points ne sont pas visibles sur toutes les images. En revanche, les points communs aux trois angles, que l'on peut reconnaître grâce à leur organisation spatiale et aux structures formées, sont retrouvés aux mêmes positions au pixel près. Il est difficile de transposer l'évaluation de cette précision aux images de suie car les signaux sont plus étendus spatialement et leurs intensités dépendent de l'angle (certaines poches ne sont détectées qu'à de petits angles de diffusion pour lesquelles l'intensité de diffusion est plus élevée). Un exemple est néanmoins présenté sur la Figure 62 (d) où les trois images sont seuillées puis codées sur les trois canaux d'une image RGB afin d'illustrer le recalage spatial ($R = \theta_{front}$, $G = \theta_{perp}$, $B = \theta_{back}$). On obtient ainsi une image où les pixels blancs sont communs aux trois caméras. Même si le seuillage des images engendre des poches de suie dont la taille est différente sur les trois images, on peut quand même se rendre compte de la bonne superposition des signaux (pas de poches avec des pixels bleus d'un côté et rouge de l'autre). Pour la suite, les pixels qui ne sont pas représentés en blanc sur cette image seront rejetés de l'analyse.

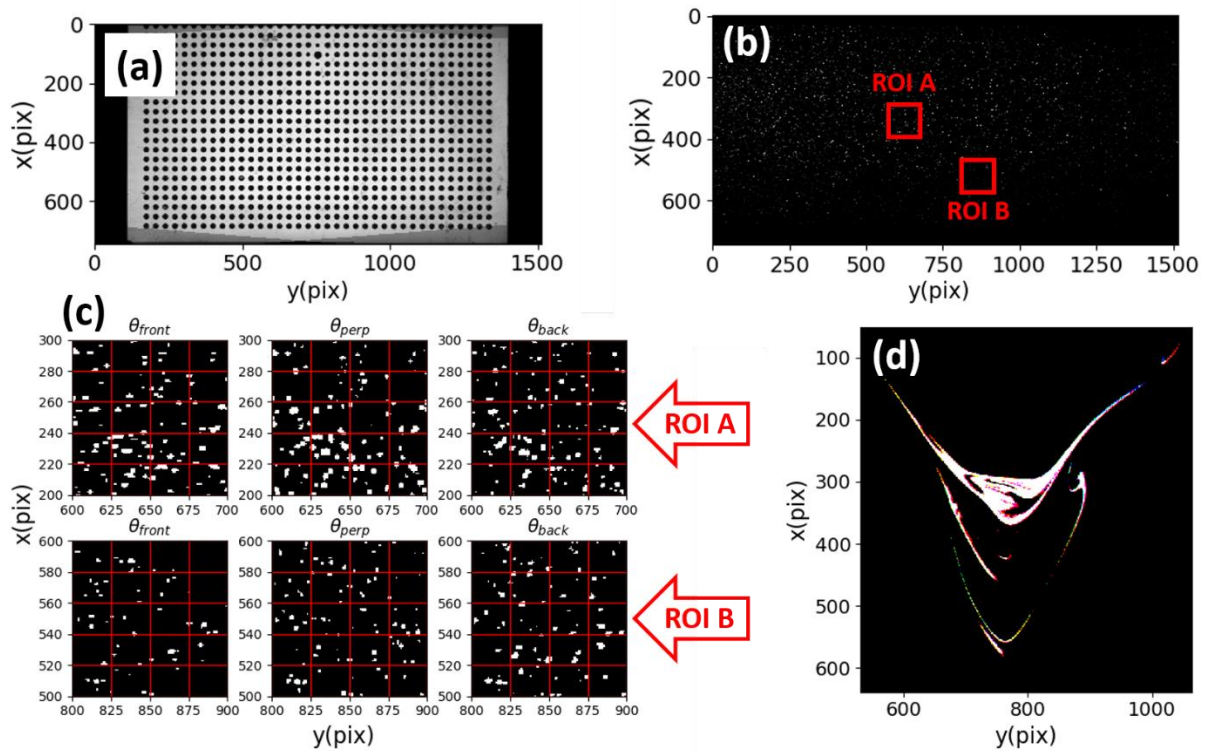


Figure 62 : (a) : Superposition des images de mire enregistrées aux trois angles et corrigées de la distorsion angulaire. (b) : Image de diffusion de la fumée de spectacle. (c) : Zoom dans les ROI A et B. (d) Image RGB constituée d'images enregistrées à trois angles, corrigées de la distorsion et seuillées ($R = \theta_{front}$, $G = \theta_{perp}$, $B = \theta_{back}$).

Il est également important de conserver l'intensité des images de base par cette correction de la distorsion. Or, cette étape est entièrement gérée par le logiciel DaVis dont les codes sources utilisés ne sont pas accessibles. Afin de vérifier la bonne gestion de l'intensité des images avec cette correction, la sphère intégrante a été utilisée de manière similaire à l'étalonnage de la LII autocompensée (voir section 4.2). La sortie de la sphère est placée face aux caméras et un enregistrement des images est réalisée de manière à couvrir la surface totale du capteur. Un profil horizontal issu d'une de ces images est tracé sur la Figure 63 (a) avant et après reconstruction. On observe sur cette figure que la correction de la distorsion a pour effet d'étirer le profil mais ne modifie pas le niveau de gris des pixels. Les images de sphère intégrante, dont on rappelle que le signal de sortie est parfaitement homogène, seront aussi utiles à la correction d'éventuelles inhomogénéités spatiales induites par le capteur ou par le processus de correction de la distorsion. La Figure 63 (b) montre le rapport entre les images de sphère enregistrées aux angles θ_{front} et θ_{back} . Ce rapport présente une dissymétrie horizontale (voir Figure 63 (c)) qu'il convient donc de corriger sous peine d'inclure une erreur maximale de $\sim 20\%$ sur la gauche et $\sim 10\%$ sur la droite des images. Les images de diffusion par les suies seront donc corrigées en conséquence par les images acquises avec la sphère intégrante.

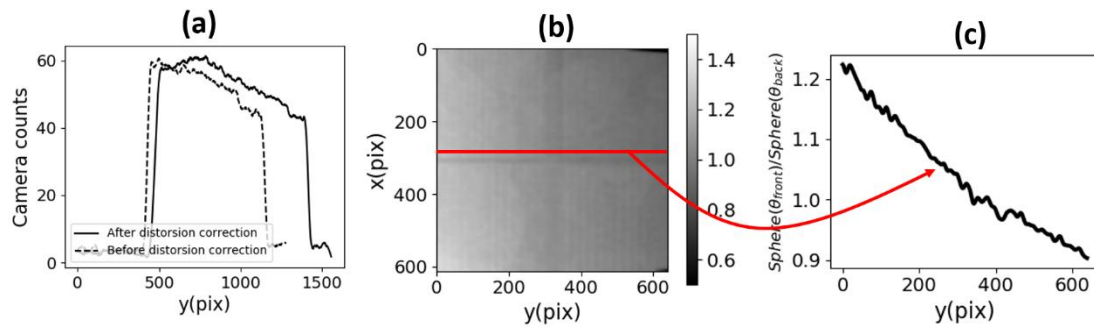


Figure 63 : (a) : Profil horizontal d’une image de sphère intégrante avant et après reconstruction. (b) : Rapport entre les images de sphère enregistrées aux angles θ_{front} et θ_{back} et profil correspondant sur la ligne rouge (c).

4.3.5 Validation de la méthode sur un aérosol de référence

Afin de valider la méthode d’analyse que nous proposons, il a été décidé de l’appliquer sur un aérosol dont on mesurera en parallèle la taille avec une analyse ex-situ. Le choix de l’aérosol de référence s’est porté dans un premier temps sur des sphères de polystyrène étalonnées en diamètre (diamètre de 100 et 200 nm avec une faible dispersion autour de ces valeurs). Malheureusement, il n’a pas été possible d’obtenir des signaux de diffusion exploitables avec cet aérosol (SNR trop faible). Nous avons donc opté pour du DEHS (Di-Ethyl-Hexyl-Sebacat) qui est un liquide approprié à la production d’aérosol de gouttelettes inférieures à $1\ \mu\text{m}$. Comme observé sur le schéma expérimental de la Figure 64, la mise en suspension du DEHS est assurée avec un atomiseur PALAS AGK200. Cet appareil fonctionne de la manière suivante : l’air d’alimentation est injecté dans un venturi qui est connecté en son col à un tuyau plongé dans la solution de DEHS. La solution est aspirée par effet de dépression pour former un brouillard de particules qui est envoyé dans un cyclone qui va permettre de sélectionner les petites particules. La distribution de taille obtenue juste après l’atomiseur est tracée en rouge sur l’image située en haut à droite de la Figure 64. On remarque que le SMPS utilisé pour réaliser cette mesure, dont la limite supérieure de taille accessible se situe à $\sim 1\ \mu\text{m}$, ne permet pas de mesurer la distribution entière dont la traîne aux grands diamètres s’étend au-delà de ce diamètre limite. Les grands diamètres jouant un rôle prépondérant dans la diffusion de la lumière, il est donc nécessaire de réduire la taille des particules de cet aérosol. L’accès à la distribution entière permet également de considérer la distribution réelle sans avoir à ajuster une fonction densité de probabilité théorique sur l’expérience. Cette suppression des grosses particules est effectuée avec un impacteur. Celui-ci est composé d’une réduction de section suivie d’un coude à 90° . Les petites particules, dont le nombre de Stokes est faible, vont suivre les lignes de courant et continuer leur chemin dans la suite du conduit tandis que les grosses gouttelettes vont impacter une plaque située en face de la réduction de section. Cette plaque est dévissable et nettoyée régulièrement afin de conserver un piégeage efficace des grosses gouttelettes. La distribution de taille mesurée lorsque l’impacteur est utilisé est tracée en noir sur le graphique en haut à droite de la Figure 64. On observe une diminution globale de la taille des gouttelettes et une coupure des grands diamètres. La distribution est complète et il n’y a plus d’ambiguïté quant à son allure aux grands diamètres. La mesure de diffusion est effectuée directement en sortie du tuyau dans lequel circule l’aérosol (jet libre). Même si le schéma ne l’illustre pas correctement, la longueur de tuyau entre l’impacteur et la dilution située en amont du SMPS et celle entre l’impacteur et le jet libre sont identiques afin de supprimer les différences éventuelles de coalescence des gouttelettes ainsi que les pertes par dépôt associées aux deux mesures (optique et granulométrique ex-situ). Un exemple de rapport de dissymétrie obtenu après recalage des images de diffusion sur le jet de DEHS est présenté en bas à droite sur la Figure 64. On observe un jet relativement laminaire avec peu de structures turbulentes à l’interface avec l’air ambiant suggérant un mélange de faible

intensité en cette position. On observe également un signal homogène spatialement à l'intérieur du jet de gouttes comme l'atteste le profil tracé le long de la ligne pointillée rouge. On utilisera donc pour la suite des calculs la moyenne spatiale dans la zone d'intérêt située à l'intérieur du jet et délimitée par les lignes jaunes.

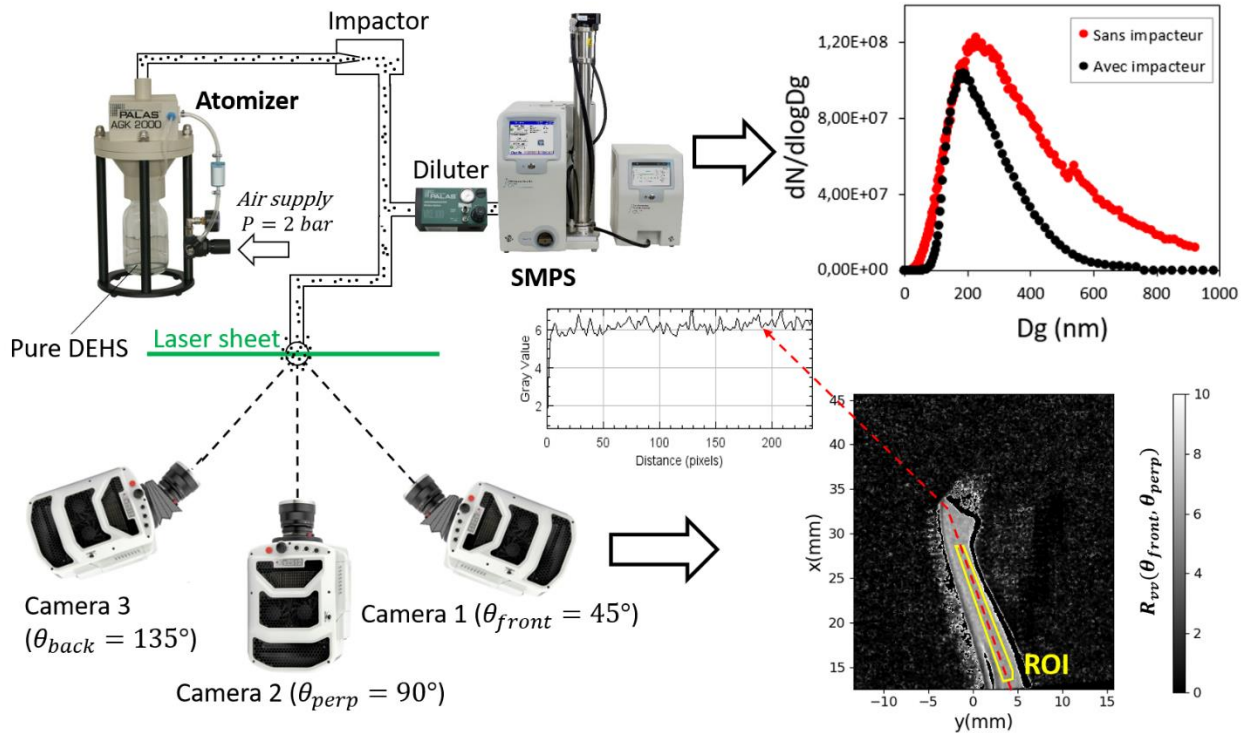


Figure 64 : A gauche : schéma expérimental utilisé pour les mesures de validation de la diffusion angulaire. En haut à droite : Distributions de taille de l'aérosol de DEHS avec et sans impacteur. En bas à droite : Exemple d'image du jet de DEHS obtenue par diffusion et zone d'intérêt considérée.

La suite de la validation de cette méthode consiste à comparer les résultats obtenus par SMPS et par diffusion et d'évaluer les incertitudes relatives aux deux techniques. Comme on interprète R_{vv} dans la méthode proposée, les comparaisons sur ces rapports seront privilégiées.

Pour les mesures SMPS, il est possible de calculer des coefficients de diffusion K_{vv} absolus puisqu'on dispose non seulement de la distribution de taille mais également de la concentration. La partie réelle de l'indice optique est évaluée à 1,45 par le fabricant du DEHS, cette valeur a été vérifiée et validée au laboratoire juste avant les expériences par mesure réfractométrique avec laquelle on trouve 1,451. Cette dernière valeur sera considérée dans la suite de cette comparaison. Puisque l'ordre de grandeur de la taille des gouttes est proche de la longueur d'onde, la théorie de Mie est utilisée pour modéliser précisément le signal de diffusion produit par les particules sphériques. Pour plus d'information sur le calcul des sections efficaces de diffusion par la théorie de Mie, le lecteur pourra se référer à l'ouvrage de Bohren et Huffman [163]. Trois types d'incertitude sur le coefficient de diffusion ainsi calculé sont considérés : l'incertitude inhérente au SMPS $\Delta K_{vv,SMPS}$, l'incertitude associée à l'angle de diffusion $\Delta K_{vv,angle}$ et l'incertitude sur l'indice optique $\Delta K_{vv,indice}$. On considère que la principale source d'erreur du SMPS est liée à l'évaluation de la concentration en nombre. En effet, même si le comptage du SMPS est un processus optique, la détermination de la distribution de taille repose sur un algorithme complexe mêlant fonction de transfert du granulomètre et correction de charges multiples. On supposera une incertitude relative de cette concentration en nombre

à 10 %. En revanche, on considérera une incertitude sur les classes de diamètre négligeable, ce qui a été confirmé par les mesures sur des billes de polystyrène étalonnées en taille. Deux méthodes ont été utilisées pour mesurer les angles de diffusion. La première consiste à prendre une photographie depuis le dessus de l'installation juste au-dessus du volume de mesure et de calculer les angles à partir des coordonnées en pixels des caméras et de V_m . La deuxième méthode est basée sur l'utilisation d'un niveau laser qu'on règle pour que le laser croise le volume de mesure et le centre de l'objectif de la caméra, on vient ensuite relever la ligne du laser sur une feuille. L'opération est répétée pour les trois caméras et pour la direction du laser de diffusion et les angles sont mesurés directement sur la feuille. L'écart entre ces deux techniques est de $\pm 1^\circ$ environ et elle sera retenue comme l'incertitude. L'incertitude absolue relative à la partie réelle de l'indice est fixée à 0,05. La partie imaginaire de l'indice est fixée à 0 et l'incertitude associée est considérée comme négligeable. Les K_{vv} sont calculés successivement pour les indices, angles, et distributions sans incertitude puis avec plus ou moins l'incertitude absolue pour ces trois paramètres. L'incertitude composée due à ces trois sources d'erreurs est calculée selon la relation suivante :

$$\Delta K_{vv,TOT} = \sqrt{\Delta K_{vv,SMPS}^2 + \Delta K_{vv,indice}^2 + \Delta K_{vv,angle}^2} \quad (91)$$

On peut ensuite calculer l'incertitude relative associée $\Delta K_{vv,TOT}/K_{vv,SMPS}$ et propager celle-ci au calcul du rapport R_{vv} déduit de la mesure granulométrique et du calcul de Mie avec la formule suivante :

$$\Delta R_{vv,SMPS}(\theta, \theta_{ref}) = R_{vv,SMPS}(\theta, \theta_{ref}) \left(\frac{\Delta K_{vv,TOT}(\theta)}{K_{vv,SMPS}(\theta)} + \frac{\Delta K_{vv,TOT}(\theta_{ref})}{K_{vv,SMPS}(\theta_{ref})} \right) \quad (92)$$

Les coefficients de diffusion calculés et les incertitudes associées aux mesures SMPS sont renseignés dans le Tableau 3.

	θ_{front}	θ_{perp}	θ_{back}
$K_{vv,SMPS} (m^{-1})$	0,263	0,051	0,022
$\Delta K_{vv,SMPS} (m^{-1})$	$\pm 0,034$	$\pm 0,006$	$\pm 0,003$
$\Delta K_{vv,indice} (m^{-1})$	$\pm 0,054$	$\pm 0,009$	$\pm 0,004$
$\Delta K_{vv,angle} (m^{-1})$	$\pm 0,012$	$\pm 0,001$	± 0
$\Delta K_{vv,TOT} (m^{-1})$	$\pm 0,061$	$\pm 0,011$	$\pm 0,004$
$\Delta K_{vv,TOT}/K_{vv,SMPS}$	$\pm 22,3 \%$	$\pm 22,6 \%$	$\pm 20 \%$
	$\theta_{front}/\theta_{perp}$	$\theta_{front}/\theta_{back}$	$\theta_{perp}/\theta_{back}$
$R_{vv,SMPS}$	5,28	12,13	2,30
$\Delta R_{vv,SMPS}$	$\pm 2,4$	$\pm 5,2$	$\pm 1,0$
$\Delta R_{vv,SMPS}/R_{vv,SMPS}$	$\pm 45 \%$	$\pm 43 \%$	$\pm 43 \%$

Tableau 3 : Coefficients de diffusion, ratios de dissymétrie et incertitudes associées calculés avec les distributions de taille de gouttes de DEHS mesurées par SMPS.

Pour ce qui est des mesures par diffusion, les résultats et incertitudes associées sont présentés dans le Tableau 4. Les sources d'incertitude considérées sont la répétabilité de la mesure $\Delta I_{vv,répét}$ et le volume de mesure $\Delta V_m(\theta)$ qui est en fait une extension de l'incertitude sur l'angle θ (on rappelle $V_m(\theta) \propto 1/\sin\theta$). Pour l'angle de diffusion, une incertitude de $\pm 1^\circ$ est reprise et l'incertitude relative est calculée grâce à la relation suivante :

$$\Delta V_m(\theta)/V_m(\theta) = \frac{|V_m(\theta) - V_m(\theta \pm 1^\circ)|}{V_m(\theta)} \quad (93)$$

En ce qui concerne la répétabilité de la mesure de diffusion, une étude statistique sur 10 mesures distinctes est effectuée et l'écart-type multiplié par trois est pris comme valeur d'incertitude. L'incertitude relative totale sur I_{vv} est la somme des deux incertitudes relatives et l'incertitude sur R_{vv} est la somme des incertitudes des deux angles.

Finalement, la comparaison entre les deux méthodes de calcul du rapport des intensités diffusées à deux angles R_{vv} du DEHS est tracée sur la Figure 65. On observe que, pour les trois combinaisons d'angles étudiées, les ratios de dissymétrie calculés par diffusion angulaire sont plus élevés que ceux déduits des mesures ex-situ. Ces différences peuvent s'expliquer par l'absence de prise en compte d'autres sources d'erreurs pour le SMPS comme par exemple une évolution de la distribution de taille dans les lignes de prélèvement ou dans le système de dilution ou même dans le SMPS. Une variation du volume de mesure différente de la variation théorique pour laquelle on a opté peut également entraîner des erreurs supplémentaires. Néanmoins, les tendances sont les mêmes et les intervalles d'incertitudes se recouvrent. Même si ces incertitudes sont élevées pour les deux méthodes, nous considérerons que cette comparaison permet de valider les mesures de diffusion.

	θ_{front}	θ_{perp}	θ_{back}
$I_{vv,sca} (NDG)$	1028	157	49
$\Delta I_{vv,répét} (NDG)$	± 100	± 36	± 20
$\Delta I_{vv,répét}/I_{vv,répét}$	$\pm 7 \%$	$\pm 22 \%$	$\pm 26 \%$
$\Delta V_m(\theta)/V_m(\theta)$	$\pm 2 \%$	$\pm 0 \%$	$\pm 2 \%$
$\Delta I_{vv,sca,TOT}/I_{vv,sca}$	$\pm 8 \%$	$\pm 22 \%$	$\pm 28 \%$

	$\theta_{front}/\theta_{perp}$	$\theta_{front}/\theta_{back}$	$\theta_{perp}/\theta_{back}$
$R_{vv,sca}$	6,55	20,9	3,2
$\Delta R_{vv,sca}$	$\pm 2,0$	$\pm 7,8$	$\pm 1,6$
$\Delta R_{vv,sca}/R_{vv,sca}$	$\pm 30 \%$	$\pm 37 \%$	$\pm 50 \%$

Tableau 4 : Intensités diffusées, ratios de dissymétrie et incertitudes associées pour les mesures de diffusion sur les gouttes de DEHS.

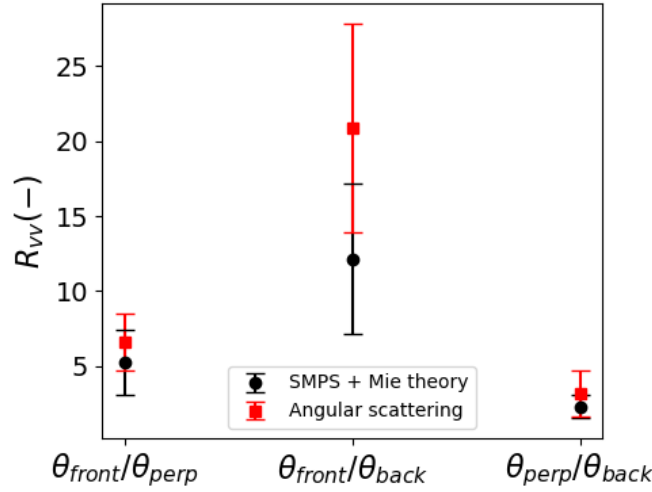


Figure 65 : Comparaisons des R_{vv} mesurés en diffusion (rouge) et calculés à partir des mesures SMPS (noir) pour un aérosol de DEHS.

4.3.6 Evaluation de l'incertitude pour les mesures en flamme et choix du couple d'angles

Les incertitudes calculées dans la section précédente ont été calculées pour les mesures sur l'aérosol de DEHS. Cette section est maintenant consacrée à l'évaluation de l'incertitude sur les mesures en flamme. Ceci nous aidera aussi à choisir le couple d'angles optimal pour la détermination de la taille des particules de suie. En effet, nous disposons ici de trois caméras mais seulement deux seront utilisées pour déterminer la taille des agrégats et la troisième sera consacrée à la détermination des variations du terme A dans l'équation (90). On rappelle que la mesure effectuée dans nos expériences est différente des mesures de diffusion angulaire planaire déjà rapportées dans la littérature [238, 239] puisque nous exploitons des images instantanées et non moyennées et que l'écoulement étudié est turbulent et donc sujet à des variations spatiales locales importantes des signaux de diffusion. Les images instantanées présentent un rapport signal-à-bruit moins élevé que les images moyennées à cause du bruit de grenaille (déjà détaillé dans la section 4.2.3). Puisque ce bruit est proportionnel à la racine du signal de mesure, il devient en relatif de plus en plus faible avec l'augmentation de ce signal. C'est pourquoi nous privilégierons ici les couples d'angles contenant θ_{front} , angle où le signal de diffusion est le plus intense. Nous évaluerons donc deux possibilités pour le calcul de R_{vv} : $(\theta_{front}, \theta_{back})$ et $(\theta_{front}, \theta_{perp})$. L'évaluation de l'incertitude relative au bruit de grenaille a été effectuée sur un profil d'une image instantanée présentée sur la Figure 66 (a) (i.e. le long du trait jaune). Ce profil a été choisi car il présente, en première approximation, de faibles variations d'intensité sur une distance suffisamment grande pour obtenir un échantillon statistique correct (environ 200 pixels). Les rapports de dissymétrie pour les deux couples d'angle sont calculés et tracés sur la Figure 66 (b). On se rend alors compte sur ce tracé de l'impact du bruit de grenaille qui provoque des variations spatiales haute fréquence spatiales sur le signal. Le diamètre médian $D_{g,geo}$ est ensuite calculé à partir des rapports R_{vv} avec un écart-type géométrique de 1,6 (Figure 66 (c)). Par souci de lisibilité, ce diamètre est tracé sur cette figure en transparence puisqu'un autre tracé lui est superposé. Il s'agit en fait du même signal ($D_{g,geo}$) mais filtré avec un filtre passe-bas de Savitzky-Golay (ordre 2, taille de fenêtre = 21 pixels et écrit *savgol* dans les équations). Ce signal filtré est utilisé pour quantifier l'erreur relative aux hautes fréquences spatiales (donc au bruit de grenaille) en le soustrayant au signal $D_{g,geo}$ brut, afin d'isoler les fluctuations appelées $\Delta D_{g,geo}$. L'incertitude relative liée au bruit de grenaille tracé sur la Figure 66 (d) est alors calculée avec la relation suivante :

$$\frac{\Delta D_{g,geo}}{D_{g,geo}} (\%) = \frac{|D_{g,geo} - \text{savgol}(D_{g,geo})|}{\text{savgol}(D_{g,geo})} \quad (94)$$

On remarque que l'erreur relative présente des fluctuations pouvant aller localement jusqu'à 100 % pour les deux combinaisons d'angles. L'erreur est cependant en moyenne beaucoup moins élevée pour le couple $(\theta_{front}, \theta_{back})$ que pour $(\theta_{front}, \theta_{perp})$ comme en témoigne les valeurs moyennes sur ce profil : 16 % pour $(\theta_{front}, \theta_{back})$ contre 35 % pour $(\theta_{front}, \theta_{perp})$. On peut comprendre ce comportement en analysant l'allure des courbes théoriques $D_{g,geo}(R_{vv})$ tracées sur la Figure 61. On observe que la pente de la courbe pour le couple $(\theta_{front}, \theta_{perp})$ (rouge) est beaucoup plus élevée que pour le couple $(\theta_{front}, \theta_{back})$ (noir), ce qui signifie qu'une même erreur sur R_{vv} impactera plus significativement le rayon de gyration dans le cas de la courbe rouge que dans le cas de la courbe noire. On a donc une amplification plus élevée du bruit dans le cas où l'angle de référence est θ_{perp} . Ce raisonnement est illustré sur la Figure 61 (b) où le R_{vv} moyen accompagné de son incertitude (calculée de la même manière que pour $D_{g,geo}$) sur le profil étudié dans cette section est indiqué pour les deux couples d'angles avec les diamètres correspondants (image de R_{vv} par les courbes rouge ou noir). L'incertitude correspondante en termes de diamètre est donc plus élevée dans le cas de la mesure avec les angles $(\theta_{front}, \theta_{perp})$. Ceci est attendu dans la mesure où plus l'écart entre les deux angles est élevé et plus la variation de l'intensité diffusée sera marquée vis-à-vis du rapport signal-à-bruit. Le couple d'angles qui sera utilisé par la suite pour l'analyse des données est donc $(\theta_{front}, \theta_{back})$. Ce couple d'angles apporte un autre avantage. En effet, le positionnement quasi-symétrique de ces caméras permet de considérer leurs volumes de mesure quasiment identiques, ce qui réduit l'impact potentiel de la modélisation de ce dernier par une loi en inverse de sinus de l'angle.

4.3.7 Réduction de l'incertitude (filtrage du bruit)

On considère que les variations haute fréquence observées sur les signaux étudiés dans la section précédente sont reliées à un bruit de mesure (principalement du bruit de grenaille) et qu'il serait donc préférable de les supprimer afin de réduire l'amplification de l'incertitude induite par les étapes successives de calcul. Une manière de réduire ce bruit de mesure est d'appliquer un filtre passe-bas sur les images brutes. Si par exemple on applique un filtre Gaussien avec un écart-type égale à 1 pixel, on se rend compte que l'incertitude relative est réduite à 9 % pour $(\theta_{front}, \theta_{back})$ et 17 % pour $(\theta_{front}, \theta_{perp})$. Avec un écart-type de deux pixels, cette erreur passe à 4 % pour $(\theta_{front}, \theta_{back})$ et 8 % pour $(\theta_{front}, \theta_{perp})$. L'erreur obtenue dans ce dernier cas est tracée sur la Figure 66 (e). Si on élargit l'incertitude à trois écart-types, on obtient alors avec ce filtre une incertitude de 12 % sur $D_{g,geo}$. On peut y ajouter l'incertitude associée à l'angle qui est renseignée dans le Tableau 4, ce qui augmente l'incertitude de 3,6 % pour $(\theta_{front}, \theta_{back})$ et de 1,7 %. Ainsi, par la suite, toutes les mesures seront donc calculées avec un filtre Gaussien d'écart-type de 2 pixels sur les images brutes.

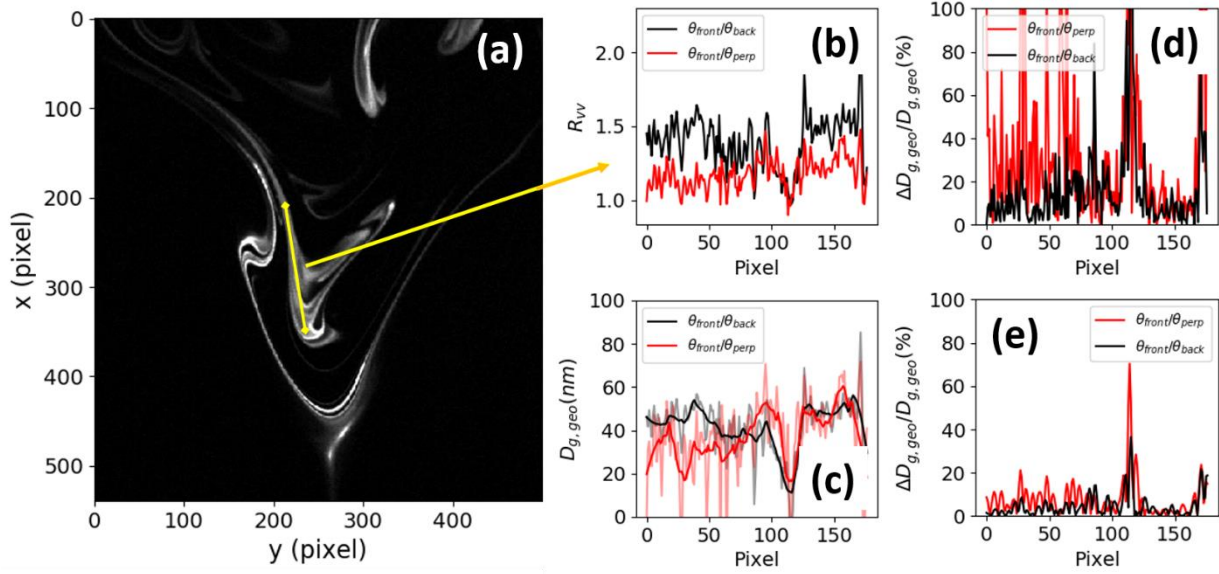


Figure 66 : (a) : Image instantanée brute à θ_{perp} avec le profil analysé en jaune. (b) : Ratios de dissymétrie pour les deux combinaisons d'angles étudiées. (c) : $D_{g,geo}$ pour les deux combinaisons d'angles étudiées (ligne transparente) avec le même signal filtré (ligne non-transparente). (d) : erreur relative sur $D_{g,geo}$ pour les deux combinaisons d'angles. (e) : erreur relative sur $D_{g,geo}$ pour les deux combinaisons d'angles lorsqu'un filtre Gaussien d'écart-type 2 pixels est appliqué aux images brutes.

4.3.8 Résultats

4.3.8.1 Champs instantanés résolus en temps et analyse de ces champs

La technique proposée dans le cadre de ma thèse permet donc d'obtenir des images instantanées des grandeurs $D_{g,geo}$, R_g^* et S_A . La Figure 67 résume les différentes étapes de calcul pour accéder à ces quantités. En premier lieu, la taille ou un paramètre gouvernant la distribution de taille des agrégats exprimés en diamètre de giration est calculé à partir du rapport des images obtenues aux petit et grand angles de diffusion. Puis, le terme T est calculé à partir de l'information sur la taille précédemment calculée mais pour l'angle de diffusion correspondant à la caméra placée orthogonalement à la nappe laser. Ceci permet de déterminer le signal S_A , proportionnel à l'amplitude A qui est définie par la relation (90) à partir de la prise de vue perpendiculaire. On remarque une bonne sensibilité aux variations de taille sur les images de R_g^* et $D_{g,geo}$ et des diamètres globalement inférieurs à 100 nm comme ce qui est attendu dans ce type de flamme. La résolution temporelle apportée par la haute cadence des mesures permet en outre une visualisation de l'évolution dynamique de la taille des particules de suie dans la flamme avec la trajectoire des poches, l'étirement de celles-ci en filaments ou encore la détection de zones où la production de suie est plus stationnaire. Une animation représentant l'évolution temporelle de la taille des particules dans le plan xy peut être consultée sur le lien suivant : <https://youtu.be/FxAsnUr74GI>. On observe également sur la Figure 67 que l'information apportée par l'image correspondant à l'angle de diffusion à 90° est bien indépendante de celle apportée par les cartographies de diamètre. Les régions où le paramètre A est élevé diffèrent de celles où les particules sont les plus grosses. On rappelle que S_A est en partie piloté par la densité d'agrégats N_{agg} , le diamètre des sphérules primaires D_p et l'indice optique $F(m)$ potentiellement variable avec la maturité des particules.

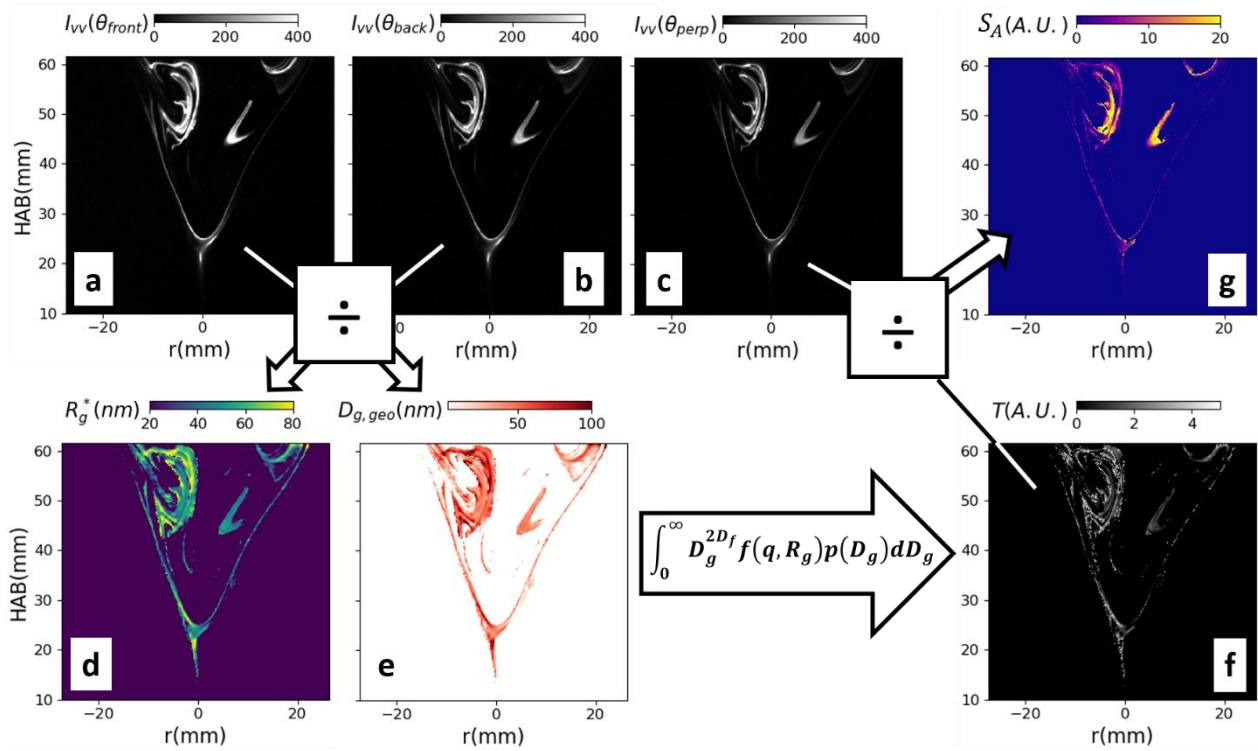


Figure 67 : (a), (b), (c) : Signaux bruts de diffusion enregistrés aux angles θ_{front} , θ_{back} et θ_{perp} , respectivement. (d) : R_g^* calculé à l'aide des angles θ_{front} et θ_{back} . (e) : $D_{g,geo}$ calculé à l'aide des angles θ_{front} et θ_{back} avec $\sigma_{g,geo} = 1,6$. (f) : Terme T calculé à l'angle θ_{perp} . (g) Signal S_A calculé à l'angle θ_{perp} .

Pour aller plus loin dans cette analyse temporelle, un algorithme de suivi des poches a été développé. Cela peut permettre de suivre l'évolution temporelle des valeurs moyennes de taille et de concentration dans les poches tout en analysant leurs mouvements. Cet algorithme considère en entrée la position initiale de la poche à suivre, un seuillage est ensuite effectué afin d'isoler les particules de suie du bruit de fond puis la poche d'intérêt est sélectionnée avec une opération de labellisation qui donne à chaque groupe de pixel un niveau de gris. Le niveau de gris correspondant à la position initiale d'entrée est ensuite utilisé pour isoler la poche d'intérêt. Le barycentre de la poche est calculé et utilisé comme position initiale pour la prochaine image sur laquelle la même série d'opérations est répétée. Un exemple de trajectoire du centre d'une poche de suie sur 83 ms est présenté par la Figure 68 sur l'image du centre correspondant aux $D_{g,geo}$ de l'image de gauche. Cette poche est transportée dans la zone de recirculation centrale de la flamme (voir section 5.1 pour plus d'informations sur l'écoulement) et a donc une vitesse négative en x. Les évolutions temporelles de la taille moyenne $\overline{D_{g,geo}}$, de la vitesse et de la surface S_p de cette poche sont tracés sur la partie droite de la Figure 68. La vitesse est calculée à partir de la variation de position du barycentre de la poche d'une image à l'autre. On observe ici une vitesse faible lorsque la poche est située dans l'IRZ suivi d'une accélération rapide (positive en x) accompagnée d'un étirement de la poche lorsque la poche se rapproche du jet interne situé en périphérie de l'IRZ. Bien évidemment, un mouvement de swirl est présent dans les flammes étudiées, ce qui signifie que les poches se déplacent à une vitesse selon z non négligeable et qu'il est possible qu'elles entrent ou sortent de la nappe laser. Les évolutions temporelles de toutes les grandeurs déduites de cette analyse sont donc dépendantes de ce phénomène. Cette analyse est donnée comme exemple du potentiel de la technique pour l'analyse du déplacement et de la déformation des structures de suie.

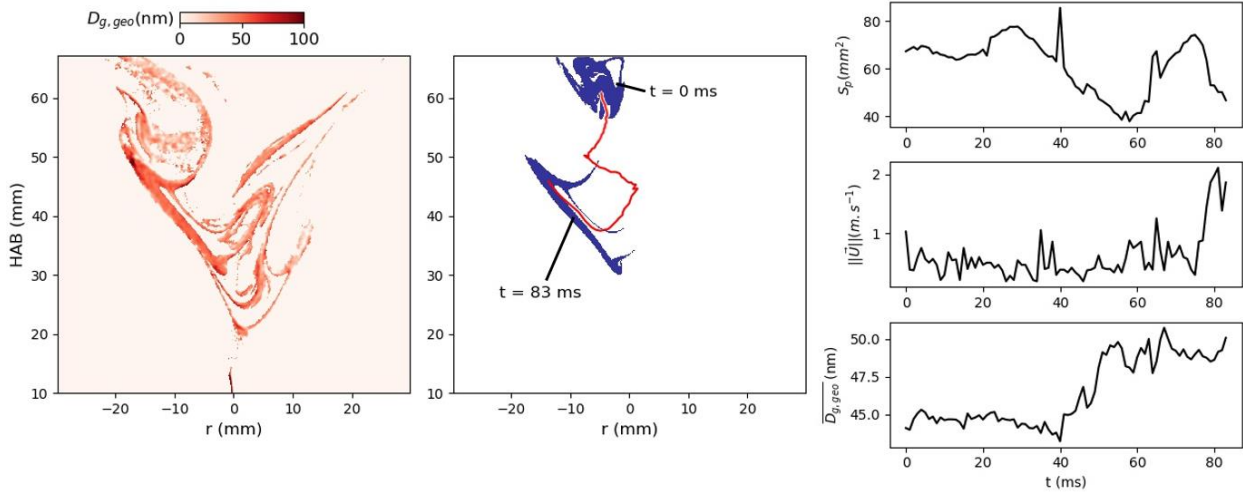


Figure 68 : Gauche : Champ de $D_{g,geo}$ pour le point de fonctionnement 1 et pour $t = 83$ ms. Centre : Trajectoire (en rouge) de la poche définie par les pixels bleus entre $t = 0$ ms et $t = 83$ ms. Droite : Surface S_p de la poche (haut), vitesse de la poche (milieu) et taille moyenne des agrégats dans la poche (bas).

4.3.8.2 Moyennes conditionnées et moyennes des distributions

L'avantage de mesures à haute cadence est de proposer une analyse d'un suivi temporel des particules de suie mais il est également possible de calculer des informations moyennées dans le temps. Ainsi, la Figure 69 présente les distributions moyennes et moyennes conditionnées par la présence de suie. On rappelle que l'avantage de cette seconde méthode est de discuter de la taille moyenne des suies au sein des poches alors que la moyenne classique sera artificiellement réduite du fait de l'intermittence d'apparition de ces poches au volume de mesure. En revanche, la moyenne « classique » sera plus représentative d'une mesure déduite par une autre technique de mesure. Sur les images moyennées « classiquement » (première ligne de la figure), on observe des tailles variant globalement entre 10 et 70 nm avec des valeurs plus importantes dans la partie basse en périphérie de l'IRZ. La même tendance est observée pour S_A . Pour les moyennes conditionnées (seconde ligne de la figure), on trouve des champs étonnamment homogènes pour les tailles et des valeurs de S_A plus élevées dans l'IRZ indiquant que la taille et la densité d'agrégats au sein des poches de particules de suie semblent faiblement dépendantes de la position de ces poches dans la flamme.

Trois zones d'intérêt dénommées ROI 1, 2 et 3 ont été définies afin d'analyser les distributions moyennes dans différentes zones de flamme et donc associées à des particules de suie ayant des historiques différents. Les fonctions densité de probabilité moyennes en diamètre de giration sont tracées sur la Figure 70. Les fonctions log-normales les plus représentatives de ces distributions moyennes sont également tracées. On remarque que la dispersion de ces distributions moyennes est plus grande ($\sigma_{g,geo}$ autour de 2) que celle utilisée pour les distributions instantanées. Ce phénomène est attendu puisqu'à la dispersion instantanée supposée égale à $\sigma_{g,geo} = 1.6$, s'ajoute à la dispersion temporelle du diamètre géométrique.

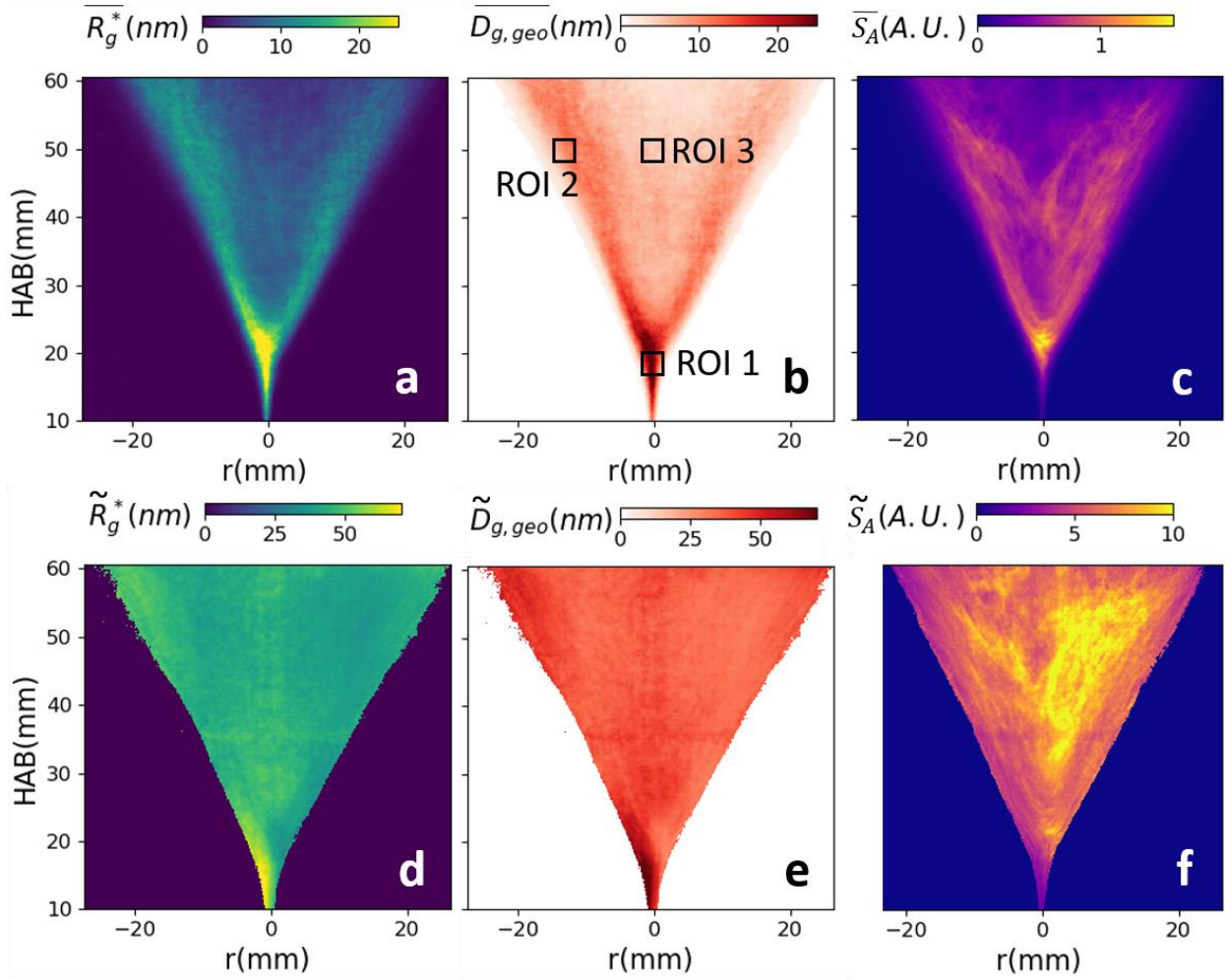


Figure 69 : Haut : Images moyennes de R_g^* (a), $D_{g,geo}$ (b) et S_A (c). Bas : Images moyennes conditionnées de R_g^* (d), $D_{g,geo}$ (e) et S_A (f).

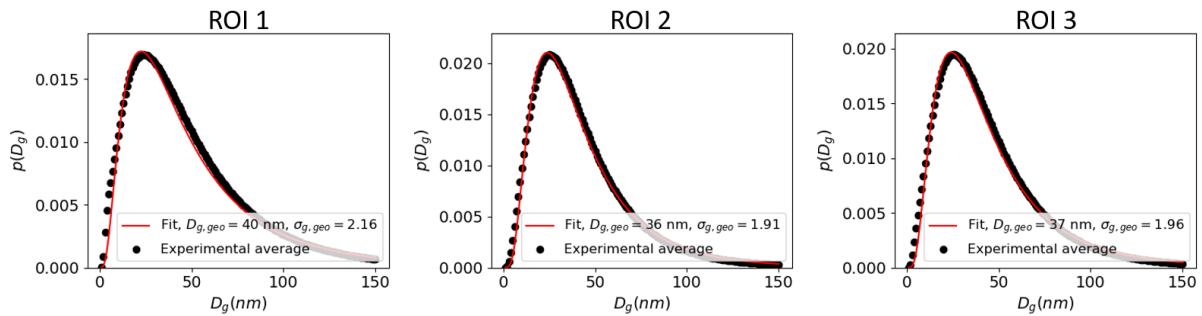


Figure 70 : Fonction densité de probabilité moyenne en diamètre de gyration dans les trois ROIs (points noirs) et fonction log normale la plus proche (trait rouge).

4.3.9 Conclusions et perspectives

Un développement de la méthode de diffusion angulaire a été proposé et développé dans cette section. La nouveauté réside ici dans une application de ce diagnostic laser en flamme turbulente, en deux dimensions (2D) et à haute cadence. Ceci constitue une avancée indéniable pour l'analyse de la formation des suies dans

ce type de flamme où la production est intermittente et où la dynamique temporelle d'évolution des zones de production et de transport des suies sous forme de filaments et de poches est une information pertinente permettant d'obtenir une meilleure compréhension sur le suivi et l'organisation de la formation des particules. Une description de la procédure d'analyse a été proposée dans un premier temps avec la résolution des problèmes de mise au point et de distorsion des images. Une validation de la procédure d'analyse sur un aérosol de référence a ensuite été réalisée. L'incertitude liée à la mesure a été quantifiée et utilisée pour guider la sélection des angles de diffusion pour la mesure de taille. Enfin, les résultats obtenus sur les flammes swirlées et stratifiées ont été présentés et discutés.

Une perspective d'analyse plus poussée des résultats de cette technique sera présentée dans le chapitre 5, 5.7. Cette amélioration concerne l'exploitation de S_A pour la détermination de la concentration en nombre d'agrégats N_{agg} . Concernant les autres perspectives d'amélioration de ce diagnostic laser, un couplage avec d'autres diagnostic de mesure pourrait être extrêmement intéressant. Nous pensons à la fluorescence induite par laser sur OH ou sur les PAH afin d'observer directement les évolutions spatiales et temporelles des interactions entre ces espèces chimiques et les particules de suie et par voie de conséquence, des processus d'oxydation et de nucléation. L'observation détaillée de ces phénomènes constituerait ainsi une grande avancée dans la compréhension des mécanismes de formation et de consommation des suies en flamme turbulente.

4.4 Diffusion spectrale

4.4.1 Contexte et motivations du développement

Comme il a été évoqué dans le Chapitre 2, il n'existe actuellement pas de technique in-situ capable de mesurer la distribution de taille des particules de suie sans avoir recours à un diagnostic supplémentaire ou avec au minimum trois angles de diffusion. On rappelle que l'objectif final du banc de combustion SIRIUS est de réaliser des expériences à pression élevée. Ce type d'installation requiert un confinement et a, par conséquent, des accès optiques limités. La chambre de confinement du banc SIRIUS aura la même architecture que le celle du banc de combustion haute-pression HERON [240] qui est situé dans le même laboratoire. Il possède quatre hublots optiques repartis sur les quatre faces de la chambre de combustion. Deux de ces hublots optiques servent à la visualisation et ont une taille de 100 x 80 mm² tandis que les deux autres servent à introduire la nappe dans la chambre et ont une taille de 40 x 80 mm². Il est donc difficile dans ce genre de configuration d'avoir accès à trois angles de diffusion bien distincts, surtout pour des angles de diffusion situés autour de 45° et 135° qui sont inaccessibles. Afin de surmonter ce problème, nous proposons ici de remplacer l'information angulaire, exploitée jusqu'à présent pour les mesures de taille, par une analyse spectrale (Figure 41). En effet, il existe une variation du signal de diffusion en fonction de la longueur qui est analogue à la variation angulaire. Ces deux paramètres sont d'ailleurs reliés par le vecteur de diffusion q qui gouverne l'intensité du signal diffusé. La principale limitation liée à l'exploitation de la variation spectrale en remplacement de la variation angulaire tient au fait que la variation spectrale s'accompagne d'une possible variation des propriétés optiques des suies au travers de la fonction de diffusion $F(m)$. Nous verrons que l'on peut s'affranchir de cette contrainte grâce à l'utilisation de rapports de signaux à plusieurs angles. Les distributions de taille mesurées par diffusion seront comparées à celles mesurées par méthode non-optique (SMPS). De plus, cette stratégie de mesure permet d'évaluer la variation spectrale de la fonction de diffusion $F(m)$ qui est un indicateur de la microstructure des suies. La méthode ainsi proposée apporte, en plus de son accès optique plus favorable, deux avantages par rapport à la méthode détaillée dans la section précédente. Tout d'abord, elle permet l'acquisition d'une distribution de taille sans émettre d'hypothèse sur l'écart-type géométrique. Ensuite, elle apporte un intérêt certain vis-à-vis de l'étude de la maturité des particules de suie du fait de sa sensibilité à la longueur d'onde. Le développement proposé dans

le cadre de ma thèse vise à ouvrir des perspectives pour des applications en milieux confinés mais n'a pas pour l'instant été appliqué au brûleur SIRIUS. En effet, la diffusion angulaire planaire haute-cadence détaillée dans la section précédente a été préférée de par sa capacité à obtenir des mesures 2D qui se sont avérées importantes dans le projet de recherche SOPRANO. Par ailleurs, au moment de la réalisation de ces mesures, nous ne disposons pas de source laser blanche suffisamment puissante pour une mise en œuvre de la technique en flamme. Ainsi, l'application en flamme reste à moyen terme une perspective de cette activité de recherche.

Cette section est organisée en deux parties. Premièrement, le principe théorique de la mesure de diffusion spectrale est détaillé. Ensuite, les résultats de l'application de la technique sur des particules de suie produites est présentée. On rappelle que le dispositif expérimental est décrit dans la section 3.2.7.

4.4.2 Principe théorique

La diffusion élastique à plusieurs longueurs d'ondes nécessite l'utilisation de l'expression de l'intensité diffusée par une population d'agrégats de distribution de taille log-normale à la longueur d'onde λ et à l'angle de diffusion θ :

$$I_{vv}(\theta, \lambda) = I_0(\lambda) V_m K_{vv} \quad (95)$$

$$= N_{agg} V_m \frac{\pi^4}{4} D_p^{6-2D_f} k_f^2 I_0(\lambda) \underbrace{\frac{F(m(\lambda))}{\lambda^4} \int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f(q(\theta, \lambda), R_g) p(D_g, D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) dD_g}_{\text{Termes dépendants de la longueur d'onde}}$$

Afin de s'affranchir des paramètres qui ne varient pas avec l'angle et qui sont pour la plupart difficiles à déterminer ou à fixer, il est décidé d'utiliser le rapport de dissymétrie :

$$R_{vv}(\theta, \theta_{ref}, \lambda) = \frac{\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f(q(\theta, \lambda), R_g) p(D_g, D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) dD_g}{\int_0^{+\infty} D_g^{2D_f} f(q(\theta_{ref}, \lambda), R_g) p(D_g, D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) dD_g} \quad (96)$$

L'utilisation de R_{vv} impose deux mesures à deux angles différents, ce qui reste acceptable même pour une flamme confinée. Contrairement aux mesures de diffusion angulaire haute cadence présentées dans la section précédente, le volume de mesure V_m est ici indépendant de l'angle de diffusion car le faisceau laser englobe la totalité de l'intersection entre le jet d'aérosol et le volume de collection (voir section suivante pour plus d'informations à ce sujet). Le rapport entre les signaux à deux angles permet donc de s'en affranchir. Le rapport de dissymétrie ainsi déterminé pour un couple d'angles θ, θ_{ref} et une longueur d'onde λ ne dépend donc que de la distribution de taille et de la dimension fractale qui est un paramètre assez bien connu et assez peu variable (voir Chapitre 2).

L'objectif est maintenant d'interpréter R_{vv} dans le but d'en déduire les deux paramètres de la distribution de taille log-normale. Nous avons vu dans le Chapitre 2 que la détermination directe des paramètres $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$ à partir de l'intensité diffusée absolue I_{vv} peut-être un problème mathématiquement mal posé. Cependant, Caumont et al. [177] ont proposé une approche alternative pour la diffusion angulaire, elle aussi détaillée dans le Chapitre 2. Cette méthode est ici reprise pour une mesure à deux angles seulement mais en incluant une dépendance spectrale. La différence entre la méthode angulaire et spectrale est illustrée par la Figure 71. A gauche est tracé le rapport de dissymétrie théorique pour une mesure angulaire à $\lambda = 532 \text{ nm}$ et à plusieurs angles entre 7° et 180° avec $\theta_{ref} = 7^\circ$, et dans le cas d'une mesure spectrale comprise entre 500 et 700 nm et à deux angles ($\theta = 90^\circ$ et $\theta_{ref} = 7^\circ$). On note l'effet de la variation spectrale mesurée dans le deuxième cas qui se traduit par une évolution continue de R_{vv} et non discrète comme c'est le cas pour une mesure à un angle donné. La figure de droite représente le $R_g^*(q)$ correspondant à ces rapports de

dissymétrie. On rappelle que R_g^* est le rayon d'une suie unique (approche monodisperse) qui produit le même rapport R_{vv} que l'ensemble de particules polydisperse réel diffusant. Le domaine de q couvert par la diffusion spectrale est ici assez étroit comparé à la diffusion angulaire. Cependant, dans des installations expérimentales confinées où il est impossible d'accéder à autant d'angles de diffusion que l'on souhaite, cette technique présente un avantage indéniable.

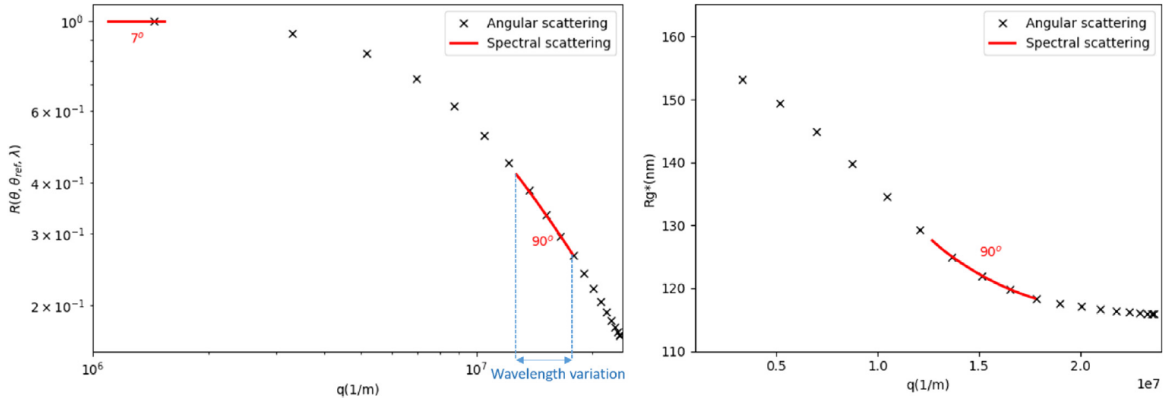


Figure 71 : Comparaison entre les ratios de dissymétrie et $R_g^*(q)$ en diffusion angulaire (croix noires) et spectrale (ligne pleine rouge). La distribution utilisée ici possède un diamètre médian de 200 nm et un écart-type géométrique égale à 1,5. La dimension fractale est fixée à 1,74. Les angles de diffusion s'étendent sur une gamme allant de 7° à 180° avec $\theta_{ref} = 7^\circ$ et la diffusion spectrale couvre l'intervalle [500 - 700 nm].

On rappelle que dans la méthode de Caumont et al. [177], l'amplitude moyenne de R_g^* est reliée à la taille moyenne de l'aérosol alors que la décroissance de R_g^* est reliée à la polydispersion. En effet, en condition monodisperse, R_g^* est un paramètre constant mais sa valeur est d'autant plus élevée que l'agrégat est de diamètre élevé. Ces caractéristiques sont utilisées ici de manière à obtenir les deux paramètres de la distribution (diamètre et écart-type géométrique). Puisque la gamme de q couverte par la variation de la longueur est généralement limitée par la source lumineuse et la détection du signal de diffusion sur un intervalle assez étroit, il est possible d'utiliser une fonction approchée à deux paramètres reproduisant fidèlement le comportement de $R_g^*(q)$. La fonction choisie pour cette étude est la suivante :

$$R_g^*(q) = A^{1-B} q^{-B} \quad (97)$$

Cette expression est définie empiriquement de manière à reproduire le comportement spectral de $R_g^*(q)$ défini par l'expression (52) pour une grande gamme de $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$. Cette relation possède également l'avantage de fournir un premier diagnostic qualitatif. En effet, les paramètres A et B se complètent dans le sens où A est relié à l'amplitude globale de $R_g^*(q)$ et donc au diamètre moyen, et B à sa décroissance et donc à la polydispersion. Dans le cas monodisperse, on a $B = 0$. En revanche, dans un cas polydisperse, un couplage existe entre A et B et se traduit mathématiquement dans l'expression (97) par le terme devant q qui dépend des deux coefficients. Cela signifie qu'il n'y a pas de relation directe entre A et $D_{g,geo}$ et entre B et $\sigma_{g,geo}$. Pour cette raison, la relation entre les couples (A, B) et $(D_{g,geo}, \sigma_{g,geo})$ doit être calculée. Le résultat de ce calcul est présenté sur la Figure 72 où les iso-valeurs de A et B sont tracées respectivement en bleu et rouge pour une gamme de $D_{g,geo}$ de 0 à 400 nm et une gamme de $\sigma_{g,geo}$ de 1 à 2. Il est observé sur cette figure que, pour une dimension fractale fixée et un éventail de distributions restreint, les iso-valeurs de A et B ne

se croisent qu'une seule fois, démontrant ainsi l'unicité de la solution : un couple (A, B) définit un couple $(D_{g,geo}, \sigma_{g,geo})$. La méthodologie proposée consiste donc à mesurer $R_g^*(q)$, à ajuster la fonction (68) sur cette mesure, puis à reporter les paramètres A et B déterminés sur le diagramme de la Figure 72 pour mesurer $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$.

Une évaluation de la sensibilité de la détermination de la distribution à l'incertitude de mesure peut aussi être déduite des diagrammes d'iso-valeurs. En effet, si les courbes bleues et rouges se croisent perpendiculairement, alors une légère erreur sur A ou B affectera faiblement la distribution de taille. En revanche, si les courbes d'iso-valeurs sont presque tangentes, une faible erreur sur la mesure engendrera une incertitude élevée sur la distribution de taille ainsi déterminée. C'est ce qui est observé sur la Figure 72 pour les faibles diamètres médians et les grands écarts-types géométriques.

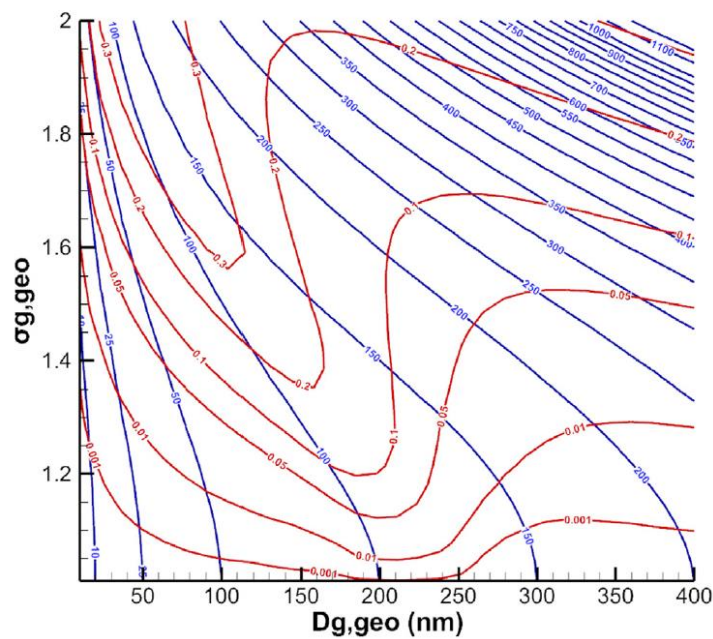


Figure 72 : Diagramme d'iso valeurs de A (bleu) et B (rouge) construit avec le $R_g^*(q)$ théorique avec $\theta = 90^\circ$, $\theta_{ref} = 7^\circ$, une dimension fractale $D_f = 1,74$ et une gamme de longueurs d'ondes allant de 500 à 700 nm.

4.4.3 Points de fonctionnement étudiés

Comme évoqué précédemment, l'aérosol étudié pour cette étude est produit avec un générateur de particules de suie miniCAST. Les points de fonctionnement utilisés dans cette étude, appelés CAST 1, CAST 2 et CAST 3, ont déjà été étudiés et qualifiés dans des études précédentes et les agrégats qu'ils produisent sont donc bien caractérisés en termes de taille, de composition et de morphologie. Le Tableau 5 résume les débits de gaz utilisés pour ces points de fonctionnement ainsi que les caractéristiques des agrégats produits qui ont été précédemment déterminées. Ce tableau contient aussi les résultats des mesures SMPS ainsi que leur conversion de diamètre de mobilité vers un diamètre de gyration. Cette conversion, décrite ci-après, est nécessaire à la comparaison avec les tailles déduites de mesure par diffusion de la lumière. En combinant des mesures CPMA et SMPS, il est possible de déterminer l'évolution du diamètre de mobilité d'une particule en

fonction de sa masse m_a . Pour les agrégats fractals, cette évolution est caractérisée par la relation suivante [157] :

$$m_a = aD_m^{D_{fm}} \quad (98)$$

a et D_{fm} sont deux constantes qui dépendent des propriétés des suies et qui sont connues pour les points de fonctionnement étudiés. Le nombre de sphérules par agrégat est égal au rapport entre sa masse et la masse des particules le composant, on a donc :

$$N_p = \frac{m_a}{m_p} = \frac{aD_m^{D_{fm}}}{\rho_{pp}\pi D_p^3/6} \quad (99)$$

Dans cette équation, la masse d'une particule primaire est exprimée comme son volume multiplié par sa densité. Le nombre de sphérules par agrégat peut aussi s'exprimer en tenant compte de la loi fractale qui permet d'introduire le rayon de giration. En utilisant les deux expressions de N_p , la relation entre le diamètre de mobilité et le diamètre de gyration est exprimée comme :

$$D_g = D_p^{1-3/D_f} \left(\frac{6aD_m^{D_{fm}}}{\rho_{pp}\pi k_f} \right)^{1/D_f} \quad (100)$$

Cette relation sera utilisée pour convertir les distributions de taille de diamètres de mobilité en diamètres de giration. On remarque cependant que ce processus de conversion nécessite une connaissance approfondie des particules étudiées ($a, \rho_{pp}, D_{fm}, k_f, D_f, D_p$). Nous utiliserons ici les données mesurées par Yon et al. [157] et Bescond et al. [65] pour les points de fonctionnement CAST 1, 2 et 3 dans le cadre d'études antérieures.

	CAST 1	CAST 2	CAST 3	Méthode	Référence
Propane (ml/min)	60	60	60		
Gaz de quench	0	0	0		
Air d'oxydation (l/min)	1,5	1,15	1		
Air de dilution (l/min)	20	20	20		
D_p (nm)	26,6	36,3	29,9	TEM	[65]
D_f	1,73	1,75	1,79	TEM	[65]
k_f	1,94	1,94	1,95	TEM	[65]
$\rho_{pp}(kg.m^{-3})$	1543	1235	1321	DMA-CPMA	[157]
F(m) à 266 nm	0,22	0,40	0,83	Extinction	[65]
F(m) à 532 nm	0,23	0,30	0,37	Extinction	[65]
F(m) à 632 nm	0,23	0,28	0,34	Extinction	[65]
F(m) à 1064 nm	0,32	0,29	0,26	Extinction	[65]
OC/TC (%)	4,1 ± 3,1	46,8 ± 3,1	87 ± 5,0	Analyse thermo-optique	[157]
$D_{m,geo}$ (nm)	150	111	72	SMPS	Cette étude
$\sigma_{m,geo}$	1,56	1,62	1,47	SMPS	Cette étude
$D_{g,geo}$ (nm)	206	132	77	Conversion de mesure SMPS	Cette étude
$\sigma_{g,geo}$	1,72	1,82	1,61	Conversion de mesure SMPS	Cette étude

Tableau 5 : Caractéristiques de chaque point de fonctionnement et des agrégats de suie générés par le miniCAST. ρ_{pp} est la densité des suies, $D_{m,geo}$ et $\sigma_{m,geo}$ sont les paramètres de la distribution de taille log normale en diamètres de mobilité. Les diamètres des particules primaires présentés dans ce tableau sont les diamètres médians des distributions mesurées par TEM qui sont considérées comme monodispeses (écart-type géométrique < 1,31 en réalité).

4.4.4 Analyse des données brutes et résultats

4.4.4.1 Etalonnage en intensité et détermination de coefficients de diffusion absolus

Afin d'obtenir les coefficients de diffusion K_{vv} en valeur absolue, un étalonnage en intensité du système de détection est réalisé. Cette procédure consiste à utiliser la sphère intégrante dont la luminance de sortie est connue dans la configuration décrite par la Figure 73 de manière que le système de collection capte le faisceau de sortie de la sphère.

Au cours d'une expérience de diffusion, la puissance radiative collectée dans un angle solide de détection Ω à un angle θ peut s'exprimer simplement comme celle provenant d'une surface émettrice S_{sui} (projection du volume de mesure observée depuis le système de détection) caractérisée par une luminance L_{sui} :

$$d\Phi_{sui}(\lambda, \theta, \Omega) = L_{sui}(\lambda)S_{sui}d\lambda d\Omega \quad (101)$$

De manière similaire, le flux collecté lors de l'étalonnage avec la sphère s'écrit :

$$d\Phi_{sphere}(\lambda, \theta, \Omega) = L_{sphere}(\lambda)S_{sphere}d\lambda d\Omega \quad (102)$$

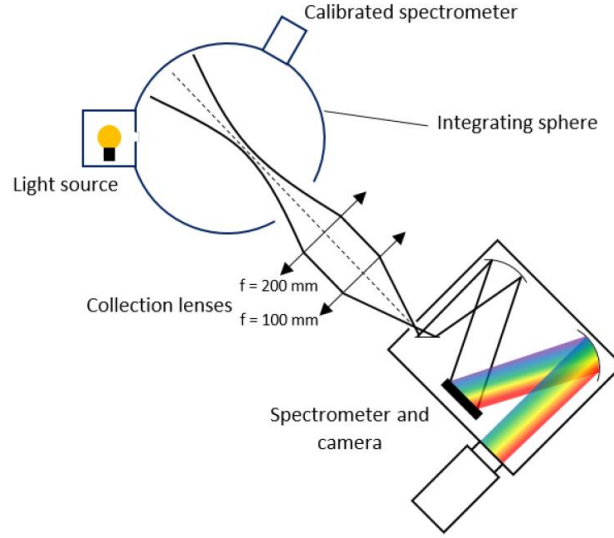


Figure 73 : Montage expérimental utilisé pour l'étalonnage en intensité du système de détection.

Lorsqu'on calcule le rapport des spectres obtenus pendant ces deux expériences, le résultat correspond au rapport entre ces deux flux (appelé R_Φ) :

$$R_\Phi(\lambda) = \frac{d\Phi_{suie}}{d\Phi_{sphere}} = \frac{S_{suie}}{S_{sphere}} \frac{L_{suie}(\lambda)}{L_{sphere}(\lambda)} \quad (103)$$

Les surface S_{suie} et S_{sphere} sont en fait limitées par le volume de collection pour les deux mesures, leur rapport est donc égal à 1. On rappelle que le flux diffusé par les suies peut aussi s'écrire comme :

$$d\Phi_{suie}(\lambda, \theta, \Omega) = V_m \frac{dI_0(\lambda)}{d\lambda} N_{agg} \underbrace{\frac{dC_{sca}^a}{d\Omega}}_{\frac{dK_{vv}^a}{d\Omega}} d\lambda d\Omega \quad (104)$$

$\frac{dI_0(\lambda)}{d\lambda}$ est l'éclairement incident dans l'intervalle spectral $[\lambda, \lambda + d\lambda]$. En combinant les relations (101), (103) et (104), on obtient l'expression suivante pour le coefficient de diffusion :

$$\frac{dK_{vv}}{d\Omega}(\lambda, \theta) = \frac{S_{suie}}{V_m} \frac{R_\Phi(\lambda)}{\frac{dI_0(\lambda)}{d\lambda}} L_{sphere}(\lambda) \quad (105)$$

L_{sphere} est mesuré avec le spectromètre de la sphère. L'éclairement de la source polychromatique $\frac{dI_0(\lambda)}{d\lambda}$ est mesuré avec le spectromètre étalonné de la sphère en introduisant la sortie de la source dans la sphère alors que la lampe de la sphère est éteinte. En effet, à l'équilibre, le flux injecté $d\Phi_{inj}$ dans la sphère par la source est égale au flux qui sort de la sphère $d\Phi_{sortie}$:

$$d\Phi_{inj} = d\Phi_{sortie} \quad (106)$$

En considérant que l'angle solide de sortie de la sphère est égal à 2π sr, on trouve l'expression suivante pour l'éclairement de la source :

$$\frac{dI_0(\lambda)}{d\lambda} = \frac{L_{source}(\lambda) 2\pi S_{sphere}^*}{S_{source}^*} \quad (107)$$

$L_{source}(\lambda)$ est la luminance spectrale indiquée par le spectromètre de la sphère, S_{source}^* la surface du faisceau au volume de mesure et S_{sphere}^* la surface de sortie de la sphère. Le coefficient de diffusion absolu est alors calculé avec l'expression suivante :

$$\frac{dK_{vv}}{d\Omega}(\theta, \lambda) = \frac{S_{suie}}{V_m} \frac{R_\Phi(\lambda) S_{source}^*}{L_{source}(\lambda) 2\pi S_{sphere}^*} L_{sphere}(\lambda) \quad (108)$$

4.4.4.2 Intensité diffusée pour une lumière non-polarisée

Puisque la source polychromatique ne délivre qu'une faible puissance, le rapport signal-à-bruit est optimisé en évitant l'utilisation de polariseurs afin de collecter non-seulement I_{vv} mais également les autres composantes : I_{hh} , I_{vh} et I_{hv} . Les contributions des composantes I_{vh} et I_{hv} sont négligeables [241] et l'expression de l'intensité diffusée se réduit à (Bohren et Huffman [163], page 133) :

$$I_{sca} = \frac{I_{vv} + I_{hh}}{2} \quad (109)$$

$I_{hh} = I_{vv} \cos^2 \theta$. Par la suite, l'analyse sera effectuée sur I_{sca} .

4.4.4.3 Distributions de taille

4.4.4.3.1 Analyse avec les diagrammes d'iso-valeurs

L'objectif applicatif de ce développement est la mesure dans des environnements confinés. Si la plupart de ce type d'installations n'offrent que des accès optiques en diffusion avant et à 90° comme le banc de combustion haute pression HERON, certaines expériences permettent des mesures à des angles intermédiaires [242]. Pour ces configurations, il est important d'évaluer si certains angles de diffusion sont à privilégier. En conséquence, plusieurs angles ont été considérés dans cette étude : 7°, 20°, 45°, 70° et 90°. Les K_{vv} absolus correspondant à ces angles et sur l'intervalle spectral [500 - 700 nm] sont présentés sur la Figure 74 (a) en échelle logarithmique. On remarque que la gamme spectrale exploitée lors du traitement des données est relativement étroite en comparaison du spectre large bande produit par la source de lumière. Cette restriction provient des différents éléments qui composent la ligne de collection (optiques, réseau, intensificateur et capteur CCD), l'Annexe 2 décrit ce point en détail. Si la diffusion était isotrope comme pour de petits agrégats par rapport à la longueur d'onde (facteur de forme $f \rightarrow 1$) et avec un indice optique constant, K_{vv} devrait être linéaire lorsqu'il est tracé en fonction de q en log-log avec une pente de 4 (théorie de Rayleigh en $1/\lambda^4$). Cette tendance est quasiment observée pour le CAST 3 mais pas pour les CAST 1 et 2 surtout pour les angles de diffusion élevés. Ceci résulte du fait que les particules ne sont pas de taille négligeable par rapport aux longueurs d'ondes considérées ou que l'indice optique varie avec la longueur d'onde. En effet, l'amplitude de K_{vv} aux petits angles de diffusion est principalement gouvernée par le carré du volume des agrégats et par $F(m)$. Le coefficient de diffusion pour le CAST 3 est 10 fois plus faible que pour les autres points de fonctionnement à $\theta = 7^\circ$ à cause des plus petites tailles de ses agrégats et d'un $F(m)$ plus faible (voir Tableau 5). La dépendance à $F(m)$ est supprimée lorsqu'on calcule les rapports de dissymétrie (voir Figure 74 (b)). L'angle de référence choisi pour cette étude est $\theta_{ref} = 7^\circ$. Les barres verticales sur la Figure 74 (b) correspondent à un intervalle de confiance de 95% provenant d'une analyse statistique sur cinq mesures indépendantes. On remarque que l'intervalle spectral analysable pour le CAST 3 est réduit à [500 - 560 nm] car les K_{vv} mesurés ne sont pas suffisamment dépendants de l'angle, causant un

bruit significatif sur R_{vv} . Les rapports de dissymétrie expérimentaux ont une allure attendue, composée d'un régime de Guinier suivi d'un régime de Puissance lorsque le paramètre q augmente. En première observation, la transition entre ces deux régimes apparaît plus rapidement pour le CAST 1, suivi du CAST 2, puis du CAST 3. Puisque les dimensions fractales de ces trois points de fonctionnement sont voisines, on peut, en première approximation, constater que les mesures de diffusion spectrale suivent la même tendance que les mesures SMPS : les tailles des particules produites par le CAST 1 sont plus grandes que celles du CAST2, elles même plus grandes que celles du CAST3. En effet, comme indiqué par l'équation (38), la transition Guinier - puissance se produit à des q plus faibles lorsque la taille des particules augmente.

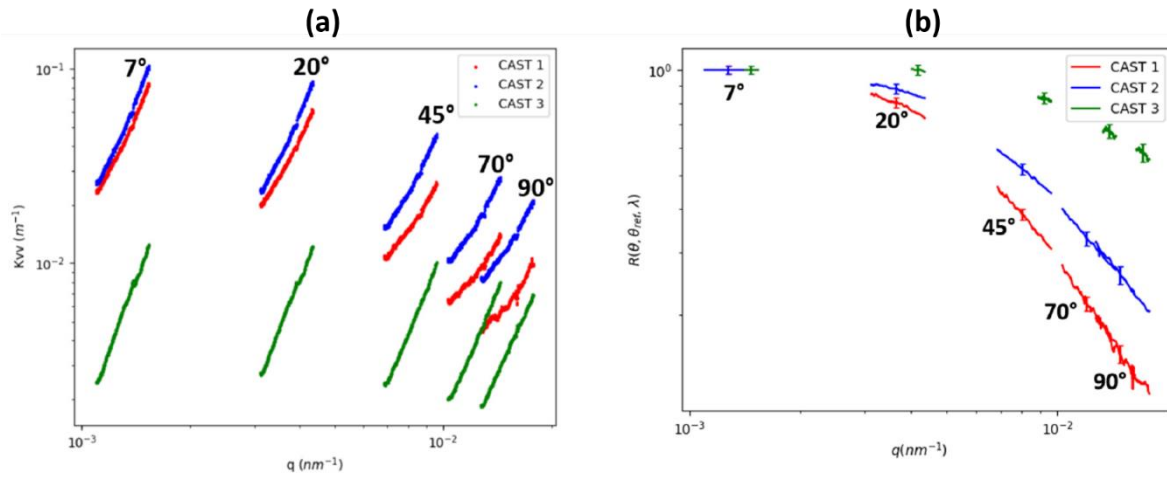


Figure 74 : Coefficients de diffusion (a) et ratio de dissymétrie (b) pour chacun des points de fonctionnement et des angles considérés.

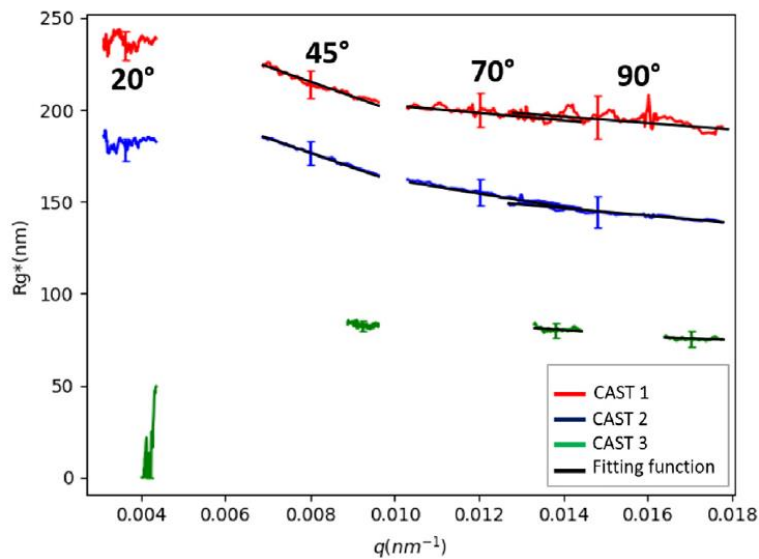


Figure 75 : Rayon de gyration R_g^* expérimental et fonction approchée pour chacun des angles de diffusion et points de fonctionnement investigués.

Pour chaque angle de diffusion (à l'exception de l'angle θ_{ref}), le rayon de gyration équivalent monodisperse $R_g^*(q)$ est calculé et tracé sur la Figure 75. Contrairement aux données enregistrées pour les grands angles de diffusion, les mesures à $\theta = 20^\circ$ sont entachées d'un bruit non-négligeable. Cela provient

vraisemblablement de la faible sensibilité du rapport de dissymétrie lorsque les deux angles sont trop proches ($R_{vv} \approx 1$). Pour cette raison, les mesures à cet angle de diffusion ne seront pas prises en compte dans le reste de l'étude. Ces courbes confirment le constat déjà établi concernant l'évolution de la taille des particules en fonction du point de fonctionnement, c'est-à-dire que R_g^* suit la tendance suivante : CAST 1 > CAST 2 > CAST 3. L'étape suivante consiste à ajuster la fonction (97) sur les R_g^* expérimentaux. Ces courbes sont tracées en noir sur la Figure 75 et les paramètres A et B correspondants sont visibles dans le Tableau 6. La courbe $R_g^*(q)$ obtenue pour le point de fonctionnement CAST 3 et pour l'angle de diffusion 45° est réduite à un intervalle de q très étroit à cause du faible angle de diffusion (Δq est proportionnel à $\sin(\theta/2)$ pour λ et $\Delta\lambda$ fixés donc augmente avec l'angle de diffusion) et de la réduction déjà appliquée (conséquence du système de détection). Cette caractéristique ne permet pas un ajustement précis de la fonction (97). En conséquence, cette mesure ne sera pas traitée.

	CAST 1		CAST 2		CAST 3	
Angle	A (nm)	B	A (nm)	B	A (nm)	B
90°	219	0,098	175	0,203	77	0,099
70°	222	0,113	200	0,292	82	0,153
45°	268	0,292	212	0,351	-	-

Tableau 6 : Résultats de l'ajustement de la fonction approchée $R_g^*(q) = A^{1-B}q^{-B}$ sur l'expérience.

Les valeurs de A et B déterminées pour chaque mesure sont reportées sur les diagrammes d'iso-valeur précalculés. La Figure 76 (a) illustre cette étape pour l'angle $\theta = 90^\circ$. Les coordonnées des points d'intersection entre les iso-valeurs rouges et bleues correspondent au diamètre médian et à l'écart-type des distributions. Cette procédure est répétée pour les autres angles de diffusion. Les résultats sont présentés dans le Tableau 7 et reportés graphiquement sur la Figure 76 (b) où les fonctions densité de probabilité log-normale mesurées pour chaque angle et point de fonctionnement sont tracées aux côtés des mesures SMPS (converties en diamètres de giration comme discuté précédemment).

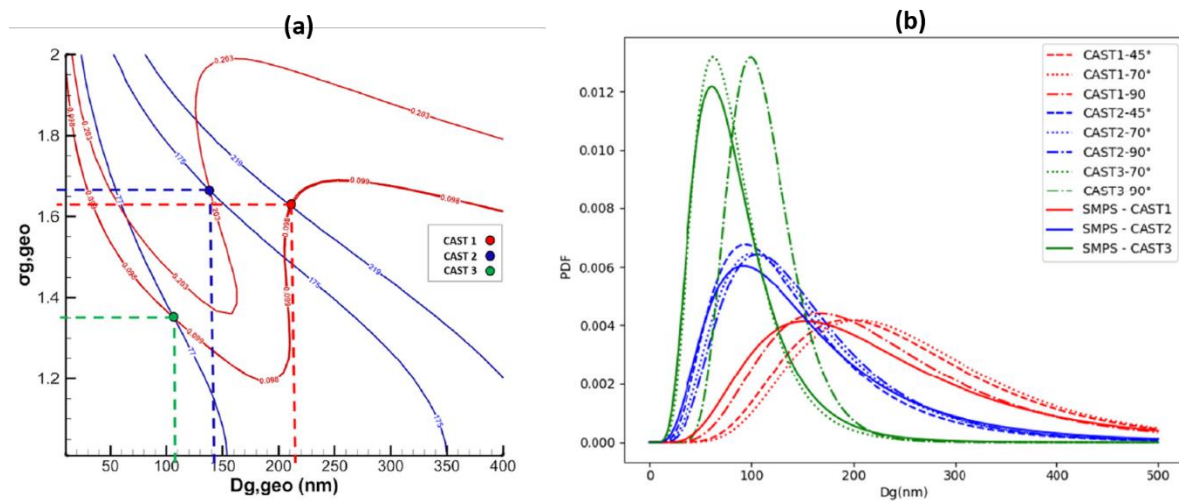


Figure 76 : (a): Iso-valeurs des paramètres A (bleu) et B (rouge) trouvées expérimentalement pour l'angle de diffusion $\theta = 90^\circ$. (b): Distributions de taille expérimentales mesurées par diffusion spectrale et par SMPS pour chaque point de fonctionnement et angle de diffusion considérés.

Un bon accord est trouvé entre les mesures de diffusion spectrale (lignes pointillées) et les mesures par prélèvement et SMPS (lignes pleines) pour tous les angles de diffusion. Même si la conversion des diamètres de mobilité électrique obtenus par SMPS en diamètre de gyration est conditionnée à une incertitude non négligeable, cette comparaison est un bon indicateur de validation des mesures de diffusion spectrale. Les différences de distribution de taille entre les trois points de fonctionnement sont bien retrouvées. On observe néanmoins une dispersion des résultats en fonction de l'angle de diffusion sélectionné. L'incertitude sur la mesure pourrait être réduite en élargissant le domaine spectral étudié. Cette gamme spectrale peut, de plus, être adaptée à la taille des particules sondées. Par exemple, pour le CAST 3, qui produit de petites particules, une plus grande précision pourrait être atteinte si le domaine de paramètre q était décalé vers les grands q , donc les petites longueurs d'ondes.

	CAST 1		CAST 2		CAST 3	
Technique	$D_{g,geo}$ (nm)	$\sigma_{g,geo}$	$D_{g,geo}$ (nm)	$\sigma_{g,geo}$	$D_{g,geo}$ (nm)	$\sigma_{g,geo}$
Diffusion – 90°	211	1,62	138	1,67	108	1,34
Diffusion – 70°	246	1,53	135	1,69	76	1,55
Diffusion – 45°	237	1,56	126	1,72	-	-
SMPS	206	1,72	132	1,82	77	1,61

Tableau 7 : Paramètres des distributions log normales déterminés par diffusion spectrale et par SMPS.

Un autre point à discuter est la sensibilité au seul paramètre qui est ici supposé être la dimension fractale D_f . Les diagrammes d'iso-valeurs ont été conçus jusqu'ici en considérant $D_f = 1,74$. Pour étudier la sensibilité de l'inversion à cette hypothèse, les données expérimentales sont réinterprétées avec les valeurs extrêmes des dimensions fractales trouvées dans la littérature scientifique, c'est-à-dire 1,6 et 1,9. Cette étude est reportée sur la Figure 77 pour un angle de diffusion $\theta = 90^\circ$. Globalement, plus $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$ sont élevés et plus le processus d'inversion est sensible à la dimension fractale. Ce phénomène s'explique par le fait qu'un plus grand nombre de particules diffusent en régime de puissance qui dépend de D_f . Au contraire, si la gamme de q est adaptée à la distribution de la taille des particules (favorisant le régime de Guinier), alors l'effet de la dimension fractale est négligeable (cas du CAST 3). On remarque que même pour les valeurs extrêmes que sont 1,6 et 1,9, la différence de distribution finale mesurée reste faible dans tous les cas.

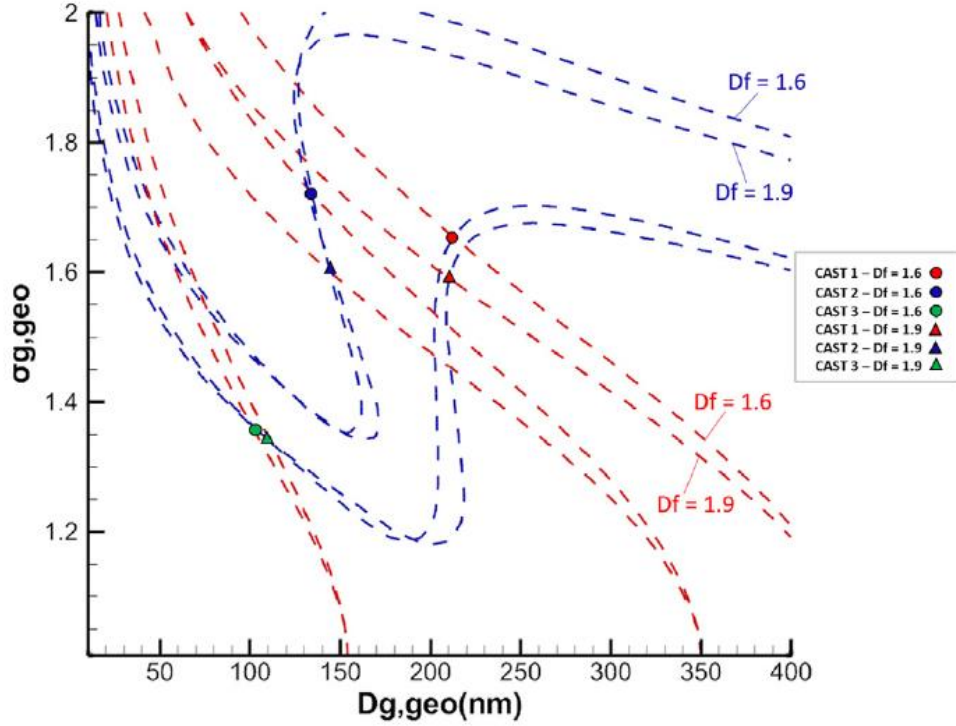


Figure 77 : Etude de sensibilité de la mesure de taille à la dimension fractale D_f .

4.4.4.3.2 Evaluation directe de $R_g^*(q)$ par inférence Bayésienne

Une autre méthode d'inversion du signal de diffusion est l'ajustement direct de $R_g^*(q)$ par son expression telle qu'elle est définie par la RDG-FA. Cette procédure peut être plus adaptée lorsque l'on exploite des intervalles de q plus grands, rendant l'ajustement par la fonction (97) moins adaptée. Le principal désavantage de cette méthode est qu'elle ne fournit pas une appréciation directe et qualitative de la sensibilité de l'inversion à l'incertitude ou au bruit de mesure.

Afin d'améliorer le processus d'inversion par cette méthode, il est possible d'utiliser l'inférence Bayésienne. Cette procédure, déjà appliquée à la diffusion par Huber et al. [174] consiste à considérer des valeurs à priori pour les valeurs de $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$ que l'on recherche et que l'on appelle ici $D_{g,geo-AP}$ et $\sigma_{g,geo-AP}$. Les valeurs à priori peuvent être fixées grâce aux connaissances de l'utilisateur ou encore grâce à des mesures distinctes que l'on souhaite évaluer. Dans le cas présent, nous choisissons les mesures effectuées par SMPS. Une distribution Gaussienne autour de $D_{g,geo-AP}$ et $\sigma_{g,geo-AP}$ est considérée avec un écart-type que l'on appelle $\sigma_{D_{g,geo-AP}}$ et $\sigma_{\sigma_{g,geo-AP}}$ qui quantifie la confiance que l'on a en les valeurs à priori que l'on fournit. Ces écart-types sont très importants car ils vont plus ou moins restreindre les distributions possibles à des distributions proches de $D_{g,geo-AP}$ et $\sigma_{g,geo-AP}$. L'expression de l'erreur obtenue avec un procédure d'optimisation par moindres carrés appelée *EMC* s'écrit alors :

$$EMC(D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}) = \underbrace{\frac{(D_{g,geo} - D_{g,geo-AP})^2}{\sigma_{D_{g,geo-AP}}^2} + \frac{(\sigma_{g,geo} - \sigma_{g,geo-AP})^2}{\sigma_{\sigma_{g,geo-AP}}^2}}_X + \underbrace{\sum_{i=1}^N \frac{(R_{g,mesure}^* - R_g^*(D_{g,geo}, \sigma_{g,geo}))^2}{\sigma_{R_{g,mesure}^*}^2}}_Y \quad (110)$$

Le terme X correspond aux moindres carrés entre le couple $(D_{g,geo}, \sigma_{g,geo})$ considéré et les connaissances à priori fournies. Ces termes sont pondérés par le carré des incertitudes sur les termes à priori afin de leur donner plus ou moins de poids. Le terme Y correspond lui à un moindre carré classique entre la mesure et la théorie avec $\sigma_{R_g^*,mesure}$ étant l'incertitude sur la mesure. L'utilisation de cette méthode permet de stabiliser le processus d'inversion et de le rendre moins sensible au bruit de mesure. Nous fixons ici une incertitude sur les valeurs à priori égale à l'incertitude considérée habituellement pour les mesures SMPS, c'est-à-dire 10 %. L'utilisation de cette méthode d'analyse va permettre ici le calcul d'une incertitude de mesure puisque qu'on va calculer $EMC(D_{g,geo}, \sigma_{g,geo})$ pour le domaine entier pour lequel on a déterminé les diagrammes d'iso-valeurs.

Les résultats de cette étude pour l'angle de diffusion $\theta = 90^\circ$ sont illustrés par la Figure 78 (a). Les couleurs correspondent aux valeurs de EMC dérivées des courbes expérimentales de $R_g^*(q)$. Les distributions de taille déduites de l'analyse par diagrammes d'iso-valeurs sont également reportées sur cette figure. Les surfaces à l'intérieur des zones bleues correspondent à un intervalle de confiance de 95 %. Les étendues couvertes par les trois tâches correspondant à l'inférence Bayésienne permet de distinguer les trois points de fonctionnement. On trouve de plus un bon accord entre les deux méthodes excepté pour le point CAST 3 à $\theta = 90^\circ$ qui se situe à l'extérieur des 95 % de l'inférence Bayésienne.

L'effet de la sélection de l'angle de diffusion sur le processus d'inversion est aussi étudié. Ce point est particulièrement important lors de la conception d'une expérience. Les frontières des intervalles de confiance de 95 % sont reportées pour chaque angle de diffusion et chaque point de fonctionnement sur la Figure 78 (b). On observe ici qu'un changement d'angle de diffusion provoque un faible impact sur les distributions et les incertitudes obtenues. On note également que ce constat reste vrai quel que soit le point de fonctionnement du générateur de suie même si les compositions des particules (taux OC/TC) changent significativement. Ce constat montre l'intérêt de la méthode proposée comparé à d'autres techniques comme la LII. En effet, on sait que la LII est très sensible aux propriétés optiques qui est d'ailleurs la source d'incertitude la plus importante.

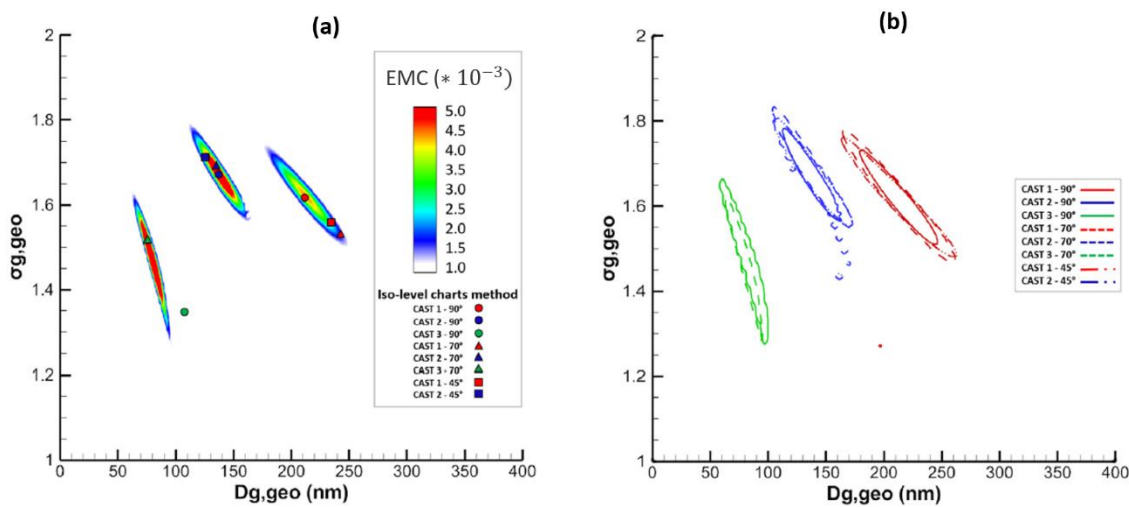


Figure 78: (a) : Comparaison des distributions déterminées avec l'inférence Bayésienne (à $\theta = 90^\circ$) et avec la méthode des diagrammes d'iso-valeurs. (b) Contour correspondant à un intervalle de confiance de 95% calculé à l'aide de l'inférence Bayésienne.

4.4.4.4 Propriétés optiques

Sous l'hypothèse de validité de la RDG-FA, le rapport de dissymétrie n'est pas dépendant de l'indice optique des particules de suie. En revanche, comme nous l'avons déjà évoqué dans la section 4.4.4.3.1, la mesure du coefficient de diffusion absolu K_{vv} l'est. Puisque la distribution de taille a été mesurée pour les trois points de fonctionnement par diffusion spectrale, l'évolution spectrale de K_{vv} peut être réinterprétée en termes de dépendance à la fonction d'absorption $F(m)$. En effet, si on analyse l'expression du coefficient de diffusion (95), une fois la distribution de taille déterminée, le seul terme inconnu dépendant de la longueur d'onde est $F(m)$. La détermination de ce terme est extrêmement intéressante car il a été récemment montré que cette fonction est régie par la composition et la microstructure des suies [65]. Sa dépendance spectrale est considérée comme un bon marqueur du taux de carbone organique.

Cependant, de grandes incertitudes subsistent pour les autres paramètres que sont D_p , N_{agg} , k_f et V_m . En conséquence, nous évaluerons seulement les variations spectrales de $F(m)$ normalisées par les valeurs rapportées par Bescond et al. [65]. Ces mesures ont été effectuées pour deux intervalles de longueurs d'ondes : [400 – 500 nm] avec une normalisation à 480 nm et [500 – 700 nm] avec une normalisation à 600 nm. Ces résultats sont tracés sur la Figure 79. Un bon accord entre les mesures de diffusion spectrale et les résultats de Bescond et al. est constaté. La décroissance de la fonction de diffusion dans le visible est fonction du taux de composés organiques dont les particules de suie sont constituées. On observe ici que les particules produites par le CAST 3 sont plus organiques que celles du CAST 2, elles-mêmes plus organiques de celles du CAST 1. Ce résultat est confirmé par des mesures de rapport OC/TC réalisées par analyse thermo-optique (Sunset Lab, IMPROVE protocol [157], voir Tableau 5). A notre connaissance, c'est la première fois qu'une analyse spectrale de la diffusion est exploitée en termes de distribution de taille et de composition des particules.

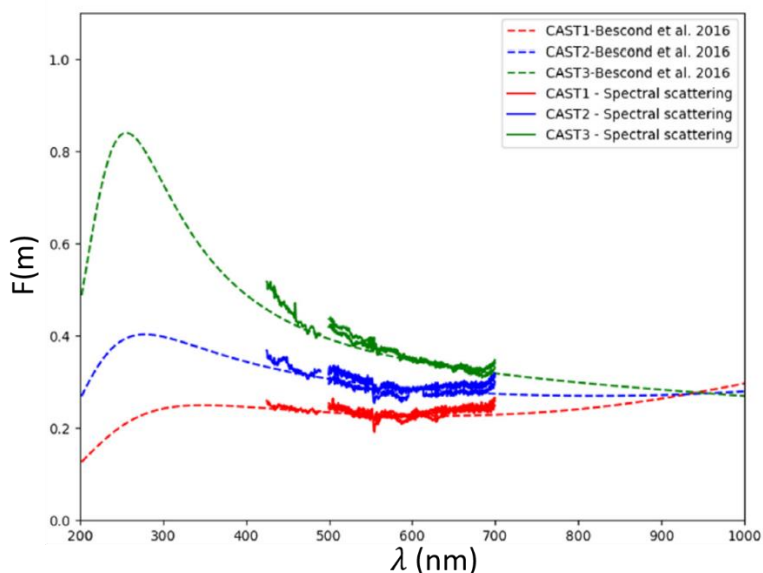


Figure 79 : Comparaison entre les fonctions de diffusion obtenues par diffusion spectrale (traits pleins) et celles fournies par Bescond et al. [65].

4.4.5 Conclusions sur la diffusion spectrale

Une nouvelle méthode optique in-situ basée sur la détection des spectres de diffusion élastique de la lumière est proposée ici dans le but de mesurer la distribution de taille de particules de suie en termes de diamètre et écart-type géométrique d'une loi log-normale avec deux angles de diffusion. Les principaux avantages de cette méthode résident dans le fait qu'elle ne nécessite que deux angles de diffusion et qu'elle ne requiert pas d'hypothèse sur la taille des particules primaires, les propriétés optiques ainsi que le préfacteur fractal. Seules des hypothèses sur la nature de la distribution de taille (ici supposée log-normale) et la dimension fractale sont nécessaires.

Ce diagnostic de mesure innovant a été appliqué à des particules de suie produites par un miniCAST et ont été validées par une mesure indépendante ex-situ (SMPS). Trois types de particules de suie, couvrant une gamme étendue de taille, de morphologie et de compositions chimique ont été analysés. Une comparaison entre deux méthodes de post-traitement a été réalisée et les incertitudes associées à la méthode de mesure ont été quantifiées. Une fois que la distribution de taille a été déterminée et après un étalonnage en intensité du système de détection, l'évolution spectrale relative de la fonction de diffusion $F(m)$ a été obtenue, donnant ainsi des informations précieuses sur la composition chimique des suies.

Il reste néanmoins des perspectives d'amélioration pour ce diagnostic laser. Premièrement, l'incertitude de mesure pourrait être réduite en utilisant un intervalle spectral plus large dans le but de recueillir plus d'informations sur les propriétés de diffusion des particules de suie. Deuxièmement, le domaine spectral utilisé doit être adapté aux propriétés des particules étudiées puisque la sensibilité de la mesure décroît pour des petits agrégats et des populations hautement polydisperses. Enfin, il est important de noter que le rapport signal-à-bruit doit être élevé pour ces mesures (ce qui est le cas pour les particules de suie du CAST qui sont étudiées après éjection de la flamme) afin de garantir une faible incertitude sur la distribution finale. Nous avons testé la mise en œuvre de cette technique dans une flamme de diffusion d'éthylène sans succès car la source blanche n'était pas assez puissante pour produire un signal de diffusion se démarquant suffisamment de l'émission propre de la flamme. Les futurs travaux pourront se concentrer sur le passage en flamme à l'aide d'une source laser polychromatique plus puissante ou de plusieurs sources monochromatiques réparties sur une grande gamme de longueurs d'onde.

Chapitre 5. Analyse des mécanismes de formation des particules de suie

Les chapitres précédents ont exposé les moyens mis en œuvre et les techniques développées afin de caractériser au mieux les mécanismes de formation associés aux flammes produites par le brûleur swirlé et stratifié (SIRIUS). Dans ce chapitre, les résultats obtenus par ces techniques et leur analyse permettant d'aboutir à une description précise de la formation et de l'oxydation des suies seront détaillés. Les caractérisations de l'écoulement, des zones de réaction et de la température du milieu seront d'abord proposées avant de se tourner vers les particules de suie et leurs précurseurs. Cette caractérisation complète permet une compréhension de l'historique des suies et de ses interactions physico-chimiques avec le milieu l'environnant.

5.1 Champs de vitesse

On présente sur la Figure 80 les moyennes temporelles de la norme de la vitesse $||\vec{U}||$ calculées sur 1000 champs instantanés, pour les six points de fonctionnement de la flamme. On appelle r la distance radiale par rapport au centre du brûleur (axe y) et HAB (Height Above the Burner) la hauteur par rapport à la sortie du brûleur (axe x). On rappelle que les champs analysés en PIV ont une hauteur de 50 mm et qu'on a donc ici affaire à deux mesures distinctes d'un champ centré radialement entre HAB = 0 mm et HAB = 45 mm et d'un champ décalé radialement entre HAB = 45 mm et HAB = 90 mm environ. Un schéma de la coupe longitudinale de la sortie du brûleur est ajouté en dessous du point 5 afin d'interpréter les résultats vis-à-vis de la sortie de l'injecteur. La direction moyenne des vecteurs vitesse est visible grâce à la représentation des lignes de courant de l'écoulement. On observe pour toutes les conditions opératoires un écoulement provenant de la couronne externe de vitesse moyenne comprise entre 12 et 15 $m.s^{-1}$ et un écoulement interne autour de 5 $m.s^{-1}$. On observe une augmentation de la vitesse du jet externe lorsque la stratification diminue alors que la vitesse du jet interne reste constante. En effet, comme décrit dans la section 3.1.3, la richesse du mélange externe se rapproche de 1 lorsque la stratification diminue, ce qui entraîne une augmentation du dégagement de chaleur de la combustion et donc une augmentation de l'expansion des gaz. La vitesse du jet externe présente également une augmentation lorsque le swirl est plus élevé. Il est possible que cette augmentation soit relative à un meilleur mélange entre les écoulements interne et externe qui augmente la richesse locale dans la zone de réaction aboutissant ainsi au même phénomène que pour une augmentation de stratification. Tous les points de fonctionnement présentent une zone de recirculation centrale (IRZ) avec des vitesses verticales négatives comprises entre 1 et 4 $m.s^{-1}$. L'IRZ se caractérise sur les champs moyens par une grosse structure tourbillonnaire toroïdale. La longueur de pénétration de l'IRZ à l'intérieur de la flamme est variable selon les points de fonctionnement. On observe une augmentation de la pénétration des gaz lorsque le swirl augmente avec un attachement de l'IRZ au bluff-body (pastille en céramique du tube central) pour les points de fonctionnement 2, 3 et 6. La stratification joue aussi un rôle important puisqu'une augmentation de celle-ci provoque une intensification de la pénétration des gaz à l'intérieur de la flamme.

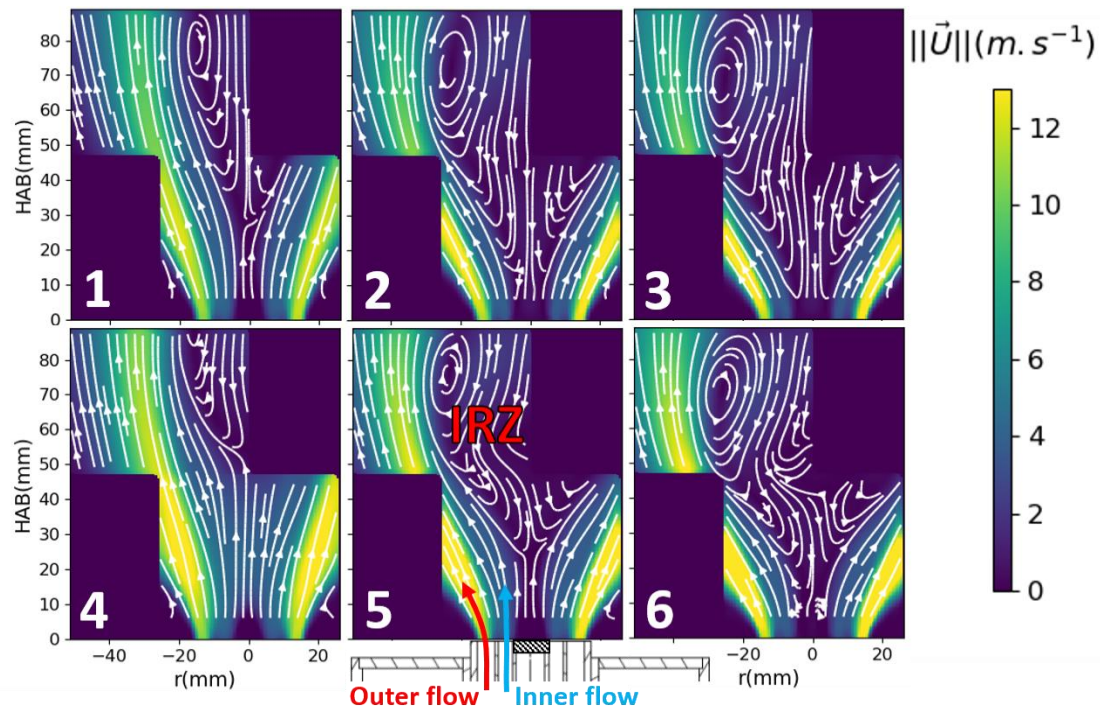


Figure 80 : Moyennes temporelles des champs de vitesse pour les 6 points de fonctionnement.

L'angle d'ouverture de l'écoulement est influencé par l'intensité du swirl avec laquelle la vitesse tangentielle augmente et tend à expulser les gaz vers l'extérieur de la flamme. On définit ici l'angle d'ouverture comme l'angle formé entre l'axe vertical du brûleur et la ligne de courant passant par le centre de l'écoulement externe. On trouve un angle d'environ 15° pour les points les moins swirlés (1 et 4), 25° pour les swirls intermédiaires (2 et 5) et 30° pour les swirls élevés (3 et 6). Contrairement aux champs moyens, les champs instantanés (Figure 81) présentent de nombreuses structures tourbillonnaires de diverses tailles et réparties dans l'IRZ. Les gaz qui recirculent proviennent de la couronne interne, mais aussi de la couronne externe. On peut observer ce phénomène sur l'image de gauche de la Figure 81 avec les lignes de courant du jet externe qui se courbent vers l'intérieur de la flamme et vers la sortie du brûleur avec une vitesse axiale négative. Le mélange turbulent des gaz provenant des écoulements interne et externe est alors favorisé dans la zone de recirculation centrale par la présence de tourbillons.

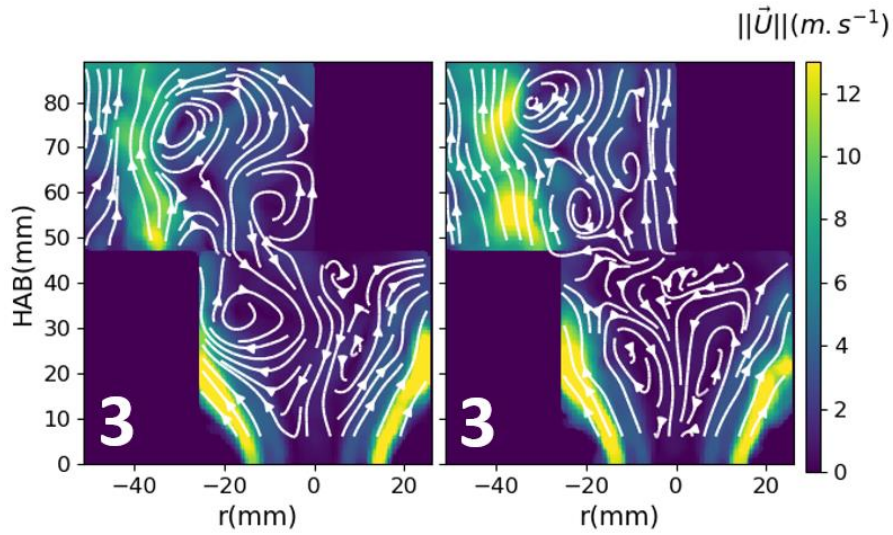


Figure 81 : Exemple de deux champs de vitesse instantanés pour le point de fonctionnement 3.

Le taux de cisaillement local dans le plan xy est calculé de la manière suivante :

$$S_{xy} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_x}{\partial y} + \frac{\partial u_y}{\partial x} \right) \quad (111)$$

Il est présenté sur la Figure 82 pour les trois points de fonctionnement les plus stratifiés. On détecte la formation de trois couches de cisaillement provoquées par les gradients de vitesse entre les différents écoulements. La couche de cisaillement externe (abrégé OSL pour outer shear layer) se situe entre le jet externe et le co-flow, la couche de cisaillement intermédiaire (abrégé MSL pour middle shear layer) entre l'écoulement interne et externe et la couche de cisaillement interne (abrégé ISL pour inner shear layer) entre l'IRZ et le jet interne. Les vitesses dans cette dernière sont proches de 0 m.s^{-1} car les vitesses axiales dans l'IRZ sont négatives tandis qu'elles sont positives dans le jet interne. On remarque que le cisaillement diminue globalement avec la hauteur car les vitesses et les gradients de vitesse diminuent avec l'expansion radiale de la flamme. Des cisaillements intenses sont trouvés dans l'OSL et la MSL avec des valeurs moyenne autour de 1000 s^{-1} dans la partie basse de la flamme. Les différences de vitesse entre l'IRZ et le jet interne sont moindres ce qui aboutit à des valeurs de S_{xy} autour de 300 s^{-1} . On remarque aussi que la MSL et l'ISL se rejoignent et finissent par former une seule couche de cisaillement étendue radialement et où l'intensité du cisaillement est faible (autour de 300 s^{-1}). Cette jonction s'effectue à des hauteurs allant de 30 mm à 50 mm selon le swirl et la stratification. Les fluctuations temporelles de vitesse sont évaluées en calculant l'écart-type des champs de vitesse sur 1000 champs instantanés (voir Figure 83).

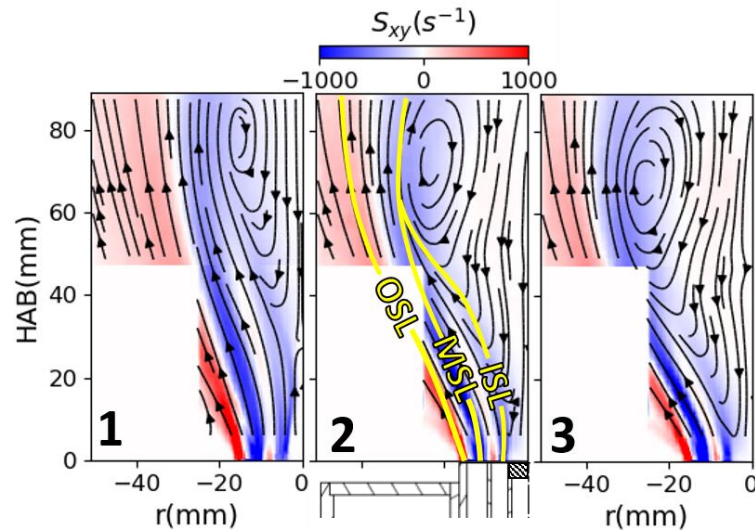


Figure 82 : Champs de taux de cisaillement locaux moyennés temporellement pour les points de fonctionnement 1, 2 et 3.

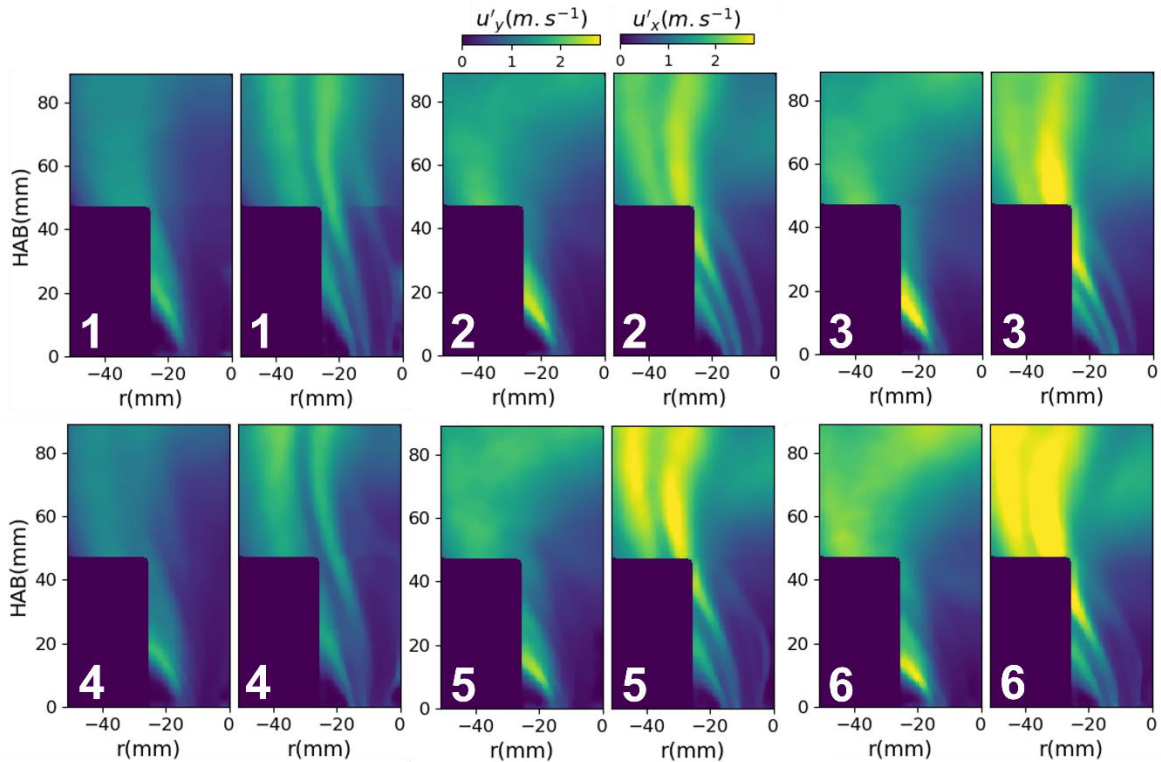


Figure 83 : Niveaux de fluctuations de vitesse (écarts-types) pour la vitesse radiale à gauche et axiale à droite pour chaque point de fonctionnement.

Globalement, les fluctuations temporelles de vitesse augmentent avec le swirl et diminuent avec la stratification. On a déjà vu que les vitesses moyennes suivaient cette tendance, ce qui entraîne une augmentation du nombre de Reynolds de l'écoulement et des phénomènes turbulents plus intenses que l'on observe à travers ces fluctuations de vitesse. Les fluctuations radiales (u'_y) sont surtout concentrées dans l'OSL et l'IRZ. Les zones de fortes fluctuations axiales (u'_x) se superposent avec les zones de cisaillement élevé présentées sur la Figure 82. Il semble logique que ces deux quantités soient corrélées puisque le cisaillement

est justement provoqué par des variations de vitesse. On observe que l'augmentation du swirl déplace vers la base du brûleur les zones d'intenses fluctuations de vitesse au sein de l'IRZ.

5.2 Analyse des zones réactives

On a vu dans le Chapitre 2 que le radical OH est produit par des réactions de combustion et subsiste ensuite dans la flamme tout en étant progressivement consommé. Son signal de fluorescence, ou plus précisément le gradient de ce signal peut alors être utilisé pour localiser la zone hautement réactive où la réaction de combustion se produit. Cette région, également appelée front de flamme, mesure quelques centaines de micromètres d'épaisseur et provoque d'intenses taux de dégagement de chaleur. Puisque le radical OH ne disparaît pas immédiatement après le front de flamme, nous nous en servons comme un marqueur des gaz brûlés à haute température. On rappelle que le radical OH est une espèce oxydante majeure des HAP et des suies. Il est donc important de localiser cette espèce chimique qui aura un impact sur le niveau de production de suie en sortie de flamme. Les champs moyens de PLIF-OH ont été calculés avec 1000 images instantanées. Ils sont présentés pour les six points de fonctionnement sur la Figure 84 accompagnés d'images instantanées typiques des 1000 images disponibles. On remarque sur tous les points de fonctionnement que le signal de fluorescence de OH est concentré sur la partie externe de la flamme. Le schéma de la sortie du brûleur est ajouté à l'image du point 5 de la Figure 84. La flamme est accrochée au tube qui sépare la couronne interne de la couronne externe. Il est possible d'extraire le front de flamme des images de fluorescence de OH. La méthode utilisée ici se base sur l'application à l'image de fluorescence de filtres de Sobel dans quatre directions : verticale, horizontale, 135° et 45°. Les différentes images obtenues sont ensuite seuillées en appliquant la méthode d'OTSU afin de créer un masque contenant seulement les pixels où le gradient de signal de OH est élevé. Plusieurs groupes de pixels non connectés peuvent être inclus dans le masque à cette étape. Le groupe correspondant au front de flamme est isolé grâce au fait qu'il est attaché au brûleur sur le bord inférieur de l'image. On peut voir un exemple de résultat sur la Figure 85 (a). On remarque sur la Figure 84 que le front de flamme est plus ou moins plissé selon le point de fonctionnement et la hauteur au-dessus du brûleur. Cette ondulation témoigne de la turbulence dans la zone d'interaction entre les gaz chauds et les gaz frais et impacte le taux de dégagement de chaleur [243]. Nous avons évalué l'intensité de la courbure du front de flamme en calculant sa dimension fractale dans des régions d'intérêt à différentes hauteurs pour tous les points de fonctionnement. De la même manière que pour les suies, la dimension fractale D_2 quantifie la proximité morphologique du front de flamme avec une structure purement 1D (une ligne) auquel cas elle sera égale à 1 ou 2D (un plan) ou elle sera égale à 2.

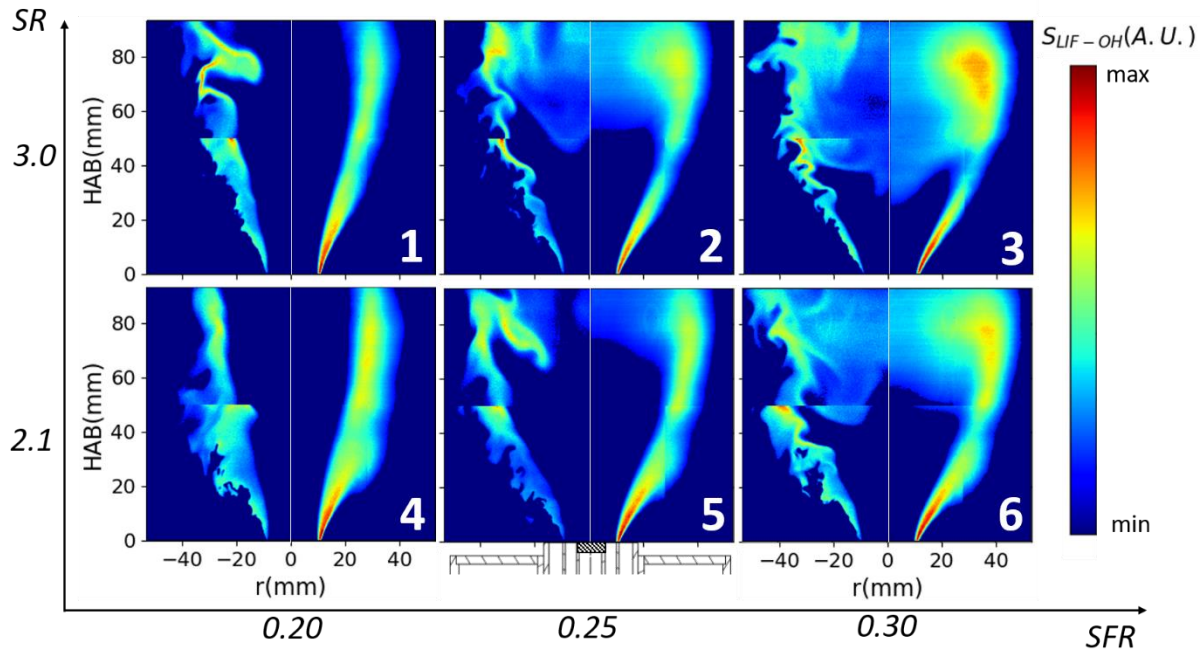


Figure 84 : A gauche pour chaque point de fonctionnement : champs instantanés de PLIF-OH. A droite: Champs moyens sur 1000 images instantanées.

Le calcul de cette grandeur est effectué avec des opérations morphologiques successives de dilatation par des éléments structurants de plus en plus grands suivies d'un calcul de surface des pixels appartenant au front de flamme après chaque dilatation. En échelle logarithmique, le tracé de la surface du front de flamme en fonction de la taille de l'élément structurant permet alors d'obtenir une droite de pente $2 - D_2$ [244]. La dimension fractale est ainsi évaluée pour tous les points de fonctionnement et dans des régions d'intérêt (ROI) de 9 mm de hauteur. Les résultats sont exposés sur la Figure 85 (b). Proche de la sortie du brûleur et au-dessus de $HAB = 30$ mm, on note que les dimensions fractales sont égales quelles que soient les conditions opératoires. Des différences sont observées dans les deux ROIs intermédiaires avec une augmentation de la dimension fractale lorsque la stratification diminue et lorsque le swirl augmente. La flamme est donc accrochée au tube situé entre la couronne interne et externe mais, même en comparant les champs moyens de OH et de vitesse, il est difficile de comprendre comment le front de flamme se propage en aval. Pour cela, une mesure de champs instantanés corrélés est indispensable. Cela a été effectué selon le dispositif expérimental présenté dans la section 3.2.9. La Figure 86 (a) représente un exemple obtenu sur la condition opératoire 1 et permet de mieux comprendre la propagation du front de flamme et son interaction avec l'écoulement. Le front de flamme se situe dans les 3 à 4 premiers millimètres dans la zone de cisaillement intermédiaire matérialisée par un iso-contour bleu représenté avec la mention « MSL ». Cette zone de mélange entre le mélange interne riche et le mélange externe pauvre présente probablement une richesse plus proche de 1 que les deux mélanges seuls, ce qui favorise l'accrochage de la flamme en cette position. Le front de flamme se propage ensuite exclusivement à l'intérieur du jet externe en se rapprochant progressivement de l'OSL. Cette image permet également d'observer les différentes couches de cisaillement évoquées dans la section 5.1 sur les champs instantanés. La Figure 86 (b) présente les mêmes données mais dans le haut de flamme et pour la condition opératoire 2. Il est beaucoup plus difficile à cette hauteur de définir clairement les couches de cisaillement sur des images instantanées car la turbulence cohérente de l'écoulement, caractérisée par des structures tourbillonnaires entre l'IRZ et le jet interne, est plus importante. Le gradient de OH est beaucoup moins élevé dans cette zone ce qui sous entend une diminution de la

combustion et que le signal détecté résulte en grande partie du transport du radical hydroxyle jusqu'à de telles hauteurs. On se rend alors bien compte sur cette image de l'interaction entre les distributions spatiales instantanées de OH et de vitesse avec des enroulements du radical OH dans les structures tourbillonnaires.

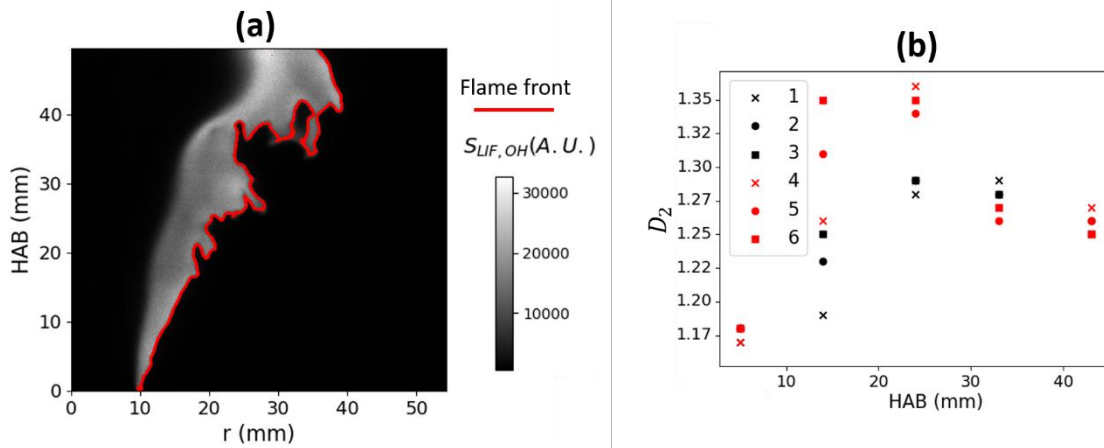


Figure 85 : (a) Exemple de front de flamme extrait des images de PLIF-OH. (b) Dimension fractale du front de flamme en fonction de la hauteur (milieu de la ROI) et du point de fonctionnement.

La zone de recirculation centrale est bien visible sur cet instantané. On peut observer l'effet de la stratification et du swirl sur la recirculation des gaz chauds dans l'IRZ sur la Figure 84. De manière générale, un swirl élevé augmente la recirculation de OH et diminue ainsi la hauteur jusqu'à laquelle les gaz chauds pénètrent vers le centre de la flamme. De faibles gradients de OH sont mesurés dans l'IRZ, ce qui suggère un transport dominant et une production de OH quasi-nulle dans cette partie de la flamme.

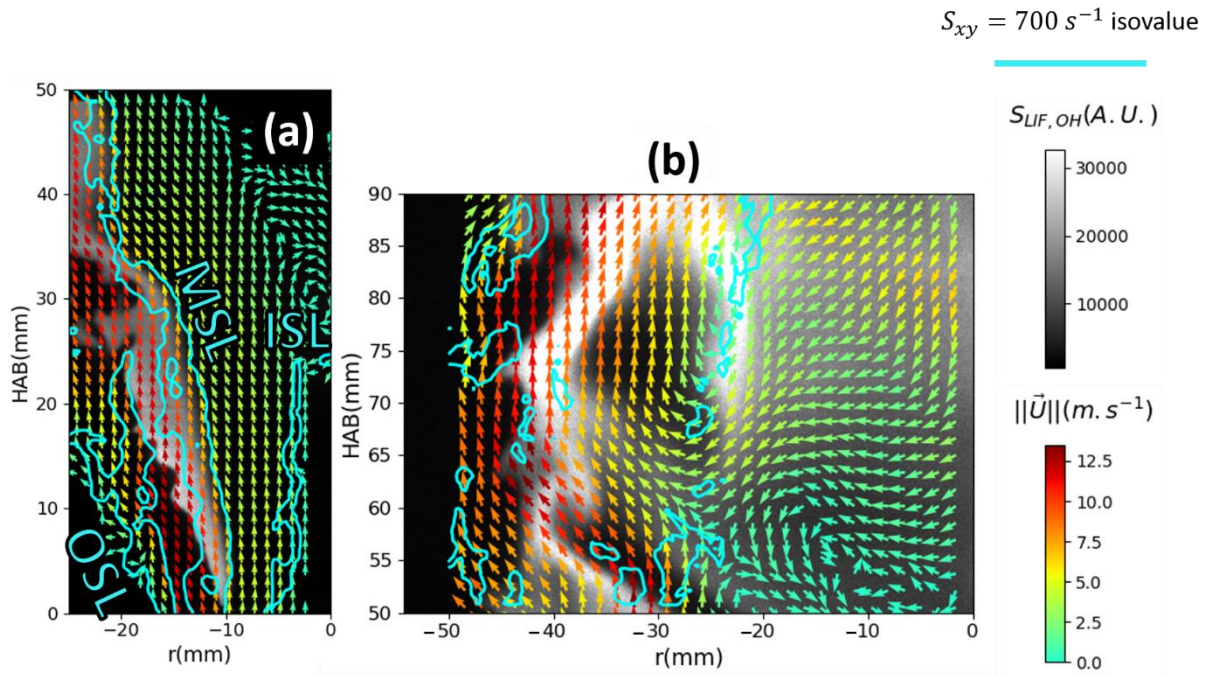


Figure 86 : Champs instantanés de LIF-OH et de vitesses enregistrés simultanément sur le point de fonctionnement 1. Les lignes bleues représentent l'isovaleur 700 s^{-1} du taux de cisaillement local. S_{xy} est supérieur à cette valeur à l'intérieur de ces zones.

5.3 Mesures de température

Les températures présentées dans cette section sont corrigées du rayonnement grâce à la procédure détaillée dans la section 2.6.4. Les mesures sont effectuées selon trois profils radiaux à $HAB = 16, 36$ et 56 mm et un profil axial ($r = 0$ mm) dans les trois points de fonctionnement les plus stratifiés (1, 2 et 3). Les positions de chaque mesure sont visibles sur la Figure 87. Les résultats sont présentés sur la Figure 88. En analysant le profil axial, on se rend compte que les températures dans l'IRZ sont globalement élevées pour les trois points de fonctionnement. Dans la partie basse de la flamme ($16 \text{ mm} < HAB < 40 \text{ mm}$), les températures sont fonction de l'intensité du swirl. En effet, la recirculation des gaz chauds provenant du front de flamme est favorisée par l'augmentation du swirl comme on a pu l'observer avec les mesures de PLIF-OH (Figure 84). Même si une IRZ est observée pour tous les points de fonctionnement, l'augmentation du swirl va diminuer la hauteur pour laquelle les gaz chauds produits en périphérie de la flamme vont pénétrer au centre de la flamme et va accentuer les vitesses axiales négatives (voir Figure 80). Le temps de transit des gaz chauds entre le front de flamme et l'IRZ sera donc réduit et il en sera de même pour les pertes thermiques. Au-dessus de $HAB = 40$ mm, les températures des points de fonctionnement 1 et 3 tendent vers une valeur de 1800 K tandis que le point 2 présente des températures pouvant aller jusqu'à 2000 K . Si on s'intéresse maintenant aux profils radiaux, on se rend compte sur la courbe à $HAB = 16$ mm que la température est fonction de la position radiale. En effet, on observe pour les trois points de fonctionnement un plateau dans l'IRZ puis une chute brutale 1 à 2 millimètres après l'ISL. Cette région correspond au jet interne froid. Les températures à l'intérieur de l'écoulement interne se situent entre 500 et 800 K selon le point de fonctionnement. Si on continue de s'éloigner du centre du brûleur, on observe une augmentation rapide de la température due au contact direct avec les gaz émanant du front de flamme. Cette augmentation n'est pas reportée ici car les thermocouples approchés du front de flamme ont tous été endommagés. Le profil radial à $HAB = 36$ mm montre des comportements similaires avec cette fois-ci une réduction moins

marquée de la température dans l'écoulement interne. En effet, les échanges de chaleur avec les gaz chauds du jet externe et de l'IRZ contribuent à l'augmentation en température du jet interne de la sortie du brûleur jusqu'à cette position. Ce réchauffement de l'écoulement interne est d'ailleurs accentué lorsque le swirl est élevé car, comme nous l'avons vu précédemment, la température dans l'IRZ est plus élevée que lorsque le swirl est faible. On observe donc encore une réduction de température à l'entrée dans le jet l'interne pour un HAB de 56 mm pour le point 1 (swirl faible). De manière générale, les profils radiaux de température présentent de faibles variations de température moyenne dans l'IRZ conformément à ce qui avait été mesuré par Sweeney et al. [228] sur des flammes swirlés et stratifiés méthane/air dans le même type de brûleur.

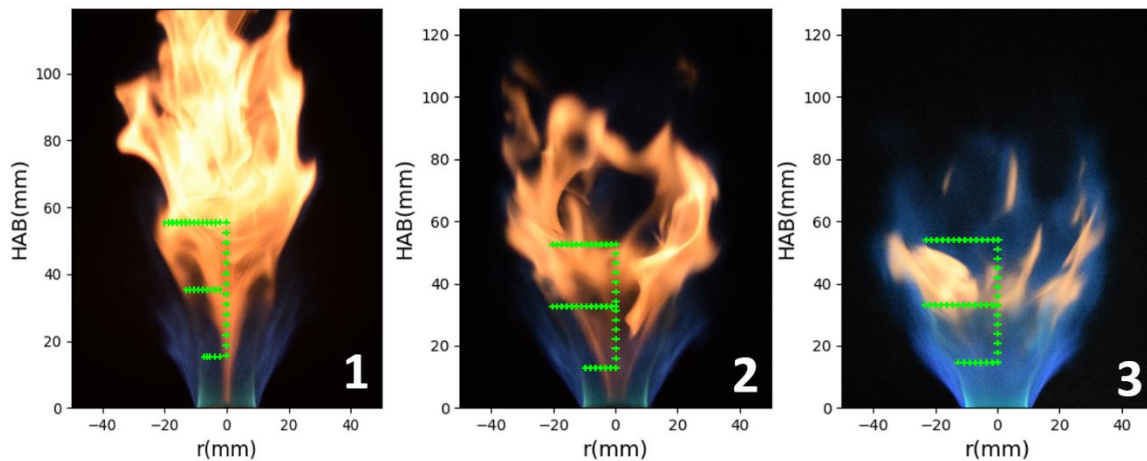


Figure 87 : Position des mesures de température.

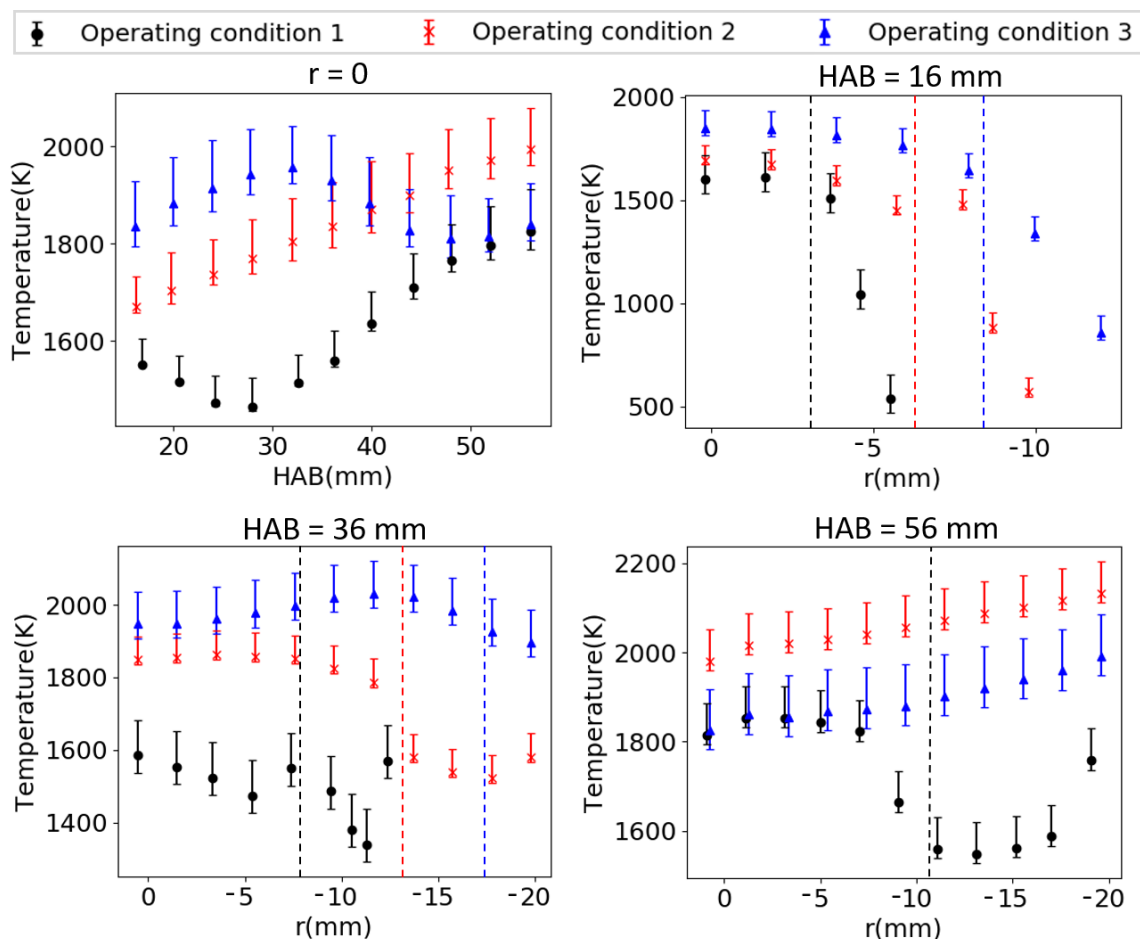


Figure 88 : Profil de température axial à $r = 0$ mm (en haut à gauche) et profils radiaux à HAB = 16 mm, 36 mm, 56 mm. Les pointillés représentent les positions radiales des couches de cisailage internes. Les barres représentent les incertitudes associées aux mesures.

5.4 Précurseurs de suie

5.4.1 Mesures non-couplées

Les mesures de PLIF-HAP non-couplées, c'est-à-dire dans l'intervalle de longueur d'onde [350 - 400 nm] sont présentées sur la Figure 89 où l'on retrouve les champs moyens et un exemple de distribution 2D instantanée pour chacun des points de fonctionnement. On rappelle que les distributions spatiales dans le bas de la flamme (HAB compris entre 0 et 50 mm) et dans le haut de la flamme (HAB de 50 à 90 mm) ne sont pas corrélés temporellement et que les HAP détectés sont principalement des di-aromatiques. Les champs moyens montrent pour tous les points de fonctionnement un long filament de HAP émanant de la couronne interne et qui semble être contenu dans l'écoulement interne sur toute sa hauteur (entre l'ISL et la MSL). Ce filament est creux, c'est-à-dire que l'on ne détecte pas de PAH en son centre. On observe que les hauteurs auxquelles les HAP subsistent sont fonction des conditions de swirl et de stratification : le swirl diminue la hauteur à laquelle les HAP disparaissent tandis que la stratification l'augmente. Les mesures instantanées montrent des caractéristiques similaires aux champs moyens. Peu de variabilité dans le positionnement des HAP est observée. Cependant des lâchés de poches de HAP sur des instantanés sont quelquefois observés.

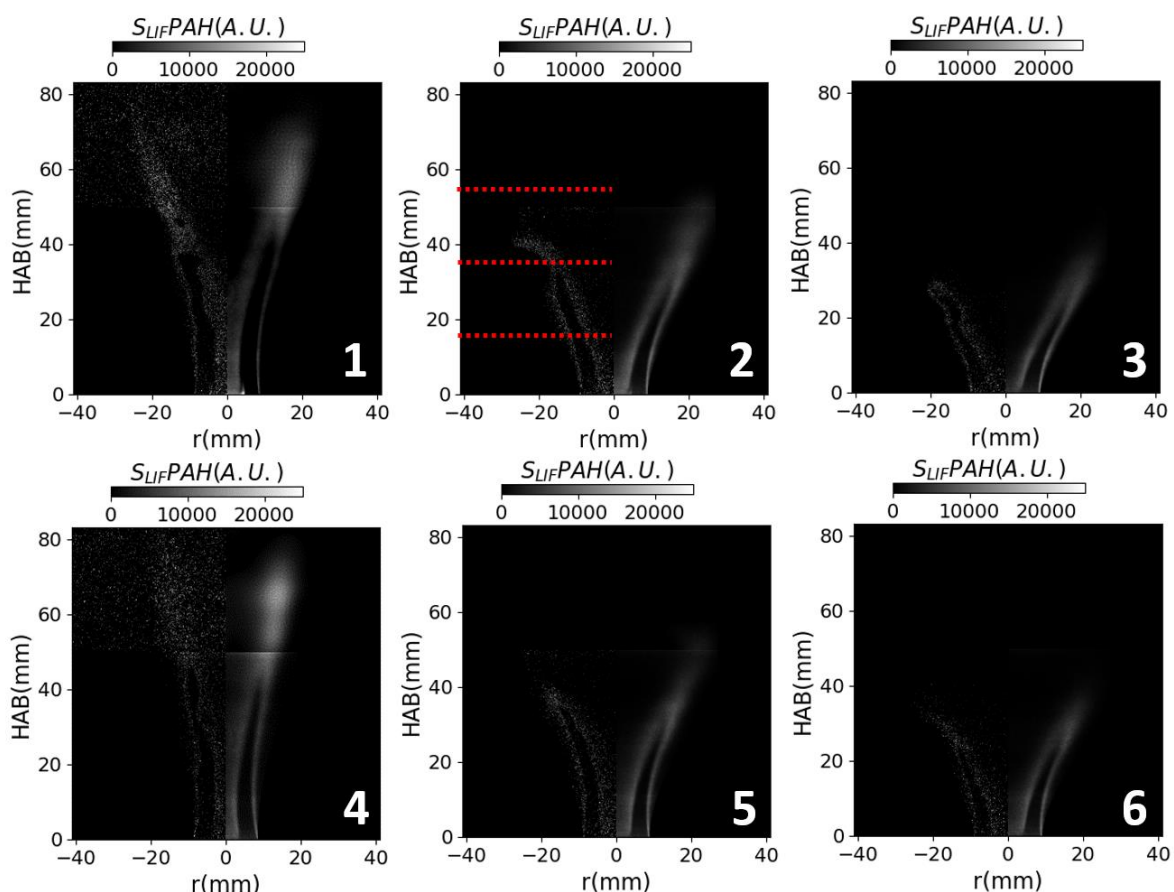


Figure 89 : Champs instantanées (gauche) et moyens (droite) de PLIF-HAP pour les six points de fonctionnement. Les lignes pointillées rouge sur le point 2 correspondent à des profils étudiés dans la suite de l'étude.

Concernant la qualité des mesures, un faible rapport signal-à-bruit sur ces images instantanées est observé. Ce résultat provient des faibles signaux mesurés pendant ces expériences et donc au bruit de grenaille qui est relativement fort surtout sur les champs instantanés. Notons que ce faible signal souligne une concentration de HAP relativement faible. Afin de réduire cette source de bruit, un filtre médian de taille 5 pixels x 5 pixels est appliqué aux images de fluorescence brutes.

Afin d'analyser ces images, on se propose de corrélérer ces données aux quantités déjà présentées dans les sections précédentes, c'est-à-dire le champ aérodynamique, le champ de température et la distribution spatiale de radicaux OH. Ces corrélations seront réalisées sur des champs moyens mais également sur des champs instantanés puisque des mesures couplées et simultanées de PIV, LII, PLIF-OH et PLIF-HAP ont été réalisées.

5.4.2 Interactions avec l'écoulement et les distributions spatiales de OH et de température

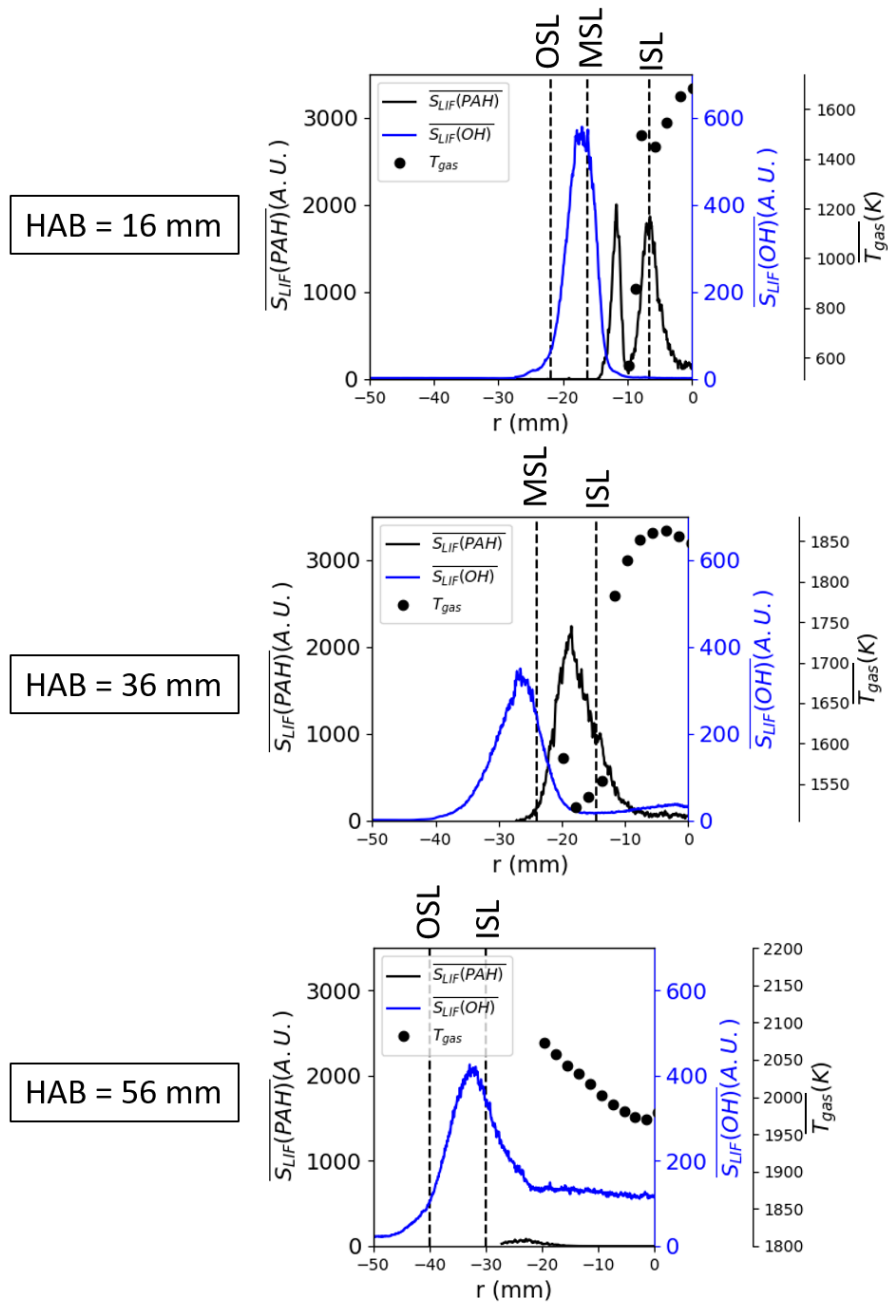


Figure 90 : Profils radiaux moyens de fluorescence sur OH (ligne bleue), HAP (ligne noire) et de température de gaz (disques noirs) pour le point de fonctionnement 2 et pour les HAB couverts par les mesures par thermocouple.

Afin d'interpréter précisément les observations réalisées sur les HAP dans la section précédente, nous allons étudier l'interaction des HAP avec les autres grandeurs physiques déjà mesurées et étudiées, c'est-à-dire la fluorescence sur OH, l'aérodynamique et la température du gaz. On se concentre sur trois profils radiaux sur le point de fonctionnement 2 à trois hauteurs correspondantes aux mesures de température par thermocouple : HAB = 16 mm, HAB = 36 mm et HAB = 56 mm. Pour une représentation visuelle, ces profils sont tracés sur la Figure 89. La Figure 90 détaille en ces trois hauteurs l'évolution radiale du signal de PLIF-

HAP, de PLIF-OH et de température. Les positions des couches de cisaillement définies dans la section 5.1 sont marquées par des lignes verticales pointillées. La flamme étant axisymétrique en valeur moyenne, seule une moitié de flamme est traitée ici (r négatif). A $HAB = 16$ mm, la courbe associée aux HAP présente deux pics espacés d'environ 5 millimètres avec un creux au milieu qui était déjà identifié sur les champs 2D. La majorité du signal est contenu dans le jet interne (entre l'ISL et la MSL) et le pic le plus proche de l'axe du brûleur se situe à la même position que la couche de cisaillement interne. Ce signal décroît ensuite dans l'IRZ vers le centre du brûleur mais y persiste pendant quelques millimètres et est même non-nul à $r = 0$ mm. Il décroît également à l'encontre de l'écoulement externe à cause des gaz brûlés chargés de OH et à haute température, conditions qui, on le rappelle, sont favorables à l'oxydation des aromatiques. Cette décroissance en périphérie survient un peu avant la MSL, qui marque l'entrée dans le jet externe, puisque les gaz brûlés arrivent à pénétrer dans cette région (début du pic de OH). Aucun signal détectable de PLIF-OH n'est observé dans l'IRZ à cette hauteur et les températures y sont suffisamment basses pour que persistent les HAP que l'on détecte (faible nombre de cycles benzéniques). La décroissance brutale du signal de PLIF-HAP entre les deux pics est corrélée à une décroissance toute aussi nette de la température mesurée par thermocouple. Cette observation témoigne de la décomposition thermique (pyrolyse) du combustible étant en atmosphère riche. Il semble que cette décomposition débute entre 800 et 1300 K selon les points de fonctionnement (déterminé en prenant la mi-hauteur du pic de HAP et la température associée). Il faut cependant prendre du recul sur l'analyse de cet intervalle de température à la vue des incertitudes de la mesure de température dans une zone présentant de forts gradients. Cette étude donne cependant un ordre de grandeur réel et montre que la pyrolyse du combustible débute à des températures relativement faibles en comparaison de la température de flamme ou de celle des gaz brûlés. A $HAB = 36$ mm, la température au centre du filament de HAP est plus élevée que la limite supérieure de l'intervalle défini ci-dessus (environ 1300 K) puisque qu'elle s'élève à environ 1600 K. Le creux au milieu des deux pics a donc disparu puisque les températures à l'intérieur du jet interne ne permettent pas au combustible gazeux de subsister. On observe un pic plus large qui s'étale moins dans l'IRZ car, à cette hauteur, la présence de OH dans cette zone de recirculation centrale couplée à des températures élevées (> 1700 K) est détectée. Il est également possible que les HAP continuent à croître vers des molécules de plus grandes tailles, consommant ainsi les HAP détectés dans étude. Ce scénario est hautement plausible pour les points de fonctionnement et les hauteurs où l'on détecte peu de OH dans l'IRZ. Vers les grandes positions radiales, un comportement similaire à celui observé à 16 mm est constaté : une décroissance à l'approche des gaz brûlés provenant de l'écoulement externe. A $HAB = 56$ mm, la recirculation des gaz brûlés provoque un intense signal de PLIF-OH et des températures élevées (> 2000 K) dans l'IRZ qui s'étend en périphérie jusqu'au front de flamme et empêche donc l'existence des HAP à cette hauteur, ces derniers étant complètement oxydés dans toute la flamme.

Ces observations et conclusions réalisées sur les images moyennes sont confirmées par les mesures couplées et corrélées temporellement. Des exemples pour les trois points de fonctionnement à trois instants différents sont présentés sur la Figure 91. On retrouve les HAP cernés par le front de flamme en périphérie et l'IRZ au centre. Ces mesures permettent de constater que les HAP ne sont jamais superposés temporellement et spatialement avec le radical OH qui les consomme chimiquement. La recirculation de OH est bien responsable de l'absence des HAP à des grandes hauteurs pour les points de fonctionnement les plus swirlés. Ceci est particulièrement visible sur le point 3 : le filament de HAP de gauche se prolonge pratiquement jusqu'au bord supérieur de l'image tandis que la présence de OH stoppe la progression du filament de droite à un HAB d'environ 30 mm.

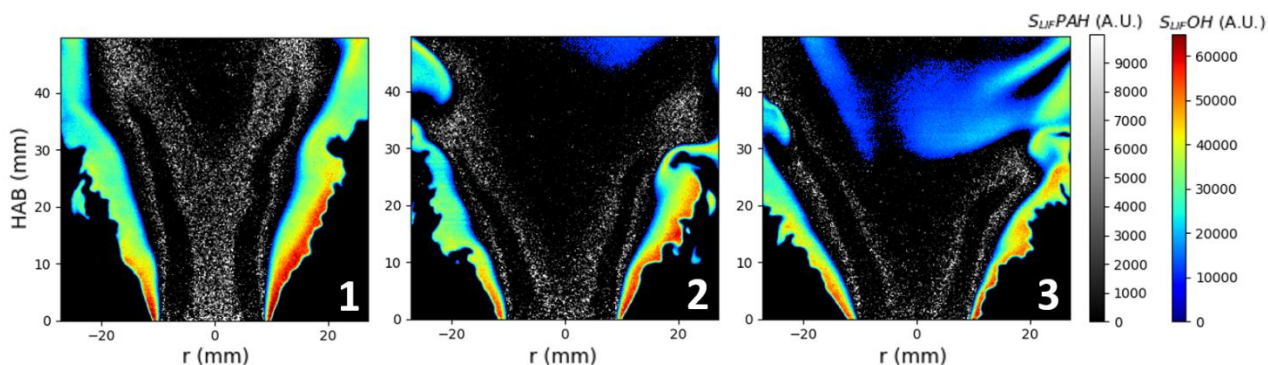


Figure 91 : Mesures couplées instantanées de PLIF-HAP et PLIF-OH pour les trois points de fonctionnement les plus stratifiés.

5.5 Fractions volumiques de suie

Afin de quantifier les fractions de volume dans la flamme, la LII auto-compensée est utilisée ici. La procédure d'étalonnage permettant la conversion des signaux de LII en fraction volumique de suies a été détaillée dans le Chapitre 2, section 2.5.4.2 ainsi que dans le Chapitre 4. Pour toute information relative à la technique de mesure, le lecteur est prié de se référer à ces sections. Les f_v qui sont présentées dans ce chapitre ne sont pas corrigés du déclin temporel de la température d'incandescence sur la durée d'acquisition des caméras (section 4.2) puisqu'on a vu que l'erreur produite par ce phénomène était relativement faible (environ 10 %). De plus, nous verrons que nous ne disposons pas des champs de diamètre des sphérules primaires D_p pour tous les points de fonctionnement, ce qui est indispensable au calcul de fraction volumique avec prise en compte du déclin temporel du signal d'incandescence $f_{v,CC}$. Les fractions volumiques sont notées f_v dans ce chapitre afin de ne pas compliquer les notations mais font référence à $f_{v,NC}$ défini dans le chapitre précédent. Les signaux collectés pour les points de fonctionnement dont la stratification est égale à environ 2,1 sont très faibles au point d'être confondus avec le bruit. On se concentrera donc sur les conditions opératoires 1, 2 et 3.

5.5.1 Champs moyens

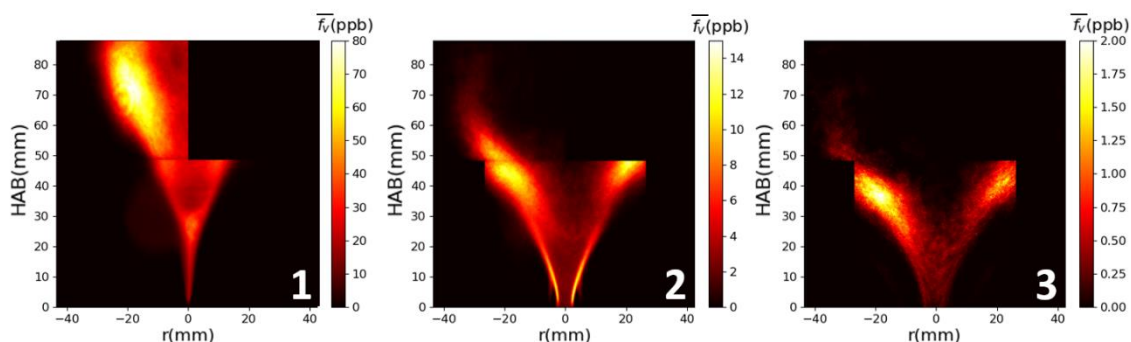


Figure 92: Champs moyens de fraction volumique de suies pour les trois points de fonctionnement les plus stratifiés.

Les champs moyens de fraction volumique ($\bar{f}_v$) sont présentés sur la Figure 92 pour les points de fonctionnement 1, 2 et 3. Les particules de suie sont contenues dans la zone de recirculation centrale pour les trois points de fonctionnement avec des maxima situés en périphérie de celle-ci. On observe aussi, surtout dans les cas 2 et 3, dans le bas de la flamme un fin filament où les fractions de volume augmentent au niveau de l'ISL. Les valeurs des fractions volumiques moyennes (les échelles ne sont pas les mêmes dans la figure) ainsi que les hauteurs auxquelles les suies sont consommées sont dépendantes du niveau de swirl de l'écoulement puisque on observe une réduction globale de $\bar{f}_v$ d'un facteur dix lors d'un passage de SFR = 0,20 à SFR = 0,25 (point 1 à 2) puis d'un autre ordre de grandeur de SFR = 0,25 à SFR = 0,30 (point 2 à 3). Ce comportement provient en partie de l'augmentation de l'intermittence de la production de suie lors de l'augmentation du swirl. En effet, les niveaux de turbulence augmentent avec le swirl surtout dans l'IRZ et au niveau des couches de cisaillement (voir Figure 83). Comme expliqué dans le Chapitre 2, ceci est un frein à la production de suie, surtout lors de l'étape de la nucléation. Puis, la recirculation des gaz brûlés à haute température entraîne la présence d'espèces oxydantes comme le radical OH pour lesquelles les distributions spatiales ont été mesurées mais aussi l'oxygène qui est probablement présent en grande quantité dans l'IRZ puisque le mélange externe est pauvre et que la recirculation entraîne aussi l'air provenant de l'extérieur. La pénétration de l'IRZ à l'intérieur de la flamme est plus élevée lorsque le swirl augmente (voir Figure 84) et crée, à des HAB réduits, des conditions propices à l'oxydation des suies : c'est-à-dire la présence d'oxygène et de OH et niveaux de température élevée.

L'intermittence peut être quantifiée par l'indice Ω exprimé par l'équation (88) dont on rappelle que la valeur est proche de 1 lorsque l'intermittence est forte (probabilité faible d'observer des particules de suie) et proche de 0 à l'inverse. Cet indicateur est calculé à l'aide d'un seuillage des images brutes et est présenté sur la Figure 93 (ligne du haut). On observe bien une élévation marquée de l'intermittence lorsque le swirl augmente avec des valeurs de Ω minimales voisines de 0 pour le point de fonctionnement 1 alors que le point de fonctionnement 3 impose des valeurs supérieures à 0,92. On observe que l'intermittence n'est pas uniforme puisqu'elle augmente dans les trois cas dans la zone de recirculation centrale et elle est minimale à la jonction entre l'IRZ et le jet interne, c'est-à-dire au niveau de l'ISL. On peut ensuite calculer les fractions volumiques moyennées dans le temps mais avec un calcul conditionné par la présence de suie ($\tilde{f}_v$). C'est-à-dire que seuls les pixels dont le signal d'incandescence est supérieur au seuil imposé sont considérés dans le processus de moyennage (voir 4.2.4.2 pour plus d'informations). Cette stratégie de calcul permet d'évaluer la fraction volumique à l'intérieur des poches de suie sans que l'intermittence n'intervienne. Elles sont présentées sur la Figure 93 (ligne du bas). De manière globale, on observe des niveaux de fraction volumique plus élevés pour ce type de moyennage que pour la moyenne classique, cette tendance étant d'autant plus marquée que l'intermittence augmente. Les distributions spatiales ainsi obtenues sont plus uniformes, indiquant au passage que la fraction volumique des suies au sein des poches ne dépend visiblement pas significativement de la position de ces dernières. Cependant, pour les points de fonctionnement 2 et 3, les fractions volumiques au sein des poches semblent plus élevées dans la partie supérieure de la flamme. Enfin, la fraction volumique au sein des poches décroît avec l'augmentation du swirl avec une diminution réduite d'un facteur $\sim 1,5$ lors du passage du point de fonctionnement 1 au point 2 et à un facteur ~ 4 entre le point 2 et 3. L'intermittence seule ne permet donc pas d'expliquer la diminution observée des fractions volumiques de suie, les processus de formation et de croissance sont également moins efficaces.

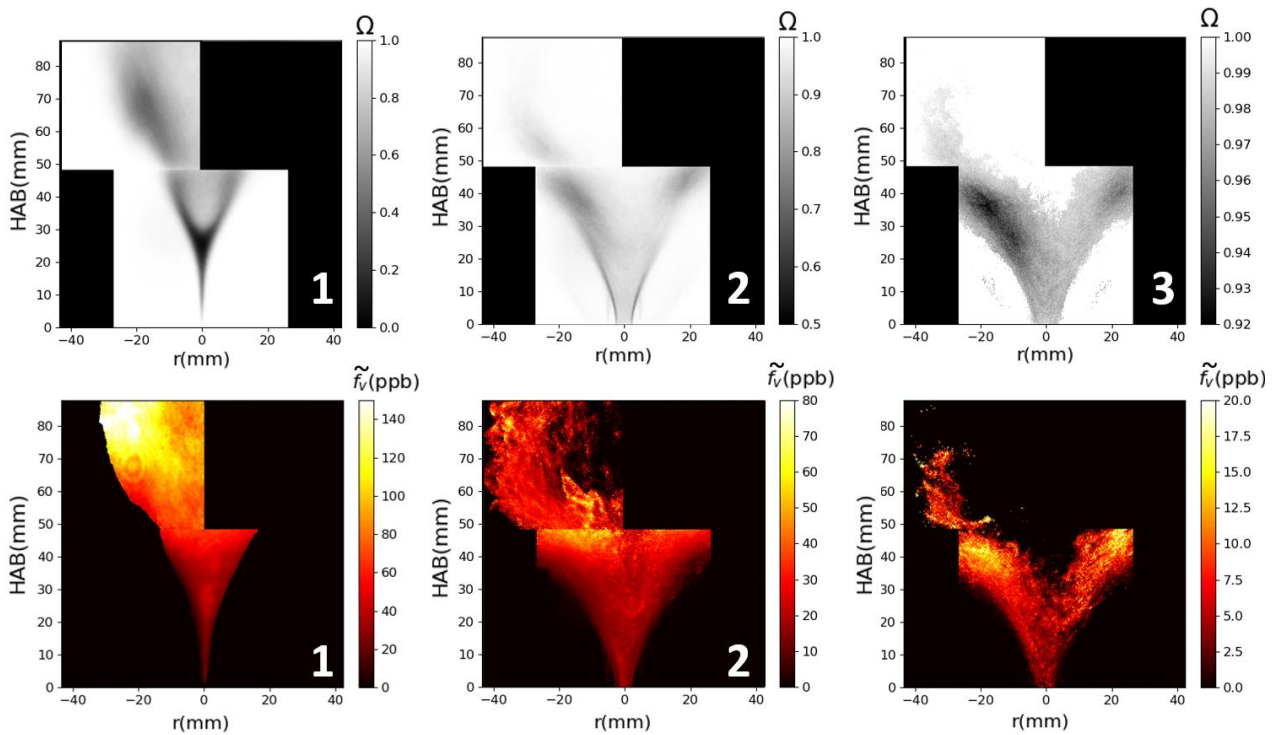


Figure 93: Haut : Indice d'intermittence pour les trois points de fonctionnement les plus stratifiés. Bas : Fractions volumiques moyennes conditionnées pour les points 1, 2 et 3.

5.5.2 Champs instantanés

Un exemple de champ instantané par point de fonctionnement est présenté sur la Figure 94. On retrouve sur ces images des distributions spatiales typiques de particules de suie en flamme turbulente, c'est-à-dire présence de structures filamenteuses et de poches de particules de suie localisées avec de forts gradients spatiaux de fractions volumiques. Les niveaux de f_v sont logiquement plus élevés sur les instantanés. Pour exemple, sur le point de fonctionnement 1, les fractions volumiques dépassent 250 ppb localement dans les poches situées dans le haut de la flamme. Les f_v moyens diminuent avec le swirl, de même que les f_v instantanés. Ces images font ressortir différents types de structures :

- Des filaments fins qui sont situés dans la partie basse de la flamme et dont la forme et la morphologie varie très peu d'une image à l'autre. Ils sont situés à la frontière entre l'IRZ et l'écoulement interne et vont jusqu'à s'accrocher au bluff-body. Ils sont indiqués par des flèches bleues sur la Figure 94. Leur comportement est quelque peu différent dans le bas de la flamme pour le point de fonctionnement 1 puisque les filaments des deux côtés se rejoignent à HAB = 30 mm environ pour former un seul et même filament venant se rattacher au bluff body du brûleur. Ce filament est visible sur l'ensemble des images à la même position et est donc très stable dans le temps comme en témoigne la valeur de l'indice d'intermittence (Figure 93).
- Ces fins ligaments s'épaississent peu à peu avec la hauteur et finissent par former des poches beaucoup plus étendues spatialement avec des fractions volumiques de suie plus élevées (flèches roses sur la Figure 94).
- On retrouve également des poches de fraction volumique élevée assez étalées spatialement au centre de la flamme comme celles indiquées par les flèches vertes sur la Figure 94.

Des corrélations moyennes mais également instantanées avec les données de PIV, de PLIF-OH, de PLIF-HAP et de température sont réalisées dans les sections suivantes. Elles vont permettre d'interpréter

l'origine des observations obtenues jusqu'à présent quant aux mesures relatives aux suies mais aussi d'analyser les mécanismes de formation et de consommation des suies dans ce type de flamme.

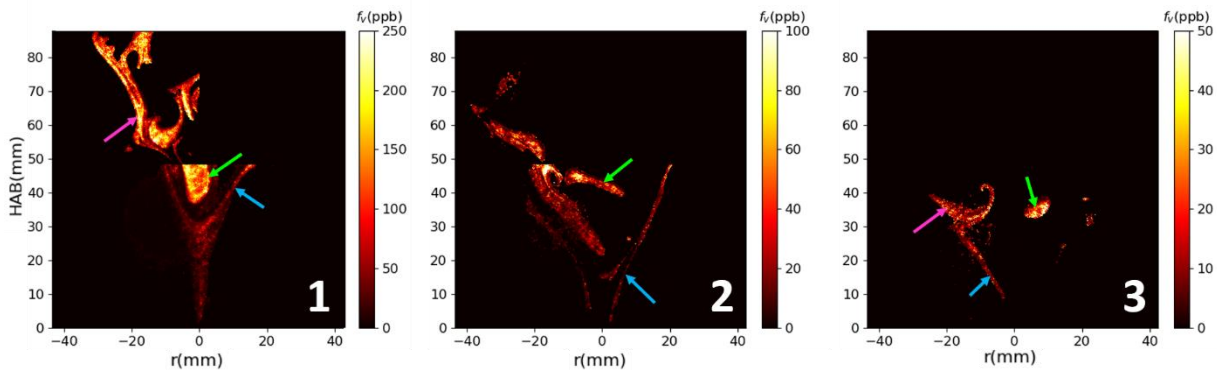


Figure 94 : Champs instantanés de fractions volumiques de suie pour les points 1, 2 et 3.

5.5.3 Corrélations avec l'écoulement et les distributions spatiales de OH, des précurseurs et de la température

5.5.3.1 Champs moyens

Les données d'intermittence et de fraction volumique peuvent être corrélées aux champs de vitesse et aux différentes zones de l'écoulement définies dans la section 5.1. Cette corrélation est illustrée par la Figure 95 pour des profils radiaux à des HAB de 16, 36 et 56 mm sur le point de fonctionnement 2. Les positions radiales des différentes couches de cisaillement sont également tracées sur cette figure. Ces figures confirment que la production de suie est bien contenue dans l'IRZ puisque on observe des fractions de volume de suie qui diminuent drastiquement dans le jet interne (lorsqu'on dépasse l'ISL en termes de position radiale). On observe même un pic pour les trois hauteurs investiguées au niveau de l'ISL ou à 1 ou 2 mm de celle-ci vers l'axe central du brûleur. Plus proche de cet axe central, au cœur de l'IRZ, les fractions de volume moyennes de suie forment un plateau et sont plus faibles qu'au niveau de l'ISL. Ces figures confirment aussi les conclusions sur les champs 2D en ce qui concerne l'intermittence qui est plus élevée lorsque la fraction volumique moyenne est faible et inversement. On pourrait s'étonner d'observer des pics de fraction volumique de suies aux endroits où le cisaillement est grand puisque c'est un paramètre qui inhibe la nucléation (voir Chapitre 2). Cependant, les valeurs de S_{xy} restent en dessous de 500 s^{-1} dans l'ISL pour les flammes étudiées, ce qui est faible au regard des valeurs favorables à la nucléation que l'on peut trouver dans la littérature (autour de 700 s^{-1}). Ce paramètre est donc considéré ici comme non-limitant à la nucléation. De plus, l'ISL est une zone de très faibles vitesses ; en effet, on observe des vitesses moyennes proches de zéro dans cette couche de cisaillement (voir Figure 95). Cela provoque de longs temps de résidence pour les espèces gazeuses et les particules et donc des conditions favorables à la chimie lente associée à la formation des suies.

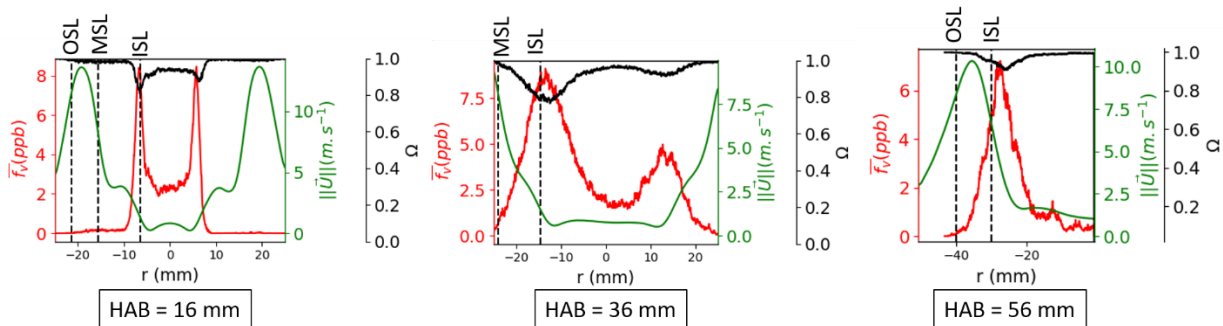


Figure 95 : Profils radiaux de $\bar{f}_v$ (rouge), norme de la vitesse moyenne (vert), et indice d'intermittence (noir) à des HAB de 16, 36 et 56 mm pour le point de fonctionnement 2. Les positions radiales des couches de cisaillement sont ajoutées en traits pointillés.

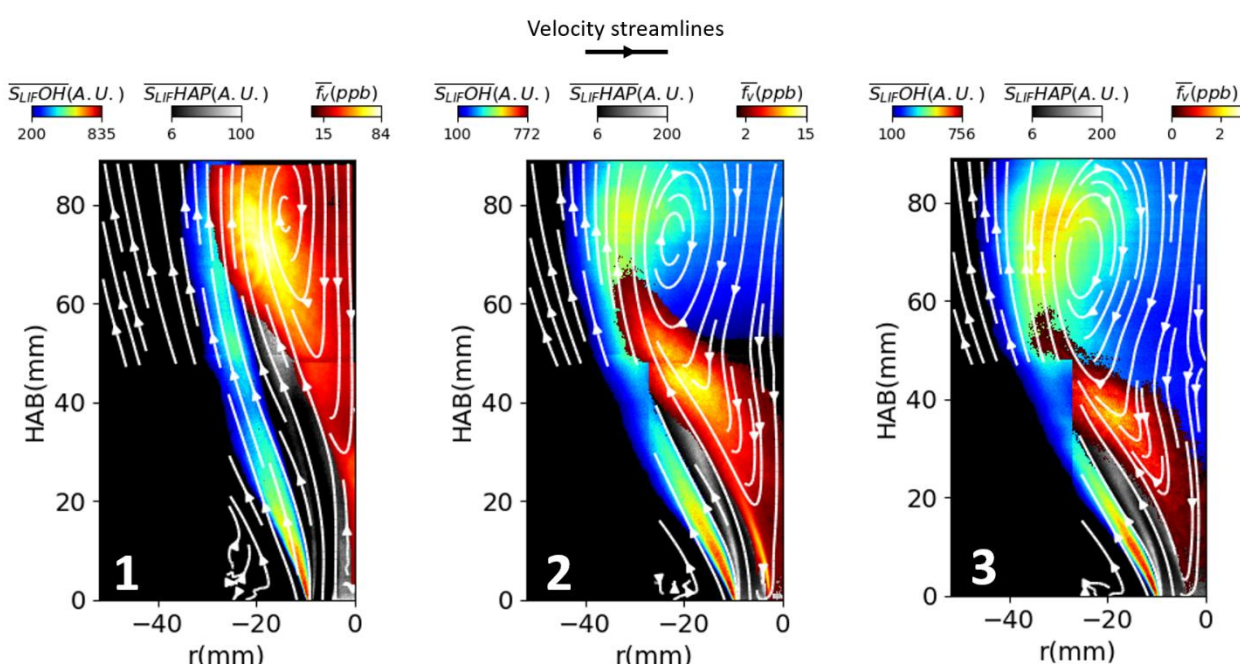


Figure 96 : Superposition des champs moyens de PLIF-OH, PLIF-HAP, fraction volumique de suies et lignes de courant des champs de vitesses pour les points de fonctionnement 1, 2 et 3.

On peut ensuite s'intéresser aux interactions des suies avec les précurseurs de suie et avec le radical OH. Ces deux espèces sont respectivement responsables de la formation des premiers noyaux solides de suie et de l'oxydation et donc de la consommation des particules de suie. La position de ces espèces gazeuses dans la flamme par rapport aux particules de suie est donc d'une importance capitale pour la compréhension de la formation des suies. Dans cette optique, la Figure 96 propose une superposition des champs moyens de PLIF-OH, PLIF-HAP, fraction volumique de suies et lignes de courant des champs de vitesses pour les points de fonctionnement 1, 2 et 3. On retrouve ici l'organisation déjà décrite, c'est-à-dire la combustion située dans le jet externe, les HAP dans l'écoulement interne et les suies dans la partie basse de l'IRZ alors que la partie haute est occupée par la recirculation des gaz brûlés pour les points de fonctionnement les plus swirlés. Le phénomène d'oxydation est observé dans la partie supérieure de l'IRZ (sur les points 2 et 3) où les fractions volumiques de suie baissent significativement alors que le signal de fluorescence de OH augmente. On remarque que les HAP, oxydés du côté du front de flamme, sont en contact avec les suies du côté de l'IRZ.

Une superposition des champs moyens est observée à l'endroit représentant la position de l'ISL, suggérant une transition des HAP vers des particules de suie solides. Afin d'étudier cela plus en détail et de confirmer la position exacte des espèces par rapport à l'écoulement, la Figure 97 expose trois profils radiaux moyens de PLIF-HAP, de fraction volumique de suies et de température à 16, 36 et 56 mm au-dessus du brûleur pour le point de fonctionnement 2. Des lignes verticales noires correspondantes aux positions des couches de cisaillement permettent de replacer les profils par rapport à l'écoulement. Il manque une information sur ces courbes qui est le signal de fluorescence de OH, le lecteur pourra se référer à la Figure 90 sur laquelle les profils de $S_{LIF}OH$ aux mêmes hauteurs sont tracés. Si on se concentre sur HAB = 16 mm, on observe que les pics de HAP et de f_v sont confondus et positionnés exactement sur l'ISL. Cette partie de la flamme coche toutes les cases pour être propice à la nucléation : longs temps de séjour, présence de HAP et température située autour de 1400 K. La superposition des champs de HAP et des particules de suie à cet endroit renforce donc cette hypothèse. A HAB = 36 mm, on observe cette fois-ci un écart entre les deux pics. En effet, on a observé sur la Figure 90 que le radical OH commence à être détecté dans l'IRZ à cette hauteur et, surtout, les températures sont plus élevées dans l'IRZ. Les HAP mesurés ne subsistent donc pas dans l'IRZ, mais il est possible que des HAP composés de plus de cycles benzéniques soient présents. On mesure en revanche des fractions volumiques de suie importantes à ces hauteurs dans l'IRZ. A HAB = 56 mm, les HAP sont totalement consommés et les fractions volumiques de suie commencent à diminuer à cause de la présence d'espèces oxydantes en plus grande quantité (voir profils de $S_{LIF}OH$) dans l'IRZ (f_v proche de 0 à $r = 0$) mais également aux grands r (croisement des courbes de $S_{LIF}OH$ et de f_v).

Les conclusions tirées des champs moyens doivent être combinées et éventuellement corroborées avec celles réalisées sur les champs instantanés car l'observation seule des moyennes temporelles peut être une source d'erreur dans des flammes turbulentes. C'est ce que l'on va faire dans la section suivante.

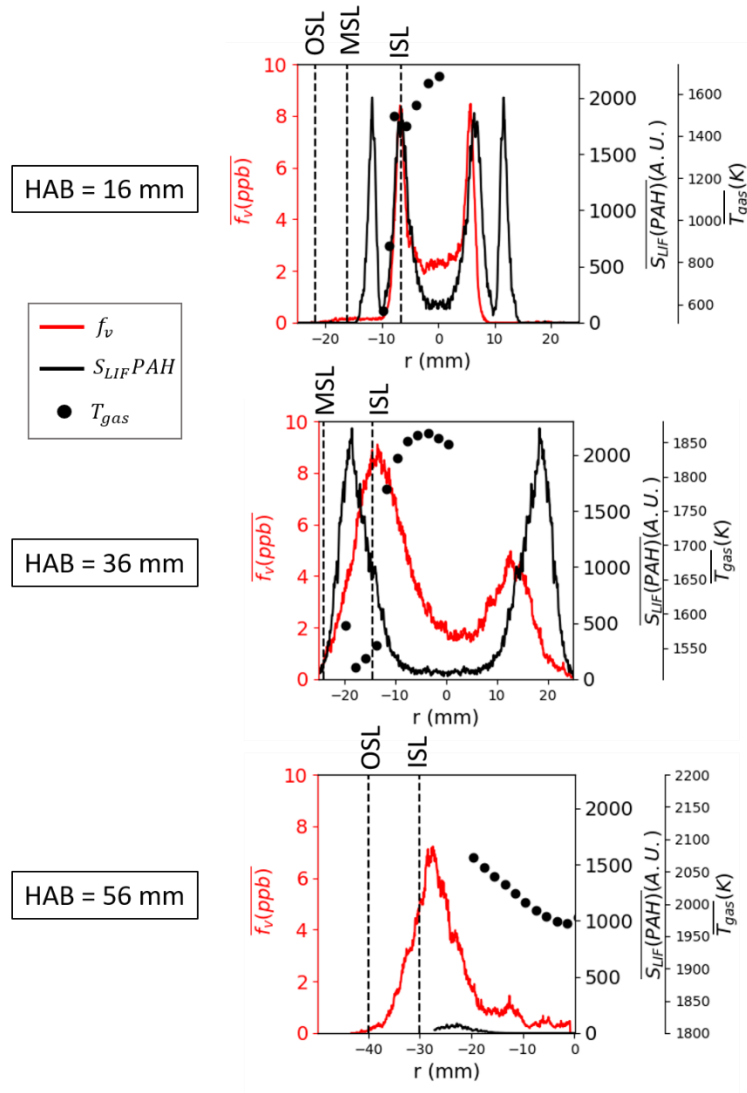
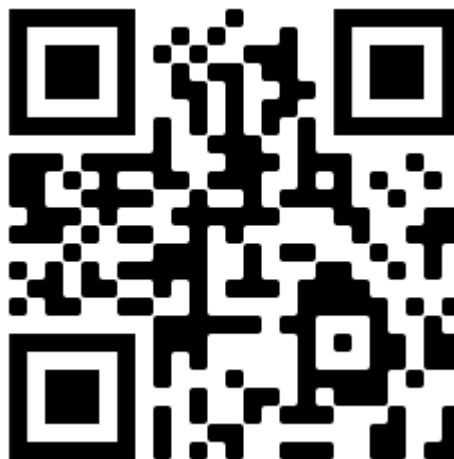


Figure 97 : Profils radiaux moyens de PLIF-HAP (ligne noire), de fraction volumique de suies (ligne rouge) et de température (points noirs) sur la condition opératoire 2. Les lignes verticales en pointillés correspondent aux positions des couches de cisaillement délimitant l'IRZ, l'écoulement interne et l'écoulement externe.

5.5.3.2 Champs instantanés

Un exemple de champs simultanés de PLIF-OH, PLIF-HAP, PIV et LII est présenté sur la Figure 98 pour les trois points de fonctionnement les plus stratifiés. Les vecteurs blancs représentent la direction des vecteurs vitesses. Des animations d'environ 200 champs instantanés sur ces points de fonctionnement sont consultables sur les liens et QR codes suivants :

- Point 1 : <https://youtu.be/bttMIR5rTYA>



- Point 2 : <https://youtu.be/3umY7xl-Hzl>



- Point 3 : <https://youtu.be/FdY5zL9Lor4>



Ces vidéos sont mises à disposition dans le but d'observer les comportements décrits sur un échantillon représentatif de mesures. En se concentrant sur la Figure 98, on observe facilement sur le point 1 que le long filament de suie sur la gauche de l'image est situé à la frontière entre l'IRZ et les HAP, c'est-à-dire sur la couche de cisaillement interne. Ce comportement déjà observé sur les champs moyens est donc bien confirmé. Même si le champ du haut de la flamme n'est pas corrélé temporellement à celui obtenu en sortie de brûleur, on observe le même type de filament se développant le long de l'ISL et terminant par la formation

d'une poche plus étendue spatialement et qui semble ensuite se détacher. Ce comportement est retrouvé sur une grande partie des images et c'est à la hauteur où les poches se forment et se détachent du filament principal qu'on observe les plus grandes fractions volumiques de suie. La visualisation 2D résolue en temps proposée dans la section 5.7 permettra une meilleure compréhension de cette dynamique d'évolution spatio-temporelle. La progression de cette poche de suie est ensuite stoppée par la formation d'une structure tourbillonnaire entraînant les gaz brûlés dans l'IRZ. Si on descend le long du filament vers la sortie du brûleur, on trouve un point de jonction avec deux autres filaments : un filament analogue à celui déjà décrit situé dans la partie droite de la flamme et un filament descendant verticalement jusqu'au bluff-body du brûleur. Ce dernier ligament se situe dans une région de faible vitesse où les longs temps de séjour permettent aux HAP de nucléer en particules de suie pour former ensuite cette fine zone verticale. Comme visible sur la Figure 80, il ne fait pas partie de l'IRZ puisque les vitesses verticales sont positives dans cette zone. Ce long filament vertical alimente donc les filaments localisés sur l'ISL. Le deuxième type de suie mentionné dans la partie précédente est présent dans des poches transportées dans la zone de recirculation centrale et qu'on observe aussi assez bien sur le point de fonctionnement 1 (cf. Figure 94 pour plus de détail). Le taux de nucléation est probablement faible dans ces poches de suie puisqu'on ne détecte pas de HAP dans l'IRZ et les mécanismes de croissance de surface et d'agrégation sont potentiellement dominant au sein de ces structures. Des mesures de taille de particules primaires (section 5.6) et de taille des agrégats (section 5.7) sont proposées par la suite et permettront de vérifier ces hypothèses. On peut émettre le même type de conclusion sur le point de fonctionnement 2 avec la différence que l'IRZ est maintenant accrochée au bluff-body à la suite de l'augmentation du swirl: il n'y a donc pas de filament vertical de forte nucléation comme sur le point de fonctionnement 1 et la diminution de la production de suie est probablement fortement impactée par ce phénomène. On retrouve encore une fois des structures filamentaires de nucléation sur l'ISL et des poches transportées dans l'IRZ. En revanche, puisque la pénétration du radical OH dans l'IRZ est plus importante, l'oxydation joue un rôle important dans la partie supérieure de la flamme et empêche la plupart des particules fraîchement nucléées de se transformer en poches et d'être transporter dans l'IRZ. Ce phénomène est accentué sur le point de fonctionnement 3 où les gaz brûlés provenant du jet externe et pénétrant profondément dans l'IRZ empêchent quasiment toute production de suie. On peut tout de même observer sur certains clichés (dont celui présenté sur la Figure 98) l'existence de fins filaments s'introduisant entre la recirculation et le front de flamme.

Nous avons évoqué dans le chapitre 2 le taux de cisaillement local est un paramètre important pour la nucléation des particules de suie. Pour les trois points de fonctionnement, la nucléation se produit à l'interface entre le jet interne et l'IRZ, zone appelée ISL car elle représente la région où le cisaillement présente un maximum local. Cependant, les taux de cisaillement locaux instantanés dans l'ISL restent faibles. On peut l'observer par exemple sur la Figure 99 (a) sur un champ instantané de $|S_{xy}|$. Dans l'IRZ et au niveau de l'ISL, le taux de cisaillement ne dépasse pas les $500 \text{ à } 600 \text{ s}^{-1}$. Ces valeurs sont dépassées seulement dans l'écoulement externe (MSL et OSL). Une corrélation entre les taux de cisaillement mesurés lorsque des particules de suie sont détectées sur des images instantanées est réalisée. C'est ce qui est illustré sur la Figure 99 (b). On observe que la présence de particules de suie est maximale pour des taux de cisaillement faibles et qu'elle diminue graduellement avec l'augmentation de S_{xy} jusqu'à être nulle lorsque le taux de cisaillement avoisine environ $600 \text{ à } 700 \text{ s}^{-1}$. Ce résultat est en bon accord avec les résultats publiés dans la littérature scientifique puisque on observe la présence de suie pour des taux de cisaillement faibles. Cependant, les conditions de nos flammes ne présentent pas des taux de cisaillement suffisamment intenses dans les zones où les suies sont présentes pour étudier ce phénomène correctement.

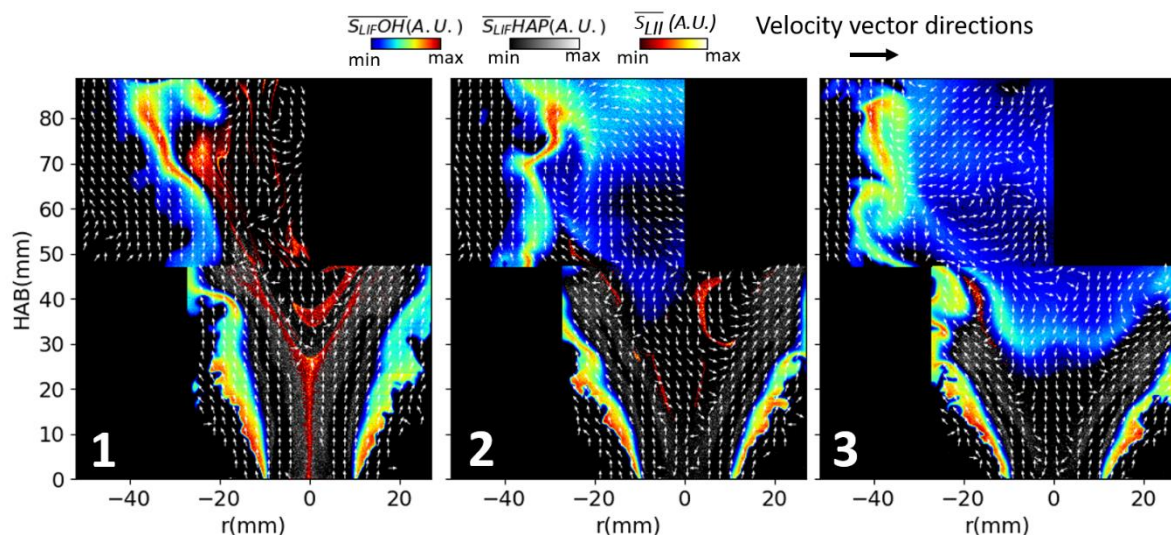


Figure 98 : Résultats des mesures simultanées de PLIF-OH, PLIF-HAP, PIV et LII. Pour une meilleure visibilité, les vecteurs n'indiquent ici que la direction des vecteurs vitesses.

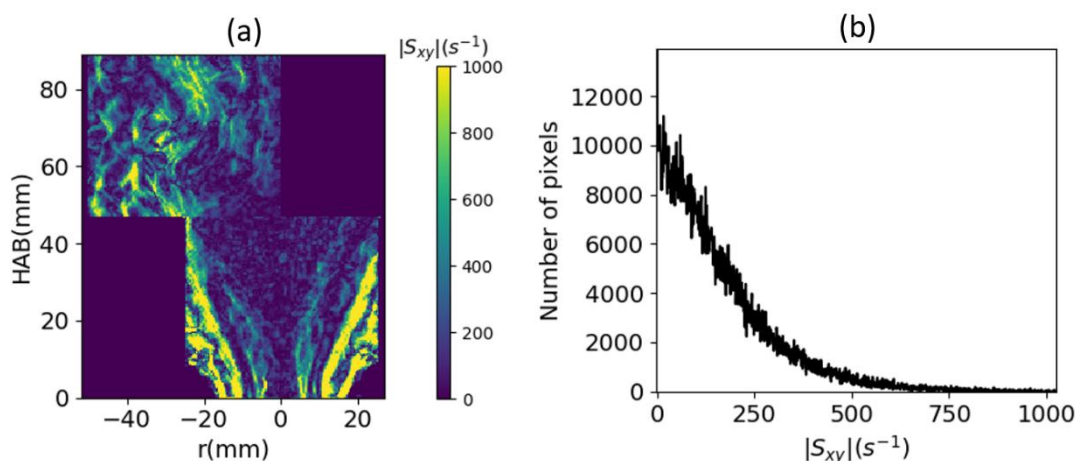


Figure 99 : (a) : Exemple de champ instantané de taux de cisaillement local pour la condition opératoire 2.
(b) : Distribution des taux de cisaillement mesurés lorsque des particules de suie sont détectées pour le point de fonctionnement 2.

5.6 Diamètre des particules primaires

5.6.1.1 Mesure par TiRe-LII

Le protocole de mesure et de traitement des données pour la détermination de D_p est détaillé dans le chapitre 3.2.9.2, section 4.2.4. La seule différence adoptée ici avec ce protocole est la température de gaz considérée pour le point de fonctionnement 2 qui est fixée à 1800 K ici car cette température est plus représentative des températures mesurées dans cette condition opératoire (section 5.3). Les distributions 2D moyennes obtenues pour les points de fonctionnement 1 et 2 sont représentées sur la Figure 100. Il n'a pas été possible de calculer D_p pour le point de fonctionnement 3 car les signaux enregistrés avec une porte d'intégration de 30 ns étaient trop faibles à cause des faibles concentrations produites par ce point de fonctionnement. Pour le point de fonctionnement 1 et dans la partie inférieure de la flamme, on observe une

décroissance radiale de D_p avec un maximum de 16 à 18 nm pour $r = 0$ mm. Ce résultat est en adéquation avec les conclusions réalisées précédemment puisque les petites particules, fraîchement nucléées, se situent au niveau de l'ISL. Dans la partie supérieure de la flamme, le pic de D_p se déplace vers des positions radiales plus élevées pour atteindre ~ 20 nm. Une diminution de D_p est observée à $HAB = 75$ mm. En analysant le champ moyen de vitesse (Figure 80), on se rend compte que les lignes de courants rentrent dans l'IRZ à cette hauteur et entraînent les gaz brûlés au sein de celle-ci. Cette diminution de D_p peut donc être interprétée comme l'existence d'une oxydation renforcée en cette position. La diminution de D_p proche de l'axe de l'écoulement provient également de l'oxydation entretenue par la recirculation des gaz provenant du jet externe. Ce phénomène est amplifié pour le point de fonctionnement 2 (swirl plus élevé) pour lequel les particules de suie sont concentrées en périphérie de l'IRZ dans la partie supérieure de la flamme. Globalement, les diamètres mesurés sont plus faibles que pour le point de fonctionnement 1 : en moyenne autour de 12 nm avec un pic dans la partie supérieure de l'IRZ autour de 16 à 18 nm. Au niveau de l'ISL, on retrouve la même organisation que pour le point de fonctionnement 1 avec une augmentation progressive de la taille des particules primaires de l'ISL vers l'axe du brûleur, ce qui suggère une nucléation puis une croissance de surface des monomères.

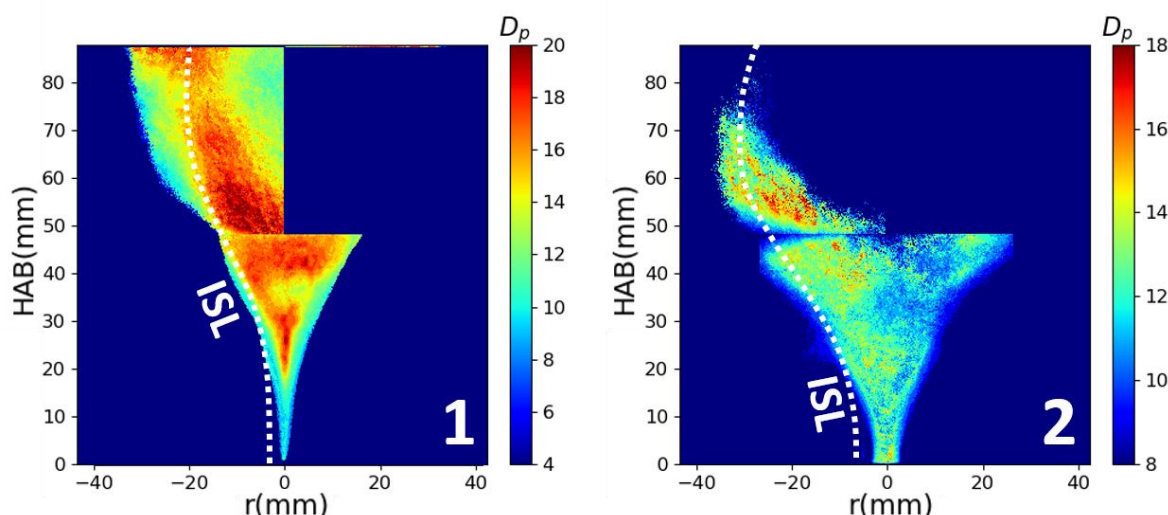


Figure 100 : Distributions 2D de particules primaires calculés par TiRe-LII pour les points de fonctionnement 1 et 2. Les lignes en pointillés blancs représentent la position de l'ISL.

5.6.1.2 Analyse TEM ex-situ

Afin de compléter l'analyse des particules de suie produites par le brûleur SIRIUS, des prélèvements de suie ont été effectués avec le protocole détaillé dans le chapitre 3, section 3.2.8. Des images des particules de suie ont ensuite été réalisées par microscopie électronique à transmission (TEM). A cause de la forte demande de prestation pour ce genre d'équipement, il n'a été possible d'analyser qu'un seul prélèvement de particules de suie situé à $HAB = 70$ mm et $r = -17$ mm sur le point de fonctionnement 1. Cette position est située au maximum des fractions volumiques de la partie supérieure de la flamme. Les données quantitatives extraites de ces images doivent être prises avec précaution car nous ne disposons que de 17 clichés, ce qui est insuffisant pour obtenir des statistiques représentatives. Néanmoins, il est possible d'établir des tendances pour certains paramètres morphologiques et géométriques des particules de suie. Une image typique

d'agrégat est présentée sur la Figure 101. On observe une morphologie typique des particules de suie avec des particules primaires en contact formant des agrégats. L'image représentée dans la partie inférieure de cette figure est un zoom sur les particules primaires du centre de l'agrégat. En observant attentivement cette image, on se rend compte que des structures s'apparentant à des empilements concentriques peuvent être distinguées au sein même des sphérules primaires. Ce type de microstructure est typique de particules matures et sont en fait des empilements de plans de carbone sous forme de graphite (i.e. « pelure d'oignon ») schématisé sur l'image du bas de la Figure 101. Le point de prélèvement étant dans la partie supérieure de la flamme, on s'attend à des particules matures puisque les temps de séjour des particules pour atteindre une telle hauteur ($HAB = 70$ mm) sont parmi les plus longs qu'on puisse rencontrer dans cette flamme.

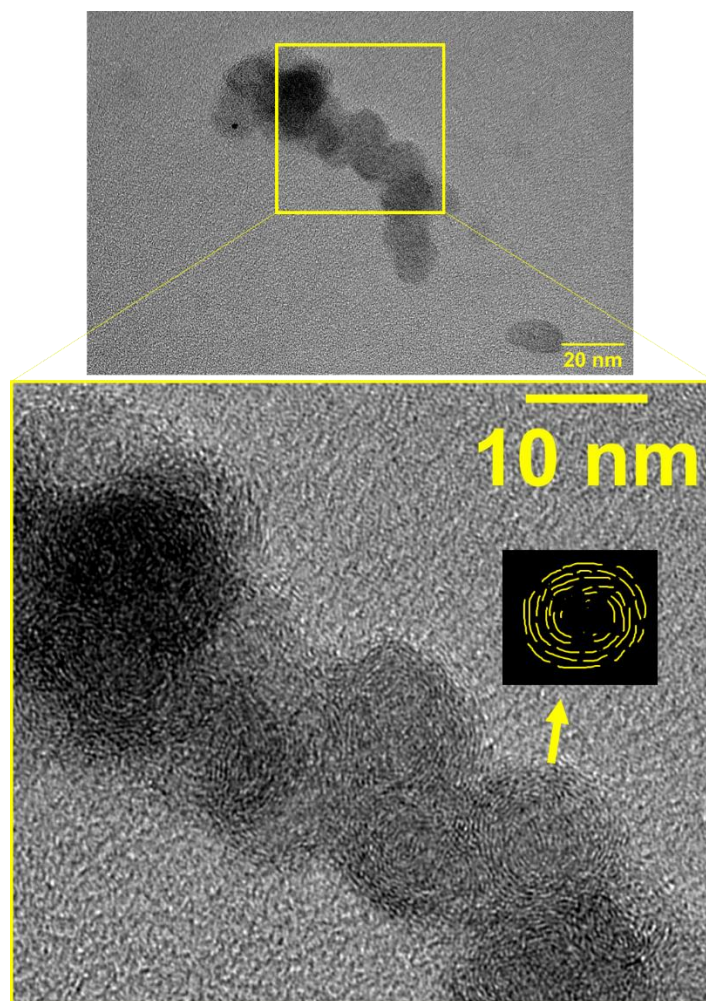


Figure 101 : Haut : Image typique d'agrégat obtenue pour un prélèvement dans le point 1 à $HAB = 70$ mm et $r = -17$ mm. Bas : Zoom dans le carré jaune de l'image du haut.

Les données quantitatives extraites de ces clichés sont résumées sur la Figure 102. Elles ne représentent en aucun cas des « vraies » distributions au vue de la faible taille de l'échantillon mais indiquent seulement des tendances. Les données présentées sur cette figure ont été mesurées manuellement sur les images. On mesure pour les D_p (image (a)) des valeurs s'étendant entre 6 et 22 nm. Il est très difficile d'extraire un mode privilégié en raison de la taille de l'échantillon statistique mais on peut le deviner autour 9 à 13 nm, la valeur mesurée par TiRe-LII à cette position étant de 17 nm. On rappelle que le D_p mesuré en TiRe-LII est un

diamètre équivalent monodisperse qui est assujéti à une surestimation puisque, au sein d'une population polydisperse, les sphérules de grands diamètres se refroidissent moins vite et contribuent donc plus dans le signal global d'incandescence. À la lumière de ces données, on peut donc estimer qu'on a un accord « correct » entre les deux méthodes de mesure même si la faible taille de l'échantillon et le fait qu'on ne dispose de clichés TEM que pour une seule position dans la flamme seraient des points à améliorer pour comparer plus finement les deux techniques. Les agrégats étudiés par TEM contiennent entre 1 et 17 sphérules, ce qui est relativement faible par rapport à ce qui est souvent reporté dans les flammes de diffusion. Le diamètre de gyration des agrégats est estimé en prenant leur longueur maximale projetée et en la divisant par 1,5 [245]. Les diamètres de gyration ainsi déterminés sont compris entre 17 et 67 nm. Ces dimensions sont assez typiques des configurations aéronautiques et seront comparées aux tailles mesurées par diffusion angulaire dans la section 5.7.

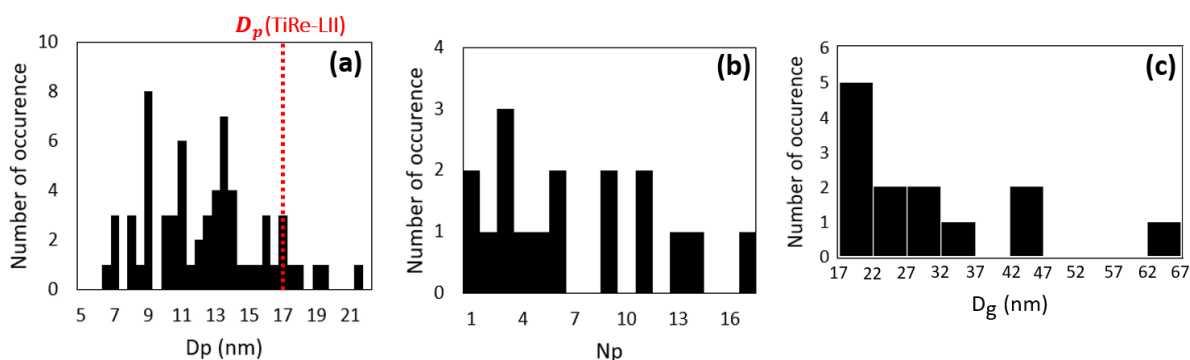
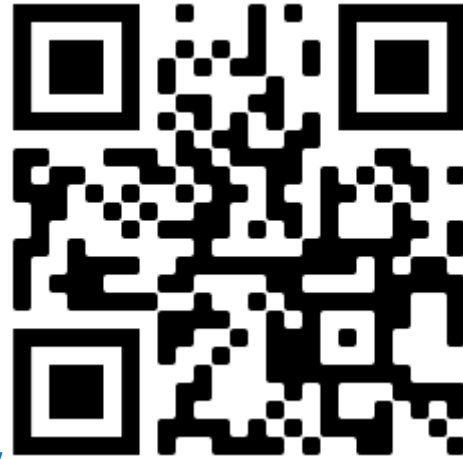


Figure 102: (a) : Distribution de taille des particules primaires mesurée par TEM. (b) : Distribution de nombre de particules primaires par agrégat mesuré par TEM. (c) : Distribution de diamètre de gyration des agrégats mesuré par TEM.

5.7 Diamètre et concentration en nombre des agrégats de suie par diffusion angulaire 2D à haute cadence

5.7.1 Analyse des diamètres des agrégats

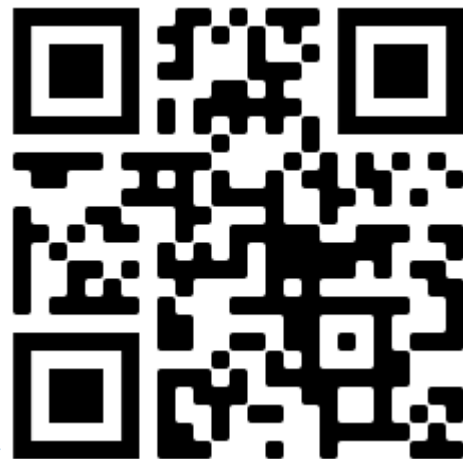
Afin de compléter la description des suies menée précédemment, on se propose ici de déterminer l'évolution spatiale et temporelle de la taille des agrégats de suie (la section précédente reportait uniquement le diamètre des sphérules primaires). Le protocole expérimental et de traitement des mesures de diffusion angulaire 2D haute cadence sont détaillés dans la section 4.3. La Figure 103 présente une séquence de champs instantanés de $D_{g,geo}$, le diamètre géométrique de la distribution log-normale des diamètres de gyration pour le point de fonctionnement 1 et pour différents instants indiqués en bas à droite de chaque image. Le lecteur est invité à consulter les liens ou QR codes suivants pour visualiser des animations d'évolution de taille sur les trois points de fonctionnement des durées plus étendues :



- Point 1, $D_{g,geo}$: <https://youtu.be/fTc5HuoMn4w>



- Point 2, $D_{g,geo}$: <https://youtu.be/y5dWV7S50jc>



- Point 3, $D_{g,geo}$: <https://youtu.be/awV4ezdHOKY>

On remarque que les diamètres médians se situent entre 20 et 100 nm pour le point de fonctionnement 1. On retrouve les structures mesurées par LII, c'est-à-dire des poches de grandes tailles dans l'IRZ et des structures ligamentaires de « nucléation » au niveau de l'ISL. Ces deux types de structure sont indiqués respectivement par les flèches bleue et noire sur l'image enregistrée à $t = 0$ s de la Figure 103. Sur les instants suivants, la poche, dont les particules possèdent des diamètres significativement plus élevés que ceux observés dans le reste de la flamme au même instant, se propage dans l'IRZ avec une vitesse verticale négative. On observe sur les instants suivants un enroulement de cette poche dans le sens horaire (même

sens que le tourbillon observé sur les champs de vitesse moyen, Figure 80). A $t = 63$ ms, cette poche de suie commence à se mélanger avec le filament de nucléation puis se scinde en deux parties : une partie transportée par le jet interne vers de plus grandes hauteurs et une partie qui poursuit sa descente vers la partie inférieure de la flamme. Cette dernière structure, dont les tailles avoisinent les 100 nm finit elle aussi par se mélanger aux filaments de nucléation dans la frontière basse de l'IRZ. Ce phénomène est observable entre l'image à $t = 110$ ms et à $t = 152$ ms (flèches vertes). A la suite de ce mélange, la taille des particules détectées dans le filament de nucléation augmente significativement. Sur les images comprises entre $t = 86$ ms et $t = 170$ ms, on observe une seconde poche dont la trajectoire est proche de celle que l'on vient de visualiser (flèche pointillée bleue). Ce phénomène est souvent observé et montre que les filaments que l'on a jusqu'ici attribué à des suies fraîchement nucléées peuvent en fait être également issus de ce processus de mélange avec des suies matures. Le mélange avec des suies matures n'empêche cependant pas la nucléation de se produire dans ces structures filamenteuses. Le filament de droite, indiqué par la flèche noire sur l'image à $t = 0$ ms, n'est pas impacté par la recirculation durant toute la séquence proposée ici et les diamètres d'agrégats restent donc faibles au sein de celui-ci. Afin d'étudier ce phénomène de mélange de manière quantitative, l'évolution temporelle de la moyenne des $D_{g,geo}$ sur la même séquence d'image que la Figure 103 dans la zone d'intérêt appelée « ROI » est calculée et tracée sur la Figure 104. Cette zone d'intérêt carrée et schématisée sur l'image à $t = 0$ ms de la Figure 103 est centrée sur les coordonnées $r = 0$ mm et $HAB = 24$ mm et elle représente un carré de 3 mm de côté. Elle est située en cette position afin de couvrir la zone où le mélange entre les filaments de nucléation et la poche de suie mature transportée dans l'IRZ s'opère. Plusieurs régimes d'évolution temporelle sont alors observés. On remarque en premier lieu un plateau entre $t = 0$ ms et $t = 110$ ms. Celui-ci est centré autour de 35 nm avec de légères oscillations de plus ou moins 10 nm. Cette faible taille est néanmoins supérieure à celles de particules primaires suggère que l'on a affaire aux premières étapes d'agrégation. Sur les champs instantanés, on observe que ces mesures correspondent à une période où la nucléation et la croissance de surface sont responsables de la production de suie à cet endroit. On observe ensuite entre $t = 110$ ms et $t = 170$ ms une augmentation rapide de $D_{g,geo}$ qui atteint un maximum de 60 nm. Cela correspond aux particules de suie provenant du mélange entre la poche venant de l'IRZ et le filament siège de la nucléation. Enfin, après $t = 170$ ms, une diminution progressive de la taille des agrégats est observée. Les grosses particules provenant de la poche sont évacuées lentement par transport et on retrouve des valeurs de $D_{g,geo}$ autour de 35 nm à $t = 300$ ms.

Ces séquences d'images haute-cadence permettent également une observation de l'enroulement tourbillonnaire du filament de nucléation dans l'IRZ qui mène à la formation et aux lâchers de poches de suie. Ce phénomène est observable sur la séquence présentée en haut à gauche sur l'image à $t = 50$ ms et $t = 63$ ms. Les variations spatiales de diamètre au sein de ces poches sont bien résolues. Des gradients importants intra-poche (voir poche indiquée par la flèche bleue) et inter-poches existent : la poche de suie indiquée par la flèche bleue présente des diamètres autour de 70 nm en moyenne alors que celle qui la suit et qu'on voit apparaître dans la partie haute gauche de l'IRZ à $t = 86$ ms donne des diamètres $D_{g,geo}$ inférieurs à 50 nm.

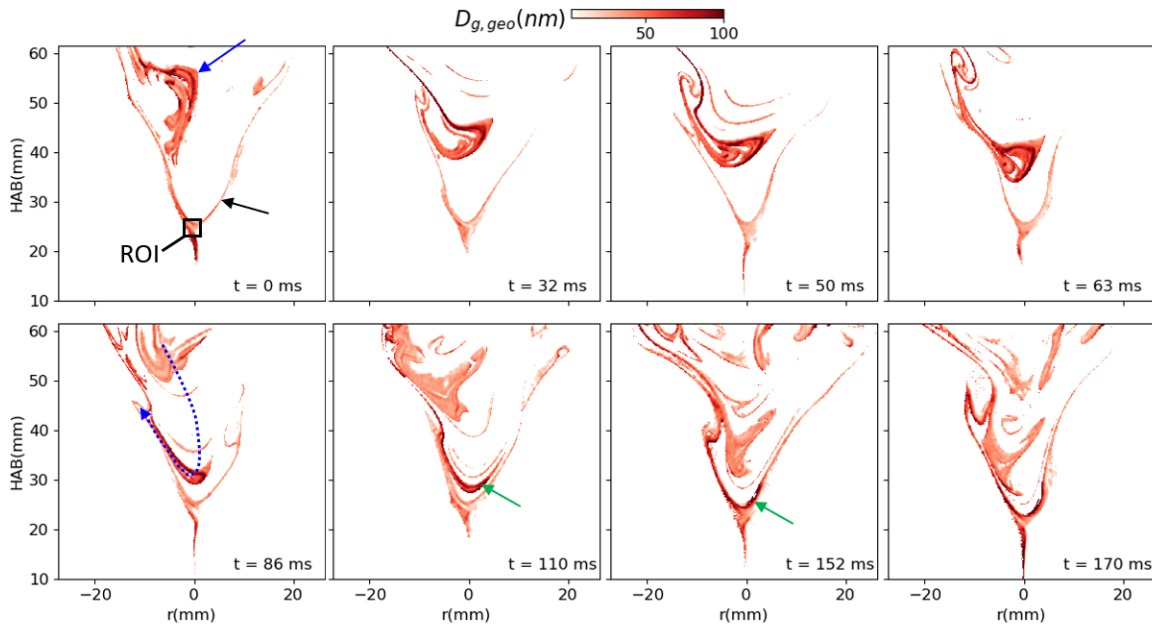


Figure 103 : Séquence d'images montrant une évolution spatio-temporelle typique de la taille des particules de suie enregistrée dans la flamme pour le point de fonctionnement 1.

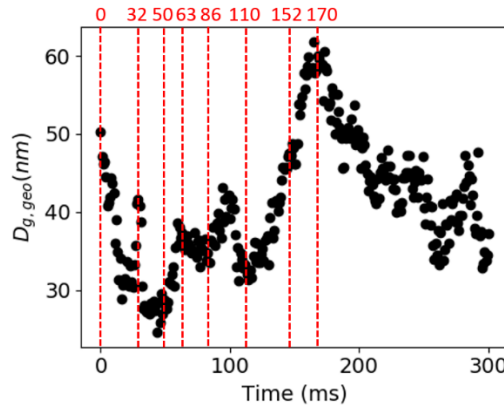


Figure 104 : Evolution temporelle de la moyenne de $D_{g,geo}$ dans la ROI indiquée sur l'image à $t = 0$ ms de la Figure 103. Les lignes verticales correspondent aux instants des champs de diamètres des particules de suie représentées sur la Figure 103.

Sur le point de fonctionnement 1, nous avons vu que l'IRZ n'est pas accrochée au bluff-body et qu'un filament vertical de faible épaisseur se forme et s'accroche au bluff-body. On observe ici que ce filament se déplace de quelques millimètres sur la gauche puis sur la droite sur les images, lâchant successivement des particules de suie dans le filament de droite puis dans celui de gauche. Nous n'avons pas accès à d'informations 3D ou dans le plan zy mais nous suspectons qu'il s'agisse d'un mouvement de précession de ce filament autour de l'axe du brûleur.

Les champs moyens de $D_{g,geo}$ (exploitant les caméras à $\theta = 45^\circ$ et $\theta = 135^\circ$) et de l'amplitude A (amplitude du signal de diffusion en diffusion avant déduit des mesures sur les trois caméras) en moyennes classiques et conditionnées sont présentés sur la Figure 105. On rappelle que A dépend de N_{agg} , D_p , D_f , k_f et $F(m)$ (équation (112)). Les moyennes classiques sont illustrées sur les images présentées sur la partie

supérieure de la Figure 105 et les moyennes conditionnées par la présence de suie sur la ligne du bas. Seules les statistiques sur les deux premiers points de fonctionnement sont présentés car le troisième point de fonctionnement présente des intermittences très fortes et donc des moyennes non-convergées sur les huit secondes d'enregistrement des images (8000 images à 1 kHz). Les moyennes classiques des diamètres de suie indiquent des valeurs évoluant spatialement entre 10 et 30 nm pour le point de fonctionnement 1 et entre 1 et 4 nm pour le point de fonctionnement 2. Bien évidemment, ces valeurs sont impactées par l'intermittence et donc par les instants où aucune suie n'est détectée. En revanche, les moyennes conditionnées (images du bas) permettent de s'affranchir de ce biais d'interprétation et montrent des diamètres étonnamment uniformes pour les deux points de fonctionnement et en particulier pour le point 1. Le processus de mélange entre les filaments de nucléation et les poches de l'IRZ est probablement responsable de cette homogénéité spatiale en augmentant la taille moyenne des suies dans les filaments établis dans l'ISL. Les moyennes classiques montrent quant à elles des inhomogénéités spatiales au sein d'un même point de fonctionnement avec des diamètres plus faibles dans l'IRZ vraisemblablement à cause de la turbulence et du processus de mélange avec les gaz brûlés. On remarque que l'ordre de grandeur de la taille des agrégats lorsque des suies sont détectées (moyenne conditionnée) est similaire pour les points de fonctionnement 1 et 2 alors que les fractions volumiques de suie étaient différentes. Ceci suggère que la densité des particules n'est pas identique au sein des poches de suies dans ces deux configurations de flammes.

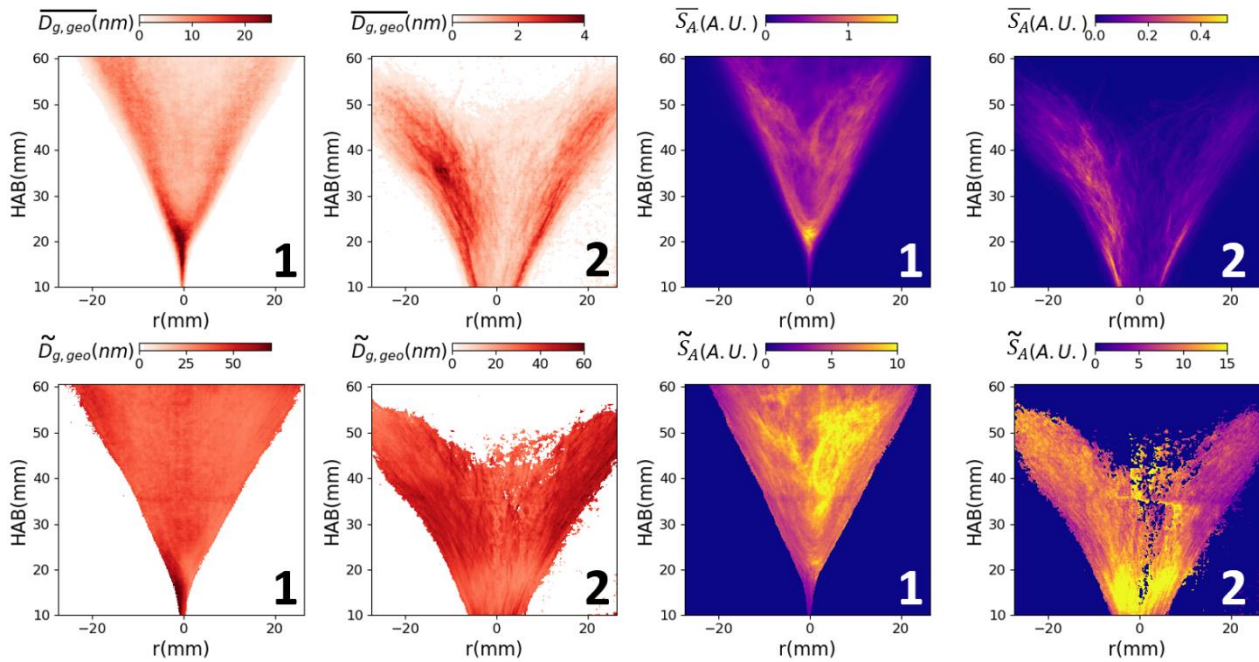


Figure 105 : Champs de $D_{g,geo}$ (images de gauche) et de l'amplitude A (images de droite). Les images représentées sur la partie supérieure présentent des moyennes classiques alors que celles du bas représentent des moyennes conditionnées par la présence de suie.

5.7.2 Exploitation de l'amplitude A pour la détermination de la concentration en nombre

La mesure instantanée de diamètre des agrégats présentée dans la section précédente repose sur le rapport des intensités mesurées par les caméras positionnées aux petits et grands angles de diffusion. Nous exploitons ici l'information recueillie par la caméra positionnée orthogonalement à la nappe laser. Cependant, afin de s'affranchir du rôle joué par la taille des agrégats, l'image est normalisée par le terme de taille T explicité dans l'équation (90). On obtient ainsi un signal noté S_A (en niveaux de gris) dont l'intensité correspond, à un facteur multiplicatif près, au terme d'amplitude rappelé ici :

$$A = I_0 D_p^{6-2D_f} k_f^2 \frac{\pi^4}{4} \frac{F(m)}{\lambda^4} N_{agg} \quad (112)$$

Cette amplitude, dont l'unité est le $W \cdot m^{-3-2D_f} \cdot sr^{-1}$, une fois multiplié par le moment d'ordre D_f de la distribution de taille en diamètre de gyration $\overline{D_g^{D_f}}$, représente la puissance du signal diffusé dans le sens de propagation du faisceau laser, par unité de volume et par stéradian. Ce qui nous intéresse ici est la proportionnalité directe de ce paramètre et donc du signal S_A à la concentration en nombre d'agrégats N_{agg} . L'objectif de cette partie est d'exploiter ce signal instantané en termes de concentration en nombre d'agrégats de suie. Il s'agit de quantifier la relation entre S_A et N_{agg} , en explicitant le coefficient d'étalonnage appelé α défini tel que :

$$S_A = \alpha N_{agg} \quad (113)$$

Les moyennes temporelles du signal S_A sont reportées sur la Figure 105 (quatre images de droite) pour les points de fonctionnement 1 et 2. Le coefficient α est fonction de I_0, D_p, k_f, D_f et $F(m)$ et des paramètres de système de détection (ouverture de la porte de la caméra, optiques...). Il peut, à priori, varier en fonction du temps et de l'espace. Cet étalonnage est réalisé à l'aide des mesures de fraction volumique de suies (section 5.5). En effet, la concentration en nombre N_{agg} peut s'exprimer comme le rapport entre la fraction volumique f_v et le volume moyen des agrégats $\overline{V_{agg}}$:

$$N_{agg} = \frac{f_v}{\overline{V_{agg}}} \quad (114)$$

Le volume moyen des agrégats s'exprime comme le produit du nombre moyen de particules primaires par agrégat et du volume d'une sphérule primaire dont la distribution est considérée ici monodisperse :

$$\overline{V_{agg}} = \overline{N_p} \frac{\pi}{6} D_p^3 \quad (115)$$

Il est encore possible d'exprimer ce volume en fonction du diamètre de gyration des agrégats moyennant l'emploi de la loi fractale :

$$\overline{V_{agg}} = k_f \overline{D_g^{D_f}} \frac{\pi}{6} D_p^{3-D_f} \quad (116)$$

$\overline{D_g^{D_f}}$ est le moment d'ordre D_f de la distribution log-normale qui se calcule analytiquement comme $\overline{D_g^{D_f}} = D_{g,geo}^{D_f} e^{\frac{D_f^2 \ln^2 \sigma_{g,geo}}{2}}$ pour une loi log-normale. On réécrit donc l'équation (114) comme :

$$N_{agg} = \frac{f_v}{k_f \overline{D_g^{D_f}} \frac{\pi}{6} \overline{D_p^{3-D_f}}} \quad (117)$$

Ainsi, l'équation (113) peut s'exprimer en fonction de f_v (déterminé par les mesures LII), ce qui permet la détermination de α dont l'unité est $ndg.cm^3/part$ (ndg signifiant niveau de gris):

$$\alpha = \frac{S_A}{N_{agg}} = \frac{S_A k_f \frac{\pi}{6} \overline{D_p^{3-D_f}} \overline{D_g^{D_f}}}{f_v} \quad (118)$$

Cependant, ce coefficient ne peut pas être obtenu de manière instantanée puisque les mesures de diffusion (D_g) n'ont pas été réalisées simultanément aux mesures de LII (f_v et D_p). De ce fait, nous établissons la valeur de α sur la base des grandeurs moyennes conditionnées :

$$\tilde{\alpha} = \frac{\widetilde{S_A} k_f \frac{\pi}{6} \widetilde{D_p^{3-D_f}} \overline{D_g^{D_f}} (\widetilde{D_{g,geo}})}{\widetilde{f_v}} \quad (119)$$

L'hypothèse sous-jacente à cette formulation est que la moyenne conditionnée du produit des termes de l'équation (119) est égale au produit des moyennes conditionnées de chaque terme (variables indépendantes).

Les quantités utilisées pour le calcul de $\tilde{\alpha}$ sont illustrées dans la Figure 106 pour le point de fonctionnement 1. Les images provenant des expériences de diffusion sont interpolées sur une grille de même résolution que pour la LII avant de réaliser le calcul. On observe que le champ 2D de $\tilde{\alpha}$ est globalement uniforme même si des variations spatiales comprises entre $0,4.10^{-22}$ à $0,7.10^{-22} ndg.cm^3/part$ sont observées. Ces dernières sont certainement relatives à un manque de données statistiques sur les champs utilisés pour le calcul. La concentration moyenne (conditionnée) de particules est ensuite calculée en divisant le champ moyen conditionnée de S_A par celui de α (équation (113)). Le résultat est reporté sur l'image f. Les N_{agg} moyens varient autour de 10^9 particules par cm^3 et montrent une augmentation avec la hauteur.

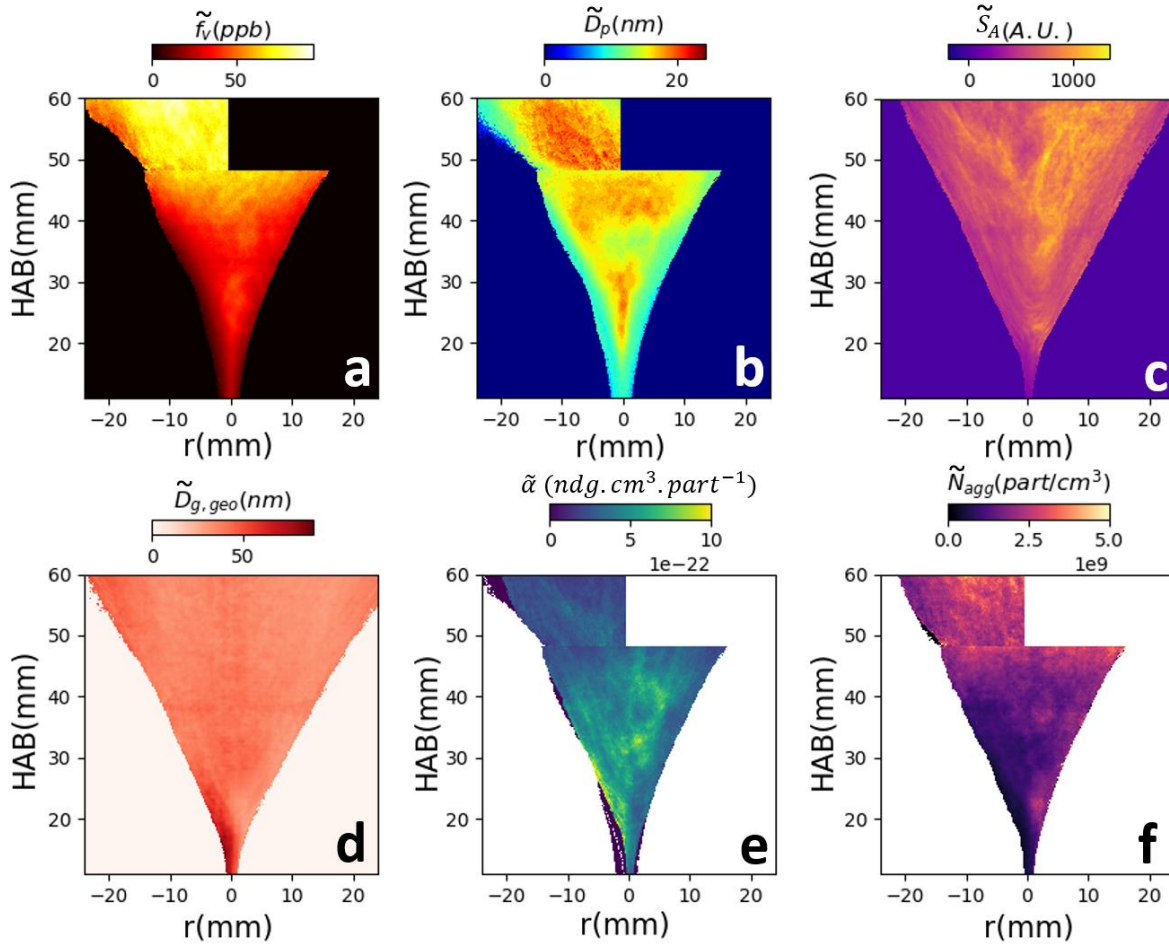


Figure 106 : Champs moyens conditionnés de fraction volumique de suies (a), de diamètre des sphérules primaires (b), de $\tilde{S}_A$ (c) et du diamètre médian moyen de la distribution en taille des agrégats (d) utilisés pour le calcul du coefficient de conversion $\tilde{\alpha}$, ce dernier permettant la détermination de la concentration en nombre (f).

A défaut de pouvoir déterminer le coefficient d'étalonnage pour chaque image instantanée, nous utilisons le coefficient d'étalonnage $\tilde{\alpha}$ pour déterminer les concentrations instantanées $N_{agg}(t)$ comme suit :

$$N_{agg}(t) = S_A(t)/\tilde{\alpha} \quad (120)$$

L'usage du coefficient $\tilde{\alpha}$ sous forme de moyenne conditionnée dans cette équation implique que l'évaluation de la concentration n'est réalisable qu'en présence de suie et que α ne varie pas temporellement. C'est-à-dire qu'à une position donnée, lorsque des suies sont détectées, les grandeurs f_v , D_p , $D_{g,geo}$ et S_A ne varient pas temporellement. En ce qui concerne les variations spatiales, puisque ces dernières sont relativement faibles (Figure 106 (e)) et possiblement imputables à un manque de données statistiques, on se propose de conserver finalement la valeur moyenne spatiale de $\tilde{\alpha}$ égale à 5.10^{-22} pour le point de fonctionnement 1 et $\tilde{\alpha} = 7.10^{-22}$ pour le point de fonctionnement 2. Les concentrations en nombre moyennes pour les points de fonctionnement 1 et 2 calculées avec ces valeurs moyennées spatialement de $\tilde{\alpha}$ sont consultables en Annexe 3. Ces coefficients moyens sont ensuite utilisés pour interpréter l'intégralité des images instantanées de S_A . La séquence temporelle déjà représentée pour le diamètre $D_{g,geo}$ sur la Figure 103 est reprise sur la Figure 107 mais cette fois-ci pour représenter N_{agg} . On observe, comme pour les diamètres, que les concentrations ne sont pas uniformes au sein des poches de suie et que ces dernières évoluent temporellement. On

remarque que la poche, repérée par la flèche verte, dont l'histoire temporelle avait déjà été illustrée avec de la Figure 103 et qui montre des diamètres élevés, présente de faibles concentrations en nombre comparé aux autres parties de la flamme. Cela suggère donc l'existence d'une corrélation négative entre N_{agg} et $D_{g,geo}$. Afin d'illustrer ce phénomène, la Figure 108 (a) présente la corrélation observée entre les concentrations en nombre et les diamètres instantanés dans une région d'intérêt carrée de 3 mm de côté située à HAB = 30 mm et $r = 0$ mm et pour le point de fonctionnement 1. On observe sur cette figure que des concentrations élevées sont retrouvées pour des faibles diamètres alors que pour les diamètres élevés, on obtient de faibles concentrations. Cette observation montre le couplage existant entre le diamètre des agrégats et leur concentration laissant penser que la variabilité de la fraction volumique de suies est moindre comparée à celle de la taille et/ou de la concentration. En effet, à volume de suie constant, une augmentation de la concentration en nombre provoquera logiquement une diminution du diamètre des agrégats. Afin d'étudier plus en détail la dynamique temporelle, la Figure 108 (b) présente le suivi temporel de la concentration moyenne spatiale dans la ROI indiquée sur l'image à $t = 0$ ms de la Figure 107 pour le même intervalle temporel. Dans les premiers instants, entre $t = 0$ ms et $t = 110$ ms, de grandes concentrations sont retrouvées dans la ROI, c'est-à-dire au croisement entre les trois filaments se situant dans la zone de nucléation. A $t = 110$ ms, la poche transportée dans l'IRZ traverse la ROI, ce qui a pour conséquence de diminuer drastiquement la concentration moyenne mesurée. Ceci illustre la capacité de ce diagnostic à suivre temporellement les phénomènes de manière quantitative. Des animations de distributions 2D de N_{agg} sur des intervalles temporels plus long sont disponibles aux liens et QR codes suivants :

- Point de fonctionnement 1 : <https://youtu.be/ZZCte-PPeTo>



- Point de fonctionnement 2 : <https://youtu.be/nKle8SDcUtY>



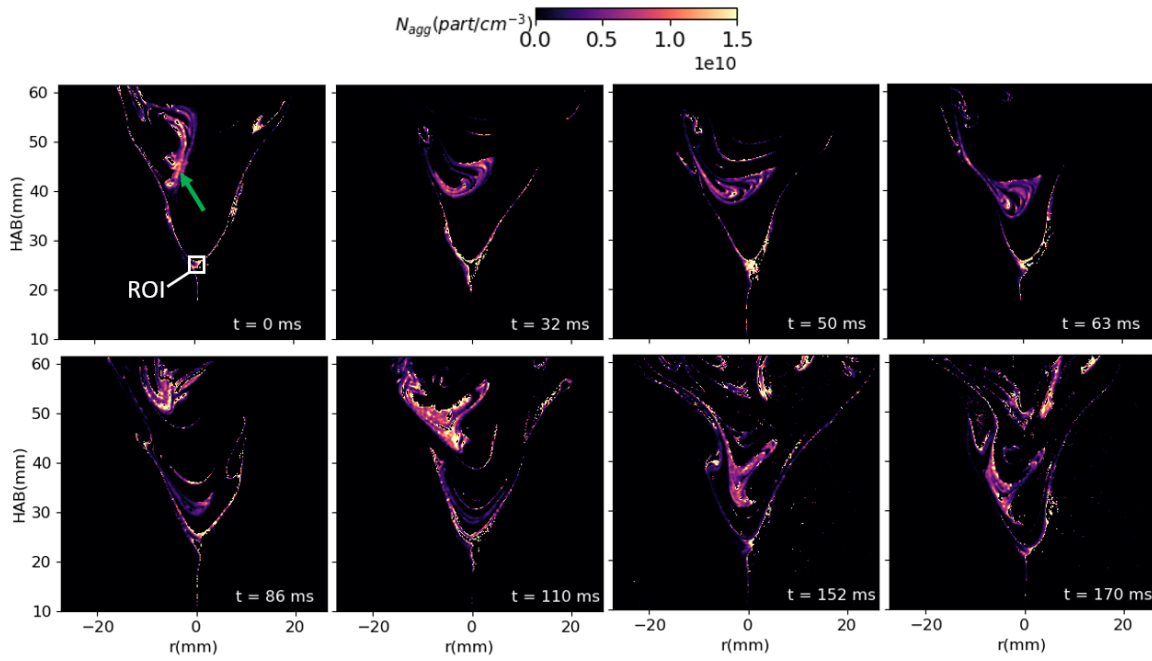


Figure 107 : Séquence d'images montrant l'évolution spatio-temporelle typique de la concentration en nombre des particules de suie dans la flamme pour le point de fonctionnement 1.

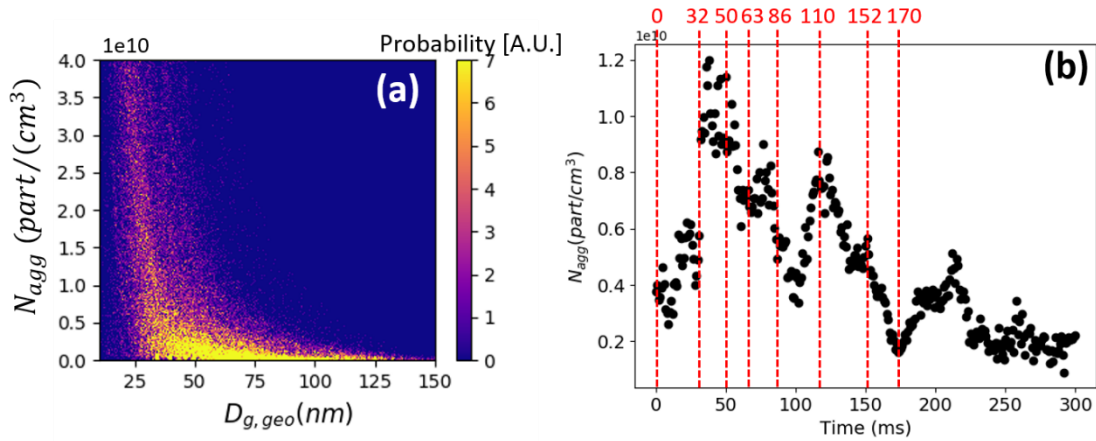


Figure 108 : (a) : Corrélation entre la concentration en nombre N_{agg} et $D_{g,geo}$ pour une région d'intérêt carrée de 3 mm de côté située à $HAB = 30$ mm et $r = 0$ mm pour le point de fonctionnement 1. (b) : Evolution temporelle de la moyenne de N_{agg} dans la ROI indiquée sur la Figure 107 (à l'instant $t = 0$ ms). Les lignes verticales correspondent aux différents instants représentés dans la Figure 107.

5.7.3 Calcul et exploitation des distributions moyennées en temps

Les sections précédentes ont mis en lumière la capacité de la méthode de diffusion à capter un suivi spatial et temporel de la taille et de la concentration en nombre de particules de suie. En vue d'une comparaison avec des mesures granulométriques de type SMPS reposant sur un prélèvement dans la flamme (section suivante), il convient de moyennner temporellement nos mesures. En effet, les appareils de ce type effectuent

un comptage (optique ou par mesure de charges électriques) après une sélection en taille des particules via une colonne de sélection du diamètre de mobilité (voir section 2.5.2). Pour chaque classe de taille, une moyenne temporelle de la concentration numérique est effectuée ce qui aboutit, à la fin du processus, à une distribution en taille. L'équation suivante représente le calcul à effectuer pour évaluer une granulométrie équivalente à celle du SMPS avec les données collectées lors des mesures de diffusion ($N_{agg}(t)$ et $D_{g,geo}(t)$) :

$$\frac{dN}{d\log D_g} = \frac{1}{N_t} \sum_{t=0}^{N_t} N_{agg}(t) \frac{dN}{d\log D_g}(D_g, D_{g,geo}(t), \sigma_{g,geo}) \quad (121)$$

N_t représente le nombre total d'images considérées pour le calcul. Il s'agit d'une moyenne temporelle de fonction densité de probabilité pondérée par la concentration en nombre de particules. Ce calcul peut être moyenné sur une région de l'espace correspondant, par exemple, à la zone de prélèvement de la mesure SMPS. La corrélation négative observée précédemment entre $D_{g,geo}$ et N_{agg} joue un rôle important dans la distribution moyenne ainsi obtenue. La Figure 109 présente les distributions moyennes obtenues pour une position donnée du point de fonctionnement 1 avec prise en compte de la concentration locale et instantanée (courbe rouge, équation (121)) ou en calculant le produit de la concentration moyenne par la densité de probabilité moyenne (courbe noire). On observe un décalage de la distribution vers les petits diamètres lorsqu'on prend en compte la concentration, tendance attendue à la lumière de la corrélation négative $N_{agg}-D_{g,geo}$. Ce décalage est retrouvé pour tous les points de fonctionnement et pour toutes les positions analysées, c'est-à-dire entre HAB = 20 mm et HAB = 55 mm tous les 5 mm et pour $r = 0$ à $r = -25$ mm tous les 5 mm. On note que l'écart-type géométrique de la distribution moyenne ainsi obtenue est nécessairement supérieur à l'écart-type instantané considéré dans le calcul de $D_{g,geo}$ qui a été fixé à 1,6.

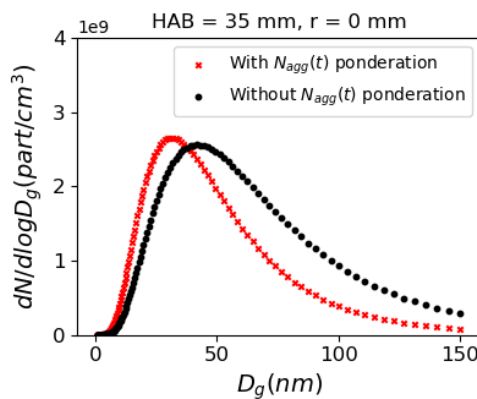


Figure 109 : Distribution de taille moyenne en D_g obtenue pour HAB = 35 mm et $r = 0$ mm pour le point de fonctionnement 1 avec (croix rouges) ou sans (disques noirs) pondération par N_{agg} .

Les distributions moyennes ainsi calculées sont reportées pour diverses positions sur la Figure 110 pour le point de fonctionnement 1 et sur la Figure 111 pour le point de fonctionnement 2. On observe pour les deux points de fonctionnement des modes situés aux alentours de 35 nm et des concentrations aux alentours de 10^9 part/cm^3 . Pour le point de fonctionnement 1, une décroissance de la concentration accompagnée d'une légère diminution des diamètres sont observées lorsque l'on s'éloigne de l'axe central de la flamme. Pour le point de fonctionnement 2, on observe globalement des diamètres plus petits que pour le point de fonctionnement 1. Ceux-ci diminuent à proximité de l'axe central de la flamme puis augmentent lorsque l'on s'en éloigne. Comme on a déjà pu l'observer pour d'autres quantités relatives aux suies, il est probable que cette diminution de concentration dans l'IRZ soit provoquée par l'oxydation, d'autant plus que cet effet est

plus marqué à des hauteurs élevées. Les concentrations diminuent pour des positions radiales plus élevées à la sortie de l'IRZ.

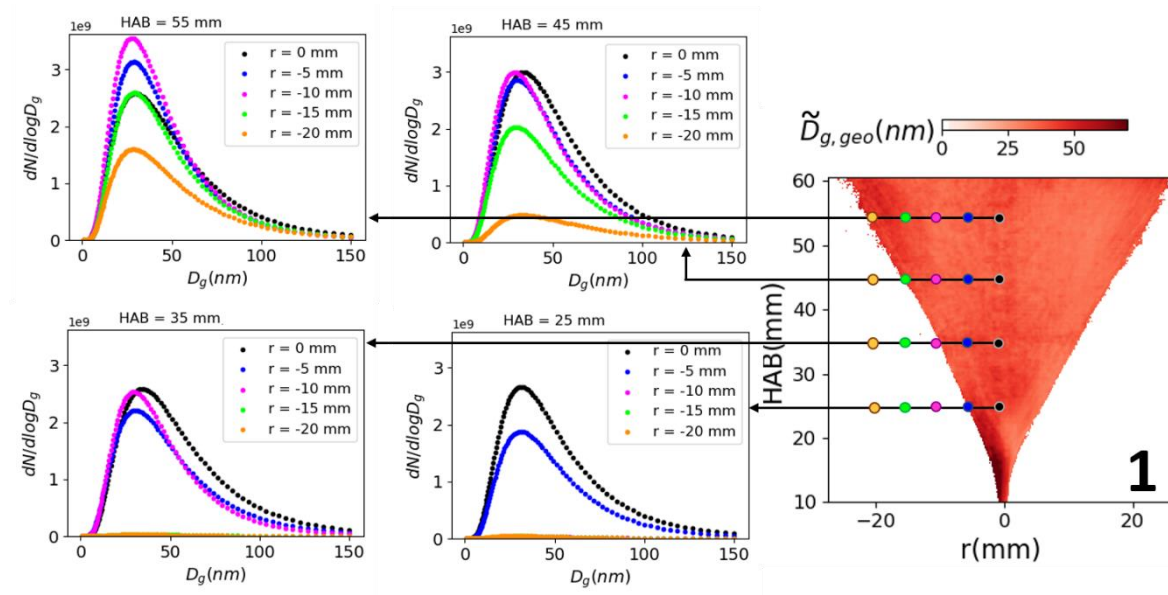


Figure 110 : Profils radiaux de distributions de tailles exprimées en diamètre de gyration (en $part/cm^3$) pour le point de fonctionnement 1 pour des HAB de 25, 35, 45 et 55 mm. L'image de droite représente une moyenne conditionnée directe des $D_{g,geo}$ et non les diamètres médians de la distribution moyenne.

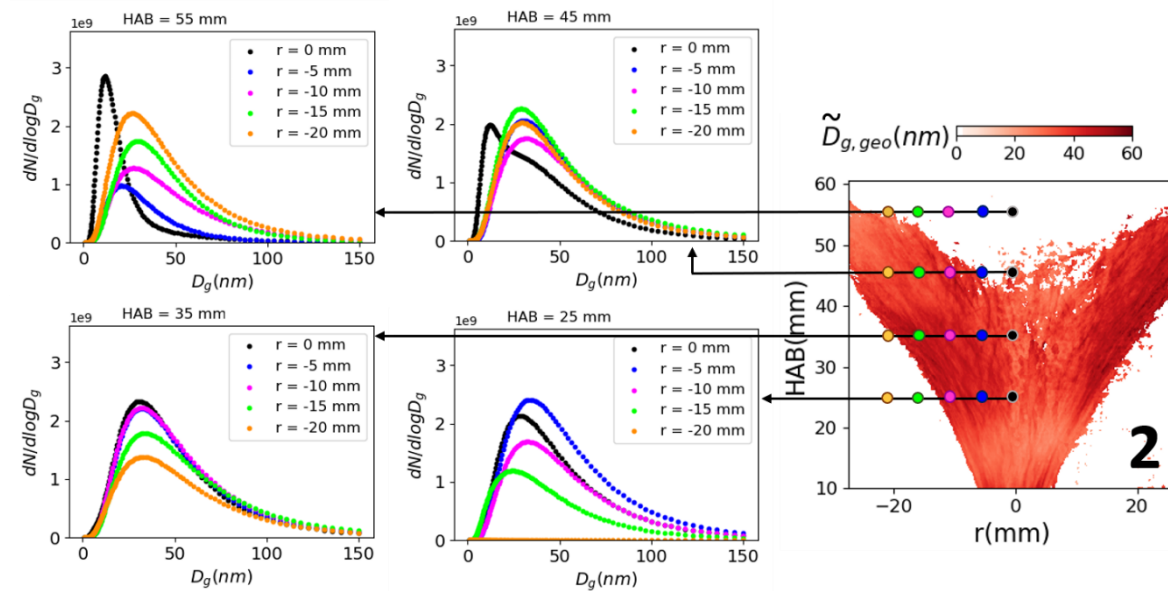


Figure 111 : Profils radiaux de distributions de tailles exprimées en diamètre de gyration (en $part/cm^3$) pour le point de fonctionnement 2 pour des HAB de 25, 35, 45 et 55 mm. L'image de droite représente une moyenne conditionnée directe des $D_{g,geo}$ et non les diamètres médians de la distribution moyenne

5.7.4 Comparaison avec les mesures ex-situ par SMPS

Des mesures de distribution de taille de suie par prélèvement ont également été réalisées. Une adaptation est cependant nécessaire en vue de comparer les résultats obtenus par les deux approches (optique et prélèvement). L'aspect lissage temporel et spatial a été discuté dans la section précédente. Il reste néanmoins à convertir les diamètres car le SMPS mesure des diamètres de mobilité alors que la mesure optique repose sur des diamètres de giration. Une procédure de conversion détaillée dans Yon et al. [157] est donc utilisée afin de convertir les diamètres de mobilité en diamètres de giration. Il s'agit en fait d'une généralisation de la procédure basée sur la densité effective utilisée dans la section 4.4 à tout type de particules de suie moyennant la connaissance de D_p , k_f , D_f , de la température et de la pression. Les valeurs considérées ici pour cette conversion sont : $D_p = 15 \text{ nm}$, $k_f = 1,94$, $D_f = 1,77$. Une comparaison entre les distributions mesurées par SMPS en diamètre de mobilité D_m et diamètre de gyration D_g (après conversion) avec la distribution obtenue par diffusion (en D_g) pour le point de fonctionnement 2 à HAB = 55 mm et $r = -15 \text{ mm}$ est présentée sur la Figure 112. Cela permet de visualiser l'effet de la conversion de D_m vers D_g . On observe que le mode est légèrement décalé vers les grands diamètres mais c'est surtout la dispersion qui est augmentée lors de cette conversion. On remarque que la distribution en D_g se rapproche de la distribution obtenue par diffusion en termes de dispersion et de mode. Les distributions mesurées par méthode optique et par prélèvement sont relativement proches pour ce point de fonctionnement même si l'accord n'est pas parfait pour la traine de la distribution. En revanche, on observe un accord très satisfaisant en termes de concentration en nombre de particules par les deux techniques.

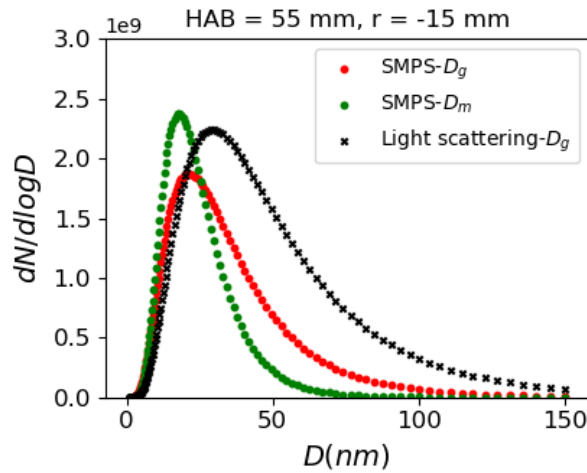


Figure 112 : Comparaison entre les distributions de taille obtenues par SMPS en diamètre de mobilité D_m (en vert) et diamètre de gyration D_g (en rouge) avec la distribution obtenue par diffusion (en D_g , en noir) pour le point de fonctionnement 2 à HAB = 55 mm et $r = -15 \text{ mm}$.

Afin de comparer les résultats des deux méthodes à diverses positions dans la flamme, la Figure 113 (point de fonctionnement 1) et la Figure 114 (point de fonctionnement 2) montrent les profils radiaux de N_{agg} , $D_{g,geo}$ et $\sigma_{g,geo}$ obtenus par la technique de diffusion et par prélèvement SMPS. Pour rappel, les distributions obtenues par méthode optiques sont moyennées temporellement par la procédure explicitée dans la section précédente et les distributions SMPS sont converties en diamètre de giration. On observe globalement un

accord d'ordre de grandeur satisfaisant entre les deux techniques de mesure pour les trois paramètres. Pour le point de fonctionnement 1, les évolutions en concentration sont retrouvées avec les deux techniques, c'est-à-dire un N_{agg} maximum au milieu de la flamme et qui diminue lorsqu'on sort de l'IRZ. Des différences entre les deux techniques de l'ordre de 10^9 part/cm^3 sont toutefois observées. En ce qui concerne les diamètres médians de la distribution log-normale, on trouve au maximum des écarts de 25 nm et les tendances sont difficilement retrouvées. En effet, les résultats issus de la diffusion indiquent des profils radiaux plats alors que les mesures par prélèvement indiquent une diminution du diamètre médian lorsqu'on s'éloigne de l'axe central du brûleur. Pour ce qui est de la dispersion de la distribution représentée par $\sigma_{g,geo}$, on obtient avec les deux techniques des valeurs autour de $1,9 \pm 0,2$. Un accord satisfaisant entre les deux méthodes de mesure est observé pour HAB = 35 mm et HAB = 45 mm. A HAB = 55 mm, on observe des tendances quelque peu différentes pour les deux méthodes avec des écarts pouvant être significatifs. En revanche les deux techniques révèlent l'augmentation de dispersion à l'approche de l'axe central de la flamme.

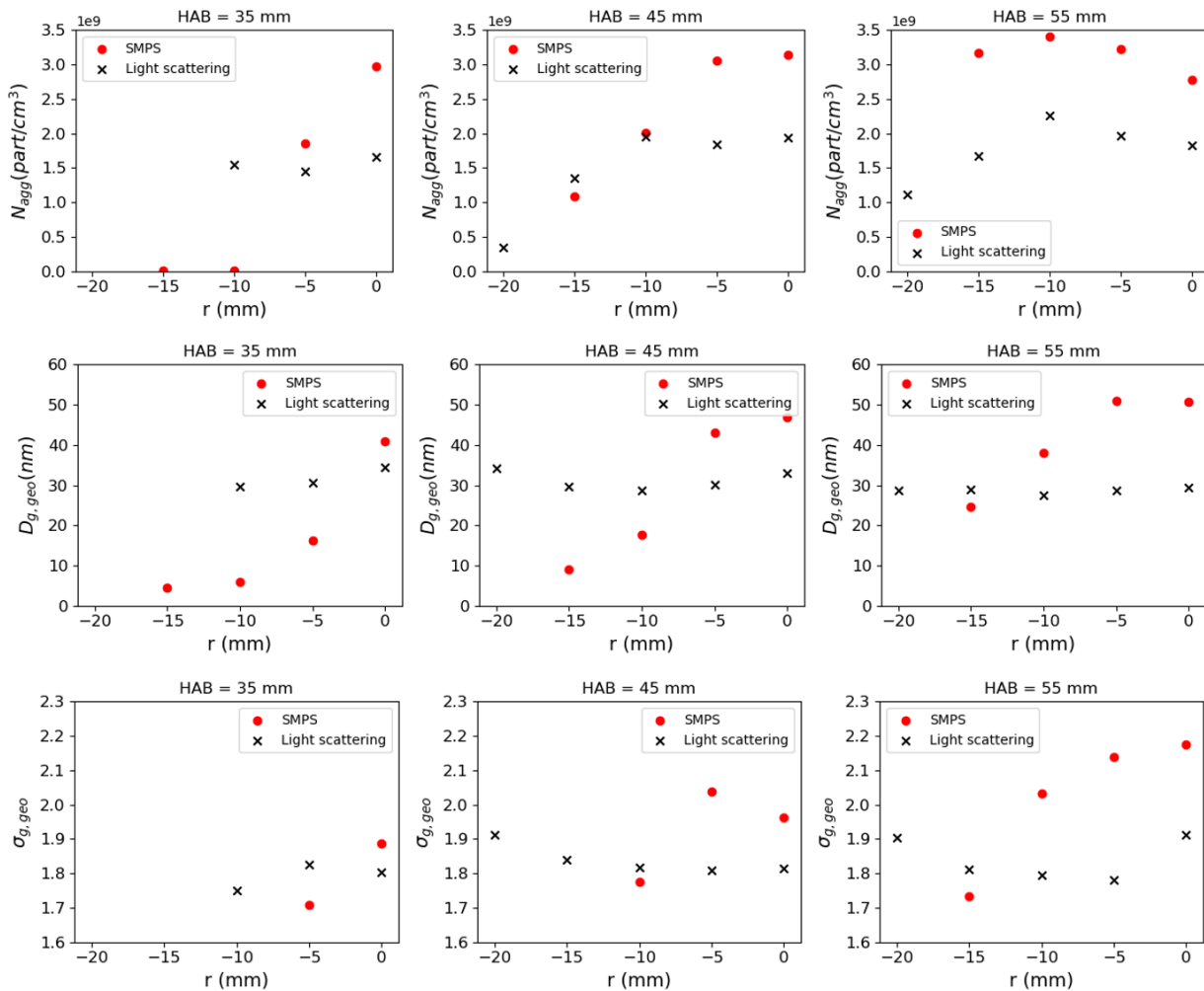


Figure 113 : Profils radiaux de N_{agg} (ligne du haut), $D_{g,geo}$ (ligne du milieu) et $\sigma_{g,geo}$ (ligne du bas) pour trois hauteurs : HAB = 35 mm (à gauche), HAB = 45 mm (au centre) et HAB = 55 mm (à droite) pour le point de fonctionnement 1. Les paramètres provenant de l'analyse optique sont représentés par les croix noires et les paramètres issus du prélèvement et de la mesure SMPS par les cercles pleins rouges.

Pour le point de fonctionnement 2 (Figure 114), un bon accord entre les deux mesures est observé pour ce qui est des concentrations N_{agg} . Les deux méthodes de mesures indiquent des tendances similaires à l'exception de ce qui est mesuré sur l'axe central de la flamme où la méthode optique suggère une augmentation de concentration alors que le prélèvement indique le contraire. L'ordre de grandeur des diamètres médians est similaire pour les deux techniques de mesure. Comme pour le point de fonctionnement 1, on trouve ici une différence d'évolution : les mesures de diffusion indiquent un profil radial de $D_{g,geo}$ quasiment plat avec une légère baisse lorsqu'on se rapproche de $r = 0$ mm surtout pour les hauteurs élevées alors que les mesures SMPS donnent une diminution radiale. Le même constat est fait sur les dispersions $\sigma_{g,geo}$. L'interprétation physique des résultats des techniques précédemment appliquées à cette flamme a montré la formation d'une zone propice à l'oxydation au centre de la flamme surtout à des HAB élevés. On aurait donc tendance à s'attendre à une diminution de la taille des agrégats et donc à faire confiance à la diffusion ici. L'intrusivité de la technique de mesure par prélèvement peut expliquer ces différences, surtout dans la partie basse de la flamme où la sonde mécanique perturbe la flamme. C'est d'ailleurs pour cette raison que les mesures de prélèvement n'ont pas été réalisées en dessous de HAB = 35 mm. Il est également possible que le prélèvement soit moins fiable dans la partie centrale de la flamme à cause de la perturbation de la recirculation des gaz. Enfin, les écarts entre les deux techniques de mesure peuvent s'expliquer par la méthode d'étalonnage de la concentration obtenue par diffusion développée dans la section 5.7.2 qui utilise des résultats provenant de la LII et cumule donc les incertitudes liées aux deux techniques de mesure. L'accord entre les deux techniques de mesure est néanmoins très correct en termes d'ordres de grandeurs sachant les différentes étapes de traitement nécessaires pour l'analyse optique et les contraintes de prélèvement associées aux mesures SMPS.

Les résultats concernant la diffusion de la lumière présentés dans ces dernières sections représentent un développement innovant qui présente un potentiel important pour l'analyse de la production de suie dans des flammes stationnaires / turbulentes. Les bons accords avec les mesures SMPS renforcent de plus notre confiance sur la qualité des mesures de diffusion et de LII autocompensée qui ont été utilisées pour l'étalonnage de la concentration en nombre obtenue par la technique de diffusion. La présente analyse montre que les particules de suie produites dans ces flammes sont, en moyenne, particulièrement fines suggérant que la grande majorité des agrégats ne sont constitués que de quelques unités de sphérules. Il existe cependant de plus grosses particules au sein des poches de suies dont la taille suit une tendance corrélée négativement à la concentration en nombre d'agrégats, suggérant une distribution spatiale relativement uniforme de la fraction volumique de suies au sein des poches de suie, ce qui a été en partie observé lors de l'analyse des résultats des mesures LII.

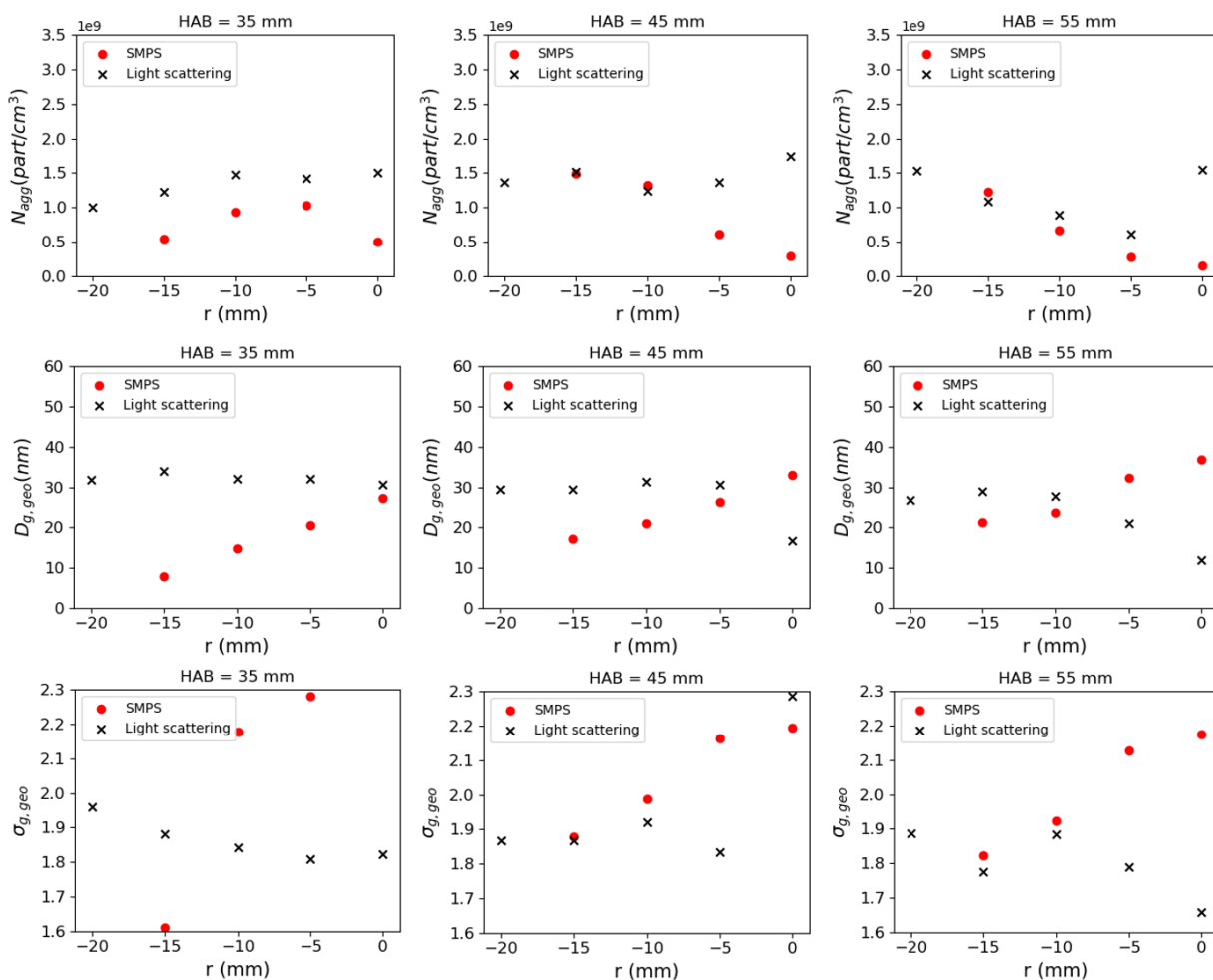


Figure 114 : Profils radiaux de N_{agg} (ligne du haut), $D_{g,geo}$ (ligne du milieu) et $\sigma_{g,geo}$ (ligne du bas) pour trois hauteurs : HAB = 35 mm (à gauche), HAB = 45 mm (au centre) et HAB = 55 mm (à droite) pour le point de fonctionnement 2. Les paramètres provenant de la diffusion sont représentés par les croix noires et les paramètres issus du prélèvement par les cercles pleins rouges.

5.8 Scénario de formation et de consommation des particules de suie dans le brûleur SIRIUS

Les nombreux diagnostics effectués dans les flammes produites avec le brûleur SIRIUS ont permis d'identifier les interactions entre les espèces chimiques gazeuses, le champ aérodynamique et la température aboutissant à la formation des précurseurs de suie puis à celle des particules de suie et enfin à leur consommation par oxydation. La combinaison simultanée de ces diagnostics de mesure a permis de s'assurer de la pertinence des conclusions tirées des images moyennes. Elle a aussi permis d'observer les modifications de l'écoulement et de la flamme induites par un changement de swirl et de stratification en ayant recours à des images instantanées. De même, les impacts de ces paramètres opératoires sur la production de HAP et de suies ont pu être évalués. La visualisation haute-cadence a de plus permis de confirmer l'existence de phénomènes physiques que nous avons suggérés lors de l'observation des résultats des diagnostics non résolus en temps comme le mélange des poches de suie et des structures filamenteuses de nucléation. Cette

section fait office de bilan et résume le scénario de formation et d'oxydation des suies qui se dessine après le traitement des données récoltées durant ma thèse. La description qui suivra est globale, qualitative et peut donc demander des précisions qui peuvent être trouvées dans ce chapitre. Elle permet néanmoins d'interpréter les distributions spatiales des grandeurs physiques mesurées et de les relier entre-elles face aux mécanismes de développement de formation et de consommation des suies en flamme.

La Figure 115 présente un résumé des mesures couplées de PLIF-HAP, PLIF-OH et LII sur le point de fonctionnement 2 avec la présentation d'un champ instantané pour les positions radiales négatives et un champ moyen pour les positions radiales positives. L'injection du prémélange d'éthylène / air dans les couronnes interne et externe est représentée par les flèches violettes. Un front de flamme accroché au tube séparant les deux écoulements co-annulaires se développe au sein du jet externe en régime de combustion pauvre (ligne violette). Le mélange riche en combustible qui est injecté par la couronne interne empêche toute formation de front de flamme dans la partie centrale de la flamme (écoulement interne et IRZ) puisque on ne détecte pas de radical OH dans cette zone. Dans le même temps, le combustible contenu dans ce mélange pauvre en oxygène se décompose sous l'effet de la température (pyrolyse) en sous-produits aboutissant finalement à la formation de HAP qu'on détecte par PLIF-HAP (en niveaux de gris sur la figure et pyrolyse indiquée par des flèches bleues). Cette décomposition chimique se produit dans une région où les gradients de température sont élevés avec un passage de la température d'injection (~ 300 K) à une température supérieure à 1000 K sur quelques millimètres. Vers les positions radiales élevées, les HAP rencontrent les produits de combustion chauds issus du front de flamme et chargés en molécules oxydantes comme le radical OH, que l'on est capable de détecter, mais également de l'oxygène. Concernant les HAP transportés vers l'IRZ, on observe un pic de signal coïncidant avec la présence de la couche de cisaillement interne puis une diminution rapide lorsqu'on pénètre dans l'IRZ. Cette diminution peut être attribuer à deux processus physiques :

- La nucléation en particules de suie puisque c'est à cette position qu'on détecte la formation de longs et fins filaments de suie (région colorée en jaune).
- L'oxydation ou la décomposition thermique puisque, on le détaillera par la suite, l'IRZ est chargées en espèces oxydantes et les températures y sont élevées.

Une augmentation progressive de la fraction volumique de suies est observée au sein de ces filaments qui finissent par former des grosses poches de suie à des hauteurs plus élevées. A ce moment, les poches de suie peuvent être transportées dans l'IRZ où les particules de suie vont subir de la croissance de surface, de l'aggrégation mais également être oxydées par la recirculation des gaz chauds contenant du OH et vraisemblablement de l'oxygène (zone délimitée par le trait blanc). La présence de suie dans l'IRZ est très intermittente à cause des processus de mélanges turbulents et de la succession de conditions propices à la croissance et à l'oxydation des agrégats. Lorsque les poches sont transportées dans la partie haute de la flamme ($HAB > 70$ mm pour le point 2), elles sont totalement oxydées par la recirculation des gaz émanant de l'écoulement externe (hachures vertes). Une diminution des niveaux de production de suie sont observés entre les points de fonctionnement 2 et 3 puisque l'augmentation du swirl favorise le mélange avec l'écoulement externe et donc l'oxydation. La même chose est observée pour le point 1 qui présente un swirl moins élevé donc des niveaux de production de suie augmentés. D'un point de vue qualitatif, le point de fonctionnement 1 possède la particularité d'avoir une pénétration de l'IRZ au centre de la flamme ne descendant pas jusqu'à la sortie du brûleur. Une zone de faible vitesse existe alors dans la partie basse de la flamme proche de l'axe central de la flamme et celle-ci est propice à la production d'une fine structure ligamentaire de suie verticale qui alimente ensuite les filaments contenus dans l'ISL. Ce phénomène contribue à une présence beaucoup moins intermittente de ces filaments de nucléation au niveau de l'ISL. Les fractions volumiques moyennes peuvent atteindre jusqu'à 84 ppb pour le point de fonctionnement 1 et

au maximum 15 ppb pour le point de fonctionnement 2, indiquant une réduction significative de la production de suie avec l'augmentation du swirl au travers des mécanismes susmentionnés. On observe une forte disparité spatiale de fraction volumique renforcée par l'intermittence de la flamme. Au sein des poches de suie, on peut atteindre des fractions volumiques supérieures avec des pics atteignant 250 ppb pour le point de fonctionnement 1 et 100 ppb pour le point de fonctionnement 2 et des valeurs moyennes (conditionnées) respectivement égales à 140 ppb et 80 ppb pour ces deux points de fonctionnement avec une faible dépendance à leur localisation au sein de la flamme. Cette uniformité de grandeurs physiques se retrouve sur les diamètres moyens des agrégats puisque les diamètres de giration sont de l'ordre de 30 nm dans les deux flammes et ce quel que soit la position des poches de suie. On note cependant des particules pouvant atteindre 75 nm dans le bas de la flamme 1 (filament connecté à la base du bluff-body) et 60 nm pour la flamme 2. Cette uniformité globale se retrouve sur l'écart-type géométrique qui est de l'ordre de 1,8-1,9 partout dans les deux flammes, en très bon accord avec les résultats provenant des mesures par prélèvement (SMPS). Il existe cependant des variations importantes de la taille des particules au sein des poches de suie. Des particules dont le diamètre de giration pouvant atteindre 100-150 nm ont été observées pour le point de fonctionnement 1. Une corrélation négative a également été observée avec la concentration en particules au sein des poches de suie. Cependant, les concentrations moyennes demeurent relativement uniformes avec des ordres de grandeur de $2 \cdot 10^9 \text{ part/cm}^3$ pour le point de fonctionnement 1 et entre 10^9 et $1,5 \cdot 10^9 \text{ part/cm}^3$ pour le point de fonctionnement 2. Les agrégats sont donc considérés comme globalement petits et constitués de sphérules dont le diamètre est évalué à moins de 20 nm pour le point de fonctionnement 1 et moins de 18 nm pour le point de fonctionnement 2. Cela indique que les agrégats doivent, le plus souvent, être constitués de moins de 10 sphérules pour les deux flammes (observation confirmée par les analyses des dépôts de suie par microscopie). Cependant, on peut observer de façon épisodique des particules plus grosses (jusqu'à 150 nm) et dont le nombre de sphérules ne doit pas excéder 30.

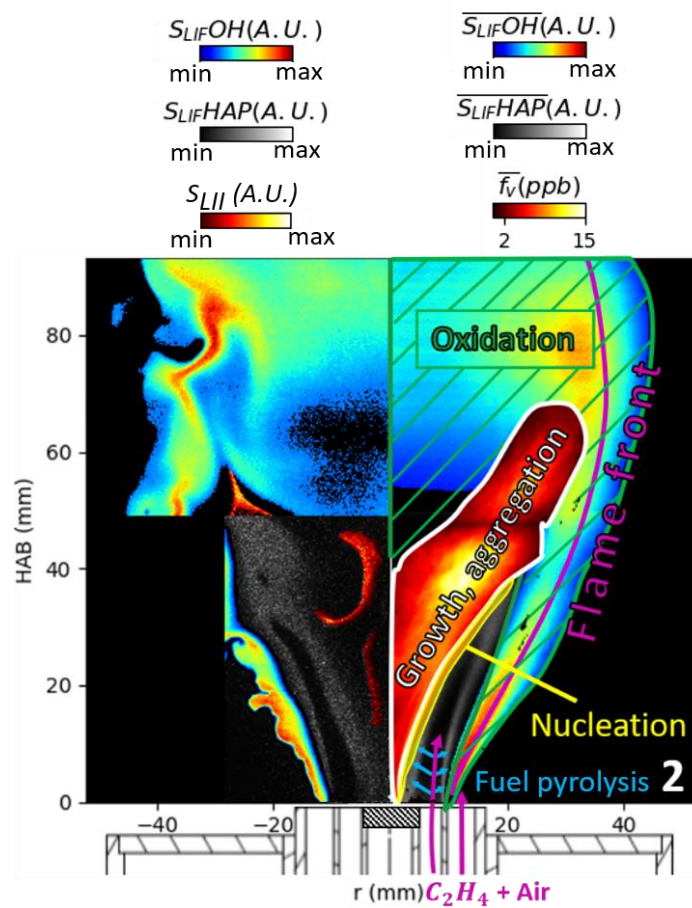


Figure 115 : Scénario de formation et d'oxydation des suies pour le point de fonctionnement 2.

Chapitre 6. Conclusion et perspectives

Les travaux de thèse présentés dans ce manuscrit et réalisés dans le cadre du projet européen SOPRANO, s'inscrivent dans un contexte de réduction des émissions de particules fines (suie) produites dans les moteurs aéronautiques. L'objectif final de ces activités consiste à anticiper les normes de régulation à venir en termes d'émissions particulières ainsi qu'à réduire l'impact environnemental et sanitaire du trafic aérien. Les objectifs principaux de mon activité scientifique étaient multiples et consistaient à :

- Elaborer d'un brûleur académique (SIRIUS) reprenant les principales caractéristiques des brûleurs aéronautiques, c'est-à-dire des écoulements réactifs swirlés (mouvement tourbillonnaire) et stratifiés (gradient de richesse à l'injection).
- Développer des outils de métrologie optique avancés pour analyser quantitativement les propriétés des particules de suie (fraction volumique de suies, diamètres, concentrations) au cours de leur formation dans ce brûleur.
- Coupler plusieurs diagnostics de mesures optique et/ou de prélèvement innovants, afin d'améliorer la compréhension de la formation des particules de suie en flamme swirlée et stratifiée et en apportant des données détaillées destinées à des futures validations de modèles de suie.

6.1 Bilan des résultats obtenus

Le brûleur académique SIRIUS (SwIrl stRatified bUrnEr for the study of Soot production) a été conçu en reprenant le principe d'un injecteur aéronautique industriel de type multi-point tout en simplifiant son architecture et son fonctionnement. Ce dernier permet de former des écoulements réactifs swirlés et stratifiés tout en contrôlant l'intensité du swirl et la stratification avec une injection de prémélange gazeux du combustible et de l'air. L'éthylène a été utilisé comme combustible gazeux pour toutes les activités scientifiques présentées dans ce mémoire de thèse. L'objectif de la thèse était d'étudier la production de suie dans les flammes produites par le brûleur SIRIUS en fonction de l'intensité du swirl et de la stratification de la richesse. Plusieurs points de fonctionnement ont ainsi été définis en faisant varier ces paramètres pour obtenir une vue d'ensemble de leur impact sur les changements apportés à la formation des suies.

Plusieurs diagnostics optiques ont été utilisés afin d'investiguer les quantités physico-chimiques entrant en jeu lors des différentes étapes de la formation et de l'oxydation des suies en flamme. Les champs de vitesse ont été mesurés par PIV. L'imagerie de fluorescence induite par laser sur le radical OH a été implémentée afin de suivre le front de flamme et les gaz brûlés. C'est également une espèce chimique jouant un rôle majeur dans l'oxydation des suies et de ses précurseurs (essentiellement les HAP). Ces précurseurs ont été localisés par imagerie de fluorescence induite par laser. En ce qui concerne les particules de suie, plusieurs diagnostics ont été appliqués sur le brûleur SIRIUS et ont bénéficiés de développements innovants. Premièrement, l'Incandescence Induite par Laser (LII) a été mise en œuvre en configuration auto-compensée, ce qui a permis une mesure de la fraction volumique f_v et des diamètres des sphérules primaires D_p des suies. L'application de cette technique en configuration 2D dans une flamme turbulente constitue, à notre connaissance, une première. De plus, une méthode de correction de l'effet de l'intégration temporelle du signal pour la mesure de f_v a été développée. Une étude de la sensibilité de ce diagnostic à certains paramètres inhérents aux traitements des données a finalement été proposée.

Un second diagnostic optique reposant sur la diffusion élastique de la lumière a fait l'objet d'un développement détaillé pour la mesure de la taille et de la concentration des particules de suie en flamme.

La diffusion angulaire 2D et à haute-cadence (1 kHz) a été développée et appliquée sur les flammes du brûleur SIRIUS. La déclinaison de cette technique en configuration 2D et en flamme turbulente constitue une avancée de la technique puisqu'aucuns travaux similaires, capable de quantifier la taille des nanoparticules de suie en 2D et à haute cadence, n'étaient jusqu'ici reportés dans la littérature scientifique. Le passage à des mesures haute cadence est, dans les flammes turbulentes, un outil extrêmement utile afin d'observer l'évolution temporelle de la taille des particules ainsi que les processus de croissance et d'agglomération des suies au sein même des poches et des structures ligamentaires.

En prévision d'une future mise en œuvre en milieux confinés tels que les chambres de combustion à haute-pression pour lesquels les accès optiques sont limités, un troisième diagnostic laser a été développé. Ce dernier diagnostic repose également sur la diffusion de la lumière par les particules mais exploite sa dépendance spectrale. Cette exploitation permet la détermination des deux paramètres de la distribution de taille log-normale des agrégats de suie tout en réduisant la collection optique des signaux mesurés à deux angles, là où une approche monochromatique nécessite l'utilisation de trois angles de diffusion au minimum [177]. Pour ce faire, l'évolution spectrale du signal de diffusion est exploitée avec une source de lumière polychromatique et un spectromètre. Afin de valider la méthode de mesure et le traitement des données, une comparaison avec des mesures granulométrique par SMPS dans un aérosol de particules de suie produites avec un générateur commercial a été effectuée. Trois points de fonctionnement produisant des particules différentes en termes de taille, de microstructure et de morphologie ont été analysés. Un bon accord entre les mesures par prélèvement et par diffusion spectrale a été constaté pour les trois conditions opératoires. Puisque la taille est obtenue à partir des rapports d'intensités diffusées à deux angles, l'intensité absolue diffusée à l'un de ces angles peut être réinterprétée. On accède ainsi à une signature spectrale du signal de diffusion qui n'est plus dictée par la taille des particules mais par leur composition ou leur structuration atomique via la fonction de diffusion $F(m)$. Ce développement n'a pas encore été appliqué en flamme à cause de limites techniques matérielles (faible puissance de la source de lumière) mais il constitue une avancée pour la mesure de la distribution en taille de particules dans des environnements confinés.

Concernant les techniques non-optiques, la température étant un des paramètres importants à obtenir dans la caractérisation de la formation des suies, cette grandeur a été mesurée au moyen de thermocouples. Des prélèvements ont également été effectués à l'aide d'une sonde et d'un dispositif de dilution à chaud placés directement dans la flamme et par lesquels les gaz et particules prélevés sont quenchés avec un écoulement d'azote à température ambiante. Les distributions de taille des suies prélevées a ensuite été analysée par SMPS et des dépôts dédiés à la microscopie ont été réalisés. Les diamètres d'agrégats obtenus par cette méthode ont été comparés à ceux obtenus par diffusion de la lumière et ceux-ci ont montré un bon accord tant sur les diamètres que sur la concentration en nombre. Il est cependant compliqué de statuer sur des écarts de quelques nanomètres issus de ces deux techniques compte tenu de l'intrusivité de la sonde de prélèvement et du traitement des données issues du SMPS puisque ce dernier mesure un diamètre de mobilité alors que les mesures optiques rapportent un diamètre de gyration. Concernant l'analyse par microscopie, seul quelques clichés à une position de la flamme et un point de fonctionnement ont pu être analysés, ce qui a empêché la réalisation d'une analyse statistique. Nous avons néanmoins obtenu des informations sur les dimensions observées qui corroborent les ordres de grandeurs obtenus avec les méthodes optiques, notamment au niveau du diamètre des sphérules primaires.

Les techniques lasers présentent l'avantage de pouvoir être couplées simultanément afin d'obtenir des images instantanées de plusieurs grandeurs physiques. Cela constitue un apport intéressant surtout dans le cas de l'analyse de la formation des suies en flamme turbulente où des quantités différentes variant temporellement jouent des rôles clés. Ainsi, l'imagerie de fluorescence induite par laser sur le radical OH et sur les HAP, la PIV et la LII ont été couplés. Les interactions entre le champ aérodynamique, le front de flamme,

les gaz brûlés, la décomposition thermique du carburant par pyrolyse et la formation des précurseurs sur les particules de suie ont ainsi pu être analysés en détail, instantanément et sans les biais qu’apporterait une analyse purement statistique. Un scénario précis et typique de formation et d’oxydation des particules de suie dans les flammes produites par le brûleur SIRIUS a finalement été proposé avec la localisation des régions associées aux différents processus physico-chimiques gouvernant l’histoire des particules de suie dans cette flamme, c’est-à-dire la pyrolyse du carburant, la formation des précurseurs, la nucléation, la croissance de surface, l’agrégation puis l’oxydation. C’est le caractère « simplifié » des écoulements étudiés qui a permis cette analyse graduelle de localisation des processus physico-chimiques, tâche qui serait bien plus complexe dans des flammes purement turbulentes. Les informations ainsi recueillies au sein de ce brûleur, qui se situe en position intermédiaire entre les configurations académiques de flammes laminaires et les brûleurs semi-industriels, servira de base de validation dans le proche futur pour les modèles de suie utilisés dans les simulations numériques. En effet, cette configuration de flamme reprend les principaux mécanismes rencontrés en combustion aéronautique et représente un intermédiaire intéressant en termes de complexité pour la validation des simulations numériques.

6.2 Perspectives

Dans sa configuration actuelle, et avec le potentiel des techniques accessibles au sein du laboratoire CORIA, plusieurs techniques pourraient être mises en œuvre afin d’accroître nos connaissances sur la production de suie dans le brûleur SIRIUS. Premièrement, des mesures de température par DRASC femtoseconde (Diffusion Raman anti-Stokes cohérente) pourraient être effectuées afin d’obtenir des informations précises de température que ne peuvent pas être obtenues avec des thermocouples (biais des mesures suite à l’intrusivité des capteurs). De plus, ce diagnostic, tel qu’il est développé au CORIA, permet des mesures à une cadence de répétition pouvant atteindre jusqu’à 10 kHz, ce qui permet de suivre temporellement l’évolution de la température dans les flammes turbulentes. En effet, la haute cadence est un avantage conséquent lorsqu’il s’agit d’étudier la formation des suies en flamme turbulente qui est un phénomène intermittent. Le couplage de diagnostics de mesure permettant d’obtenir des grandeurs scalaires interagissant entre-elles est également riche d’informations. La diffusion angulaire à haute cadence développée dans ma thèse a permis une observation dynamique de phénomènes physiques liés au mélange des poches de suie matures et naissantes et à leurs interactions avec le milieu. Il serait extrêmement enrichissant de combiner ce diagnostic avec de l’imagerie de fluorescence induite par laser à haute cadence sur OH pour observer l’oxydation des suies ou sur les HAP pour observer leur nucléation. Une autre piste de recherche serait de mesurer les champs de vitesse à haute cadence afin d’avoir une idée précise de l’interaction des suies avec l’écoulement, notamment afin de mieux observer les effets du cisaillement sur le processus de nucléation. Durant ma thèse, beaucoup de questionnements sur la maturité des particules de suie ont été abordés. L’application de la diffusion à plusieurs longueurs d’onde pourrait être un moyen d’obtenir des informations sur la maturité par la mesure de la fonction d’absorption $F(m)$ qui, rappelons-le, varie en fonction du rapport OC/TC . Une configuration à trois caméras et deux lasers pourrait être envisagée avec deux caméras utilisées pour la mesure de taille et de $F(m)$ à une longueur d’onde et une troisième pour une mesure de $F(m)$ dans l’UV, domaine spectral où cette fonction est significativement dépendante de OC/TC . Une caractérisation plus approfondie de la taille des particules primaires des agrégats de suie pourrait également être une piste d’étude. En effet, j’ai réussi au cours de ma thèse à obtenir des diamètres D_p moyennés temporellement. Il serait intéressant d’avoir recours à une mesure résolue en temps afin de s’affranchir des éventuels effets de mélange de suies matures avec des suies naissantes. Une approche expérimentale avec l’équipement disponible actuellement au laboratoire serait d’utiliser un photomultiplicateur (PMT) pour enregistrer le

signal de décroissance de LII en un point de la flamme et de coupler cette information à une mesure de diffusion haute-cadence afin de suivre temporellement les poches et les filaments et de comprendre à quel type de suie provient le signal de mesure. Afin d'obtenir une information 2D et instantanée sur D_p , un montage expérimental envisageable serait de réaliser une mesure planaire à une couleur avec deux caméras qui enregistrent à des instants différents la décroissance du signal d'incandescence. Le rapport entre les signaux de mesure pourrait ensuite être utilisé pour déterminer D_p [237]. Cette méthode, de la même manière que la LII autocompensée, présente l'avantage d'utiliser un rapport d'intensité et s'affranchit de plusieurs contraintes relatives à l'absorption du laser ou à des inhomogénéités spatiales de densité d'énergie dans la nappe laser. Pour aller plus loin, une caméra à très haute-cadence (jusqu'à 10 MHz) a été récemment utilisée dans une flamme turbulente pour sonder la décroissance du signal de LII après excitation par une seule impulsion laser ce qui permet d'obtenir une mesure résolue en temps et en espace. Ce type de caméra permet un enregistrement des images avec des temps inter-images de 100 ns, ce qui est en théorie suffisant pour résoudre la décroissance de température des suies pendant une expérience de LII. Cependant, nous nous sommes rendu compte que, dans le brûleur où les fractions de volume sont faibles, le signal de LII devient indétectable avec des caméras intensifiées dont la porte d'ouverture est au mieux déclenchée environ 200 ns après son maximum. La résolution temporelle de ces caméras semble donc être encore insuffisante.

Après l'analyse des procédés de formation des suies dans des flammes produites dans le brûleur SIRIUS dans une configuration non-confinée et à pression atmosphérique, la prochaine étape de cette activité de recherche est de se rapprocher de conditions réelles en ajoutant une enceinte de confinement autorisant une étude de la formation des suies dans des flammes à haute pression. La conception, la fabrication et l'installation du dispositif de montée en pression ont déjà été réalisées. La Figure 116 (a) illustre le brûleur équipé d'un module haute-pression avec ses accès optiques. Sur le plan de coupe à droite, on peut distinguer en rouge le brûleur qui a été étudié durant ma thèse, puis les éléments ajoutés pour la montée en pression : le module de visualisation (en jaune), le convergent (en vert) et le pointeau (en bleu) permettant de régler la section de passage des fluides gazeux au col du convergent. Ce système régule la pression en amont et donc celle de la chambre de combustion. Le pointeau sphérique est refroidi avec une circulation d'eau et sa position est contrôlée par un moteur électrique qu'on peut apercevoir en haut de la photographie au centre de la Figure 116 (a). Les grands accès optiques sont conçus pour une observation complète de la flamme et des fenêtres un peu plus étroites sont prévus pour l'introduction des faisceaux lasers dans la chambre de combustion. Des premières mesures optiques de LII et de fluorescence induite par laser sur OH et sur les HAP ont déjà été effectuées à haute pression. La Figure 116 (b) illustre les premières images obtenues sur un point de fonctionnement proche du point 2 à une pression absolue de 4 bar. La luminosité de la flamme est fortement accentuée lorsque la pression dans la chambre augmente. Cette élévation de la luminosité est relative à l'augmentation de la production de suie, qui est connue pour être fonction de la pression, mais aussi de la température qui est probablement plus élevée que dans le cas d'une flamme à pression atmosphérique. En effet, le débit de combustible est supérieur, donc la puissance de la flamme l'est aussi ce qui devrait changer la structure de flamme. On observe notamment sur les images de PLIF-OH une pénétration plus importante des gaz chauds à l'intérieur de la flamme ce qui ne se produisait dans nos flammes à pression atmosphérique que lorsque le nombre de swirl était élevé (images de droite sur la Figure 116 (b)).

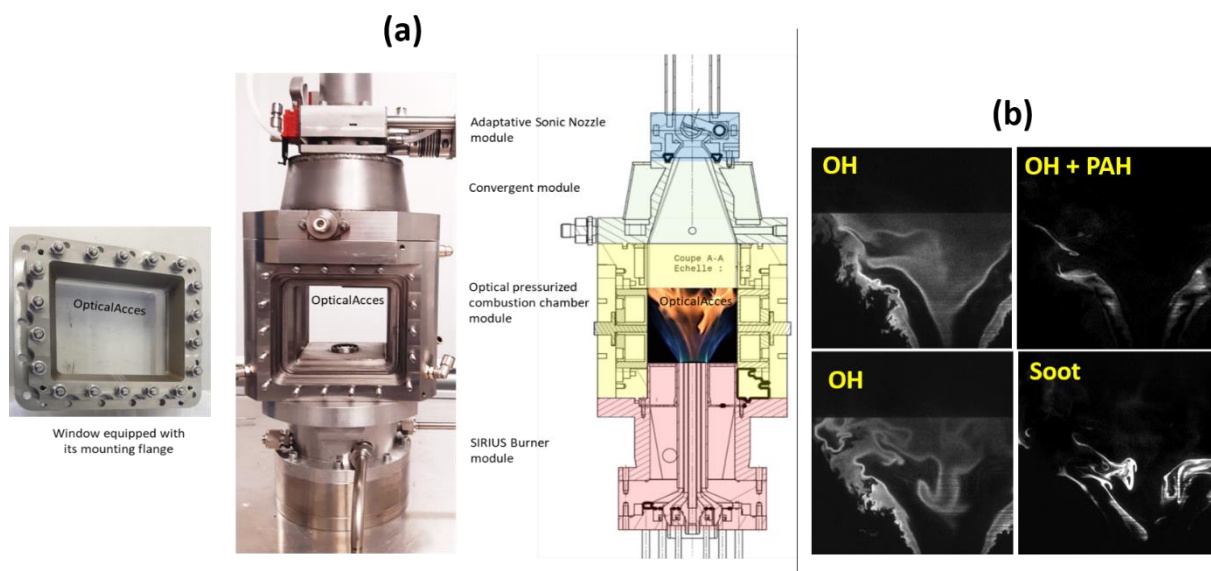


Figure 116 : (a) : Photographies et plan de coupe du brûleur SIRIUS équipé du dispositif de montée en pression. (b) : Images de LII et de fluorescence induite par laser sur OH et sur les HAP sur un point de fonctionnement proche du point 2 à une pression de 4 bar.

L'augmentation de luminosité due à l'émission des suies évoquée ci-dessus constitue cependant ici un signal parasite non-négligeable (filtré sur les images présentées ci-dessus) pour l'application de diagnostics optiques sur des flammes à haute pression. Il est aussi possible que les réflexions sur l'enceinte participent à l'augmentation de ce signal parasite. Un filtrage optique de celui-ci pendant l'acquisition ou lors du post-traitement des images deviendra indispensable. L'application de diagnostics optiques sur les suies peut également être un défi dans ce type de flamme à cause de l'absorption du laser et des signaux de mesure qui deviendrait plus intense lorsque les concentrations en particules sont supérieures. Pour les techniques de mesure optiques exploitant les variations angulaires du signal d'incandescence, les accès optiques limités représentent un obstacle. Pour exemple, dans le cas de la diffusion angulaire, on estime que le couple d'angles avec un écart maximal utilisable avec l'enceinte est $\theta_{sca} = (60^\circ, 90^\circ)$, ce qui ne représente pas des paramètres optimaux. C'est dans ce cadre qu'a été développée la diffusion spectrale pour laquelle la maturité de la technique doit être augmentée avec une application en flamme laminaire avant d'envisager une mesure en flamme turbulente. Ce travail est en cours de développement au laboratoire et sera à terme effectué non pas avec une source laser émettant un continuum de lumière comme cela a été testé dans ma thèse, mais avec une multitude de lasers monochromatiques à différentes longueurs d'ondes associées à plusieurs photomultiplicateurs afin d'atteindre des SNR nécessaires à une application en flamme. Une application en deux dimensions de la diffusion spectrale est également envisagée sur le banc de combustion SIRIUS avec deux caméras détectant les signaux à $\theta_{sca} = 90^\circ$ dans deux domaines de longueur d'onde, évitant ainsi les contraintes produites par la distorsion et par la reconstruction des images enregistrées à des angles autres que $\theta_{sca} = 90^\circ$. Ces différentes activités concernant le passage à haute-pression sont actuellement en cours dans le cadre des thèses d'Aurélien Perrier et d'Andrei-Silviu Milea.

Une autre perspective plus « exotique » pour la technique de diffusion de la lumière est le recours à la mesure 3D. En effet, nous avons remarqué que les flammes turbulentes et, qui plus est, swirlés sont le siège d'écoulements tridimensionnels dont les mesures 2D (sondage avec une nappe laser) sont quelquefois difficilement exploitable car les mesures sont restreintes à un seul plan d'étude. La reconstruction tomographique de volume en 3D constituerait alors un outil intéressant. Cela a récemment été appliqué à la

LII par Meyer et al. [246]. Une transposition au diagnostic de diffusion semble toutefois réalisable ouvrant possiblement la voie à une exploitation possible de la variation angulaire du signal d'incandescence. Ce type de mesure nécessite cependant un nombre de caméras important afin d'obtenir une reconstruction précise en volume (8 dans l'étude citée).

Concernant les développements métrologiques, nous avons montré qu'une mesure par prélèvement gazeux et particulaire était possible. Ceci ouvre un éventail de possibilités d'analyse assez large avec notamment la multitude de méthodes d'analyse par spectrométrie de masse qui permettraient de sonder la composition chimique des gaz et des particules de suie dans les zones de nucléation, de croissance et d'oxydation.

La dernière perspective qui est en fait l'un des principaux objectifs de ma thèse est la comparaison des données expérimentales recueillies avec des simulations numériques. La reproduction fidèle de la formation et de la consommation des suies dans des flammes turbulentes complexes représente encore un défi important pour les numériciens. Toutefois, le caractère semi-simplifié de nos flammes représente un cas intermédiaire intéressant pour l'évaluation de la robustesse et de la précision des modèles de suie, actuellement développés. Des simulations sont en cours au CORIA, CERFACS et EM2C dans le cadre du projet SOPRANO mais aussi du projet ANR ASTORIA où des premières comparaisons devraient être accessibles très prochainement.

Annexes

Annexe 1. Soudure de thermocouple

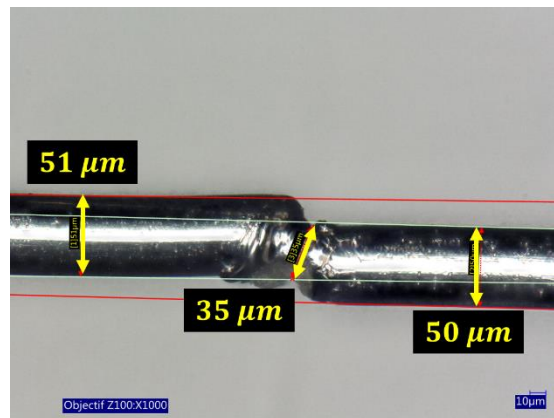


Figure 117 : Image de microscopie de la soudure des thermocouples utilisés pour les mesures de température dans la flamme.

Annexe 2. Fonction de transfert du système de détection utilisé pour la diffusion spectrale

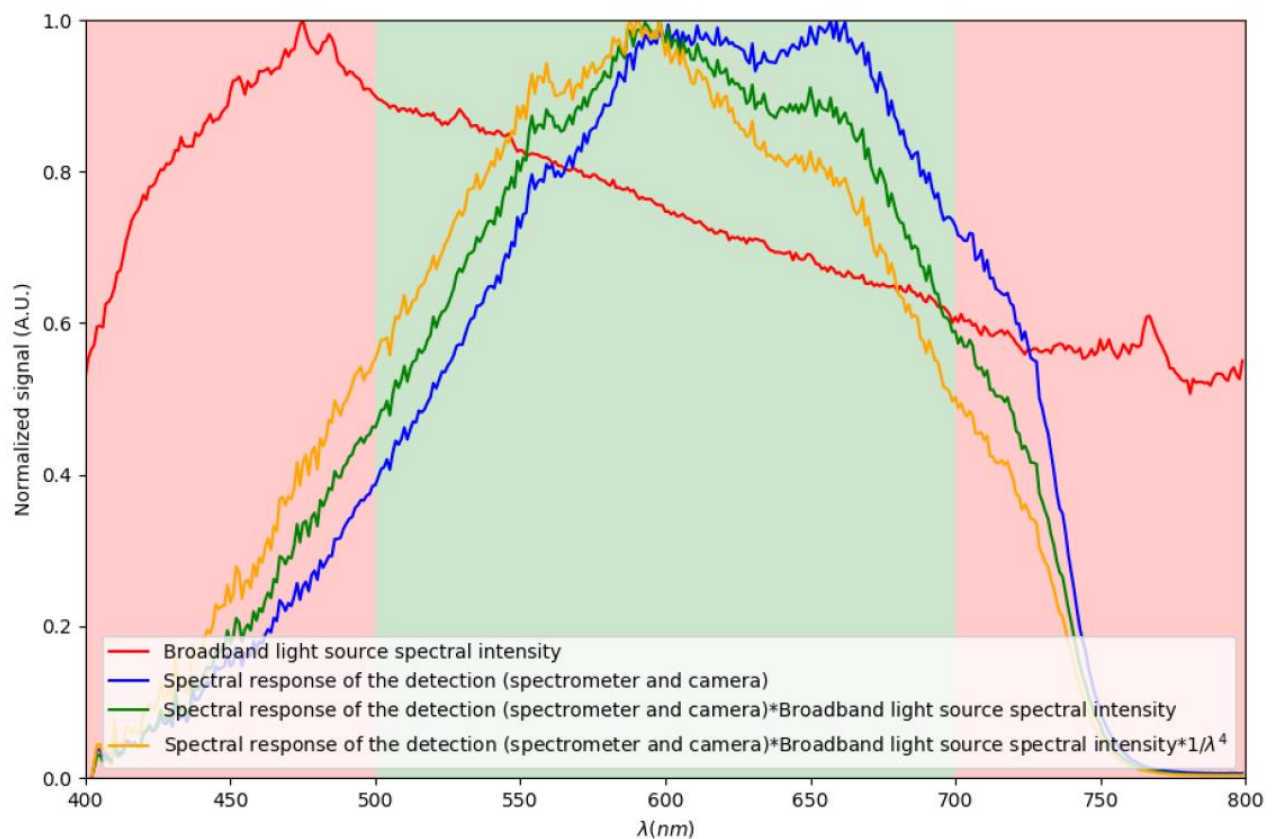


Figure 118 : Comportement spectral des différents composants du dispositif expérimental utilisé pour la diffusion spectrale.

Dans la Figure 118, la courbe rouge représente l'évolution spectrale de l'intensité délivrée par la source blanche. La courbe bleue correspond à la réponse spectrale du système de détection mesurée en l'exposant au rayonnement de sortie de la sphère intégrante. La courbe verte est le produit de la courbe rouge et de la courbe bleue, c'est-à-dire la sensibilité du système de détection au spectre de la source blanche. Enfin, puisque la diffusion de Rayleigh par les particules de suie est spectralement principalement gouvernée par une loi en $1/\lambda^4$, une dernière courbe (orange) est reportée et représente le produit de la courbe verte par le facteur $1/\lambda^4$. Cela permet une représentation claire de la réponse spectrale du dispositif expérimental entier lors d'une expérience de diffusion spectrale. On observe ici clairement comment l'intervalle spectral exploitable est réduit à $[500; 700 \text{ nm}]$.

Annexe 3. Moyennes temporelles des champs de concentration en nombre

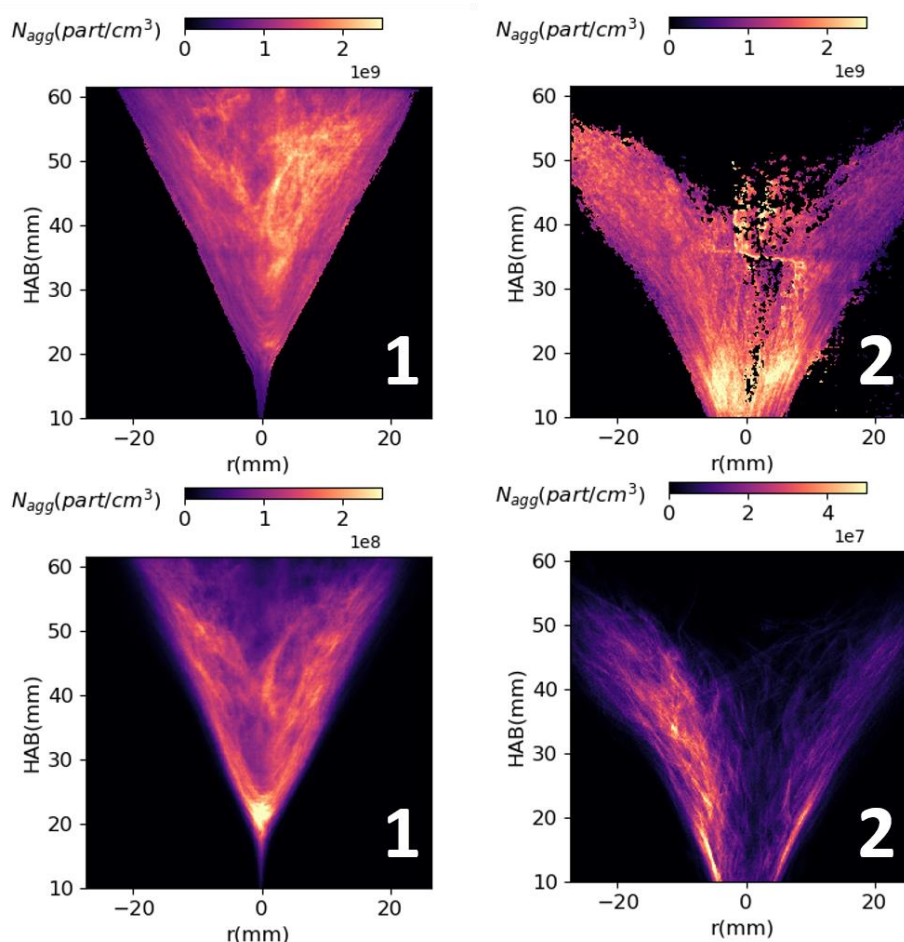


Figure 119 : Moyennes classiques (bas) et conditionnées (haut) de la concentration en nombre d'agrégats pour les points de fonctionnement 1 et 2.

Références bibliographiques

1. IPCC, *Climate Change 2014: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. 2014, IPCC.
2. Dudley, B., *BP statistical review of world energy*. BP Statistical Review, London, UK, accessed Aug, 2018. **6**(2018): p. 00116.
3. Ramanathan, V. and G. Carmichael, *Global and regional climate changes due to black carbon*. Nature Geoscience, 2008. **1**: p. 221.
4. Bond, T.C., et al., *Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment*. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2013. **118**(11): p. 5380-5552.
5. Bond, T.C., et al., *A technology - based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion*. Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984–2012), 2004. **109**(D14).
6. Chung, C.E., et al., *Global anthropogenic aerosol direct forcing derived from satellite and ground - based observations*. Journal of Geophysical Research: Atmospheres (1984 – 2012), 2005. **110**(D24).
7. Kärcher, B., et al., *Insights into the role of soot aerosols in cirrus cloud formation*. Atmos. Chem. Phys., 2007. **7**(16): p. 4203-4227.
8. Burkhardt, U. and B. Kärcher, *Global radiative forcing from contrail cirrus*. Nature Climate Change, 2011. **1**: p. 54.
9. Lee, D.S., et al., *The contribution of global aviation to anthropogenic climate forcing for 2000 to 2018*. Atmospheric Environment, 2021. **244**: p. 117834.
10. Klimont, Z., et al., *Global anthropogenic emissions of particulate matter including black carbon*. Atmos. Chem. Phys., 2017. **17**(14): p. 8681-8723.
11. Pope III, C.A., et al., *Lung Cancer, Cardiopulmonary Mortality, and Long-term Exposure to Fine Particulate Air Pollution*. JAMA, 2002. **287**(9): p. 1132-1141.
12. Européene, U., *RÈGLEMENT (UE) 2016/646 DE LA COMMISSION du 20 avril 2016 portant modification du règlement (CE) no 692/2008 en ce qui concerne les émissions des véhicules particuliers et utilitaires légers (Euro 6)*. 2016: Journal officiel de l'Union européenne.
13. Smoke, A.G.T.E.E., *Measurement, Aerospace Recommended Practice*, SAE ARP1179 Rev. 1997, C.
14. Stettler, M.E.J., et al., *Updated Correlation Between Aircraft Smoke Number and Black Carbon Concentration*. Aerosol Science and Technology, 2013. **47**(11): p. 1205-1214.
15. Peter Geigle, K., R. Hadeff, and W. Meier, *Soot Formation and Flame Characterization of an Aero-Engine Model Combustor Burning Ethylene at Elevated Pressure*. Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, 2013. **136**(2).
16. Bonne, U., K.H. Homann, and H.G. Wagner, *Carbon formation in premixed flames*. Symposium (International) on Combustion, 1965. **10**(1): p. 503-512.
17. Calcote, H.F., *Mechanisms of soot nucleation in flames—A critical review*. Combustion and Flame, 1981. **42**: p. 215-242.
18. Haynes, B.S. and H.G. Wagner, *Soot formation*. Progress in Energy and Combustion Science, 1981. **7**(4): p. 229-273.
19. Frenklach, M., *Reaction mechanism of soot formation in flames*. Physical Chemistry Chemical Physics, 2002. **4**(11): p. 2028-2037.
20. Frenklach, M., et al., *Detailed kinetic modeling of soot formation in shock-tube pyrolysis of acetylene*. Symposium (International) on Combustion, 1985. **20**(1): p. 887-901.
21. Melius, C.F., et al., *Reaction mechanisms in aromatic hydrocarbon formation involving the C₅H₅ cyclopentadienyl moiety*. Symposium (International) on Combustion, 1996. **26**(1): p. 685-692.
22. Castaldi, M.J., et al., *Experimental and modeling investigation of aromatic and polycyclic aromatic hydrocarbon formation in a premixed ethylene flame*. Symposium (International) on Combustion, 1996. **26**(1): p. 693-702.
23. Tanzawa, T. and W.C. Gardiner, *Thermal decomposition of ethylene*. Combustion and Flame, 1980. **39**(3): p. 241-253.

24. Sánchez, N.E., et al., *Polycyclic Aromatic Hydrocarbon (PAH) and Soot Formation in the Pyrolysis of Acetylene and Ethylene: Effect of the Reaction Temperature*. Energy & Fuels, 2012. **26**(8): p. 4823-4829.
25. Jin, H., et al., *Kinetic modeling study of benzene and PAH formation in laminar methane flames*. Combustion and Flame, 2015. **162**(5): p. 1692-1711.
26. Roesler, J.F., et al., *Investigating the role of methane on the growth of aromatic hydrocarbons and soot in fundamental combustion processes*. Combustion and Flame, 2003. **134**(3): p. 249-260.
27. Hidaka, Y., et al., *Shock-tube and modeling study of methane pyrolysis and oxidation*. Combustion and Flame, 1999. **118**(3): p. 340-358.
28. Frenklach, M. and H. Wang, *Detailed modeling of soot particle nucleation and growth*. Symposium (International) on Combustion, 1991. **23**(1): p. 1559-1566.
29. Frenklach, M. and H. Wang, *Detailed Mechanism and Modeling of Soot Particle Formation*, in *Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models*, H. Bockhorn, Editor. 1994, Springer Berlin Heidelberg: Berlin, Heidelberg. p. 165-192.
30. D'Anna, A., A. D'Alessio, and P. Minutolo, *Spectroscopic and Chemical Characterization of Soot Inception Processes in Premixed Laminar Flames at Atmospheric Pressure*, in *Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models*, H. Bockhorn, Editor. 1994, Springer Berlin Heidelberg: Berlin, Heidelberg. p. 83-103.
31. Dobbins, R.A. and H. Subramaniasivam, *Soot Precursor Particles in Flames*, in *Soot Formation in Combustion: Mechanisms and Models*, H. Bockhorn, Editor. 1994, Springer Berlin Heidelberg: Berlin, Heidelberg. p. 290-301.
32. Michelsen, H.A., *Probing soot formation, chemical and physical evolution, and oxidation: A review of in situ diagnostic techniques and needs*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(1): p. 717-735.
33. Chung, S.H. and A. Violi, *Insights on the nanoparticle formation process in counterflow diffusion flames*. Carbon, 2007. **45**(12): p. 2400-2410.
34. Harris, S.J. and A.M. Weiner, *Chemical kinetics of soot particle growth*. Annual Review of Physical Chemistry, 1985. **36**(1): p. 31-52.
35. Kronholm, D.F. and J.B. Howard, *Analysis of soot surface growth pathways using published plug-flow reactor data with new particle size distribution measurements and published premixed flame data*. Proceedings of the Combustion Institute, 2000. **28**(2): p. 2555-2561.
36. Öktem, B., et al., *Chemical species associated with the early stage of soot growth in a laminar premixed ethylene–oxygen–argon flame*. Combustion and Flame, 2005. **142**(4): p. 364-373.
37. Megaridis, C.M. and R.A. Dobbins, *Morphological Description of Flame-Generated Materials*. Combustion Science and Technology, 1990. **71**(1-3): p. 95-109.
38. Puri, R., et al., *Aerosol dynamic processes of soot aggregates in a laminar ethene diffusion flame*. Combustion and Flame, 1993. **92**(3): p. 320-333.
39. Wentzel, M., et al., *Transmission electron microscopical and aerosol dynamical characterization of soot aerosols*. Journal of Aerosol Science, 2003. **34**(10): p. 1347-1370.
40. Abid, A.D., et al., *On evolution of particle size distribution functions of incipient soot in premixed ethylene–oxygen–argon flames*. Combustion and Flame, 2008. **154**(4): p. 775-788.
41. Mitchell, P. and M. Frenklach, *Monte carlo simulation of soot aggregation with simultaneous surface growth-why primary particles appear spherical*. Symposium (International) on Combustion, 1998. **27**(1): p. 1507-1514.
42. Morán, J., A. Poux, and J. Yon, *Impact of the competition between aggregation and surface growth on the morphology of soot particles formed in an ethylene laminar premixed flame*. Journal of Aerosol Science, 2021. **152**: p. 105690.
43. Wozniak, M., et al., *Comparison of methods to derive morphological parameters of multi-fractal samples of particle aggregates from TEM images*. Journal of Aerosol Science, 2012. **47**: p. 12-26.
44. Frenklach, M. and J. Warnatz, *Detailed Modeling of PAH Profiles in a Sooting Low-Pressure Acetylene Flame*. Combustion Science and Technology, 1987. **51**(4-6): p. 265-283.
45. Roth, P., O. Brandt, and S. Von Gersum, *High temperature oxidation of suspended soot particles verified by CO and CO₂ measurements*. Symposium (International) on Combustion, 1991. **23**(1): p. 1485-1491.

46. Neoh, K.G., J.B. Howard, and A.F. Sarofim, *Soot Oxidation in Flames*, in *Particulate Carbon: Formation During Combustion*, D.C. Siegla and G.W. Smith, Editors. 1981, Springer US: Boston, MA. p. 261-282.
47. Guo, H., P.M. Anderson, and P.B. Sunderland, *Optimized rate expressions for soot oxidation by OH and O₂*. *Fuel*, 2016. **172**: p. 248-252.
48. Hurt, R.H., A.F. Sarofim, and J.P. Longwell, *Gasification-induced densification of carbons: From soot to form coke*. *Combustion and Flame*, 1993. **95**(4): p. 430-432.
49. Stanmore, B.R., J.F. Brilhac, and P. Gilot, *The oxidation of soot: a review of experiments, mechanisms and models*. *Carbon*, 2001. **39**(15): p. 2247-2268.
50. Köylü, Ü.Ö. and G.M. Faeth, *Structure of overfire soot in buoyant turbulent diffusion flames at long residence times*. *Combustion and Flame*, 1992. **89**(2): p. 140-156.
51. Bescond, A., et al., *Automated Determination of Aggregate Primary Particle Size Distribution by TEM Image Analysis: Application to Soot*. *Aerosol Science and Technology*, 2014. **48**(8): p. 831-841.
52. Mandelbrot, B.B., *Les objets fractals: forme, hasard et dimension*. 1975.
53. Jullien, R. and R. Botet, *Aggregation and fractal aggregates*. *Ann. Telecomm.*, 1987. **41**: p. 343 (short version).
54. Jullien, R., *Aggregation phenomena and fractal aggregates*. *Contemporary Physics*, 1987. **28**(5): p. 477-493.
55. Chandler, M.F., Y. Teng, and U.O. Koylu, *Diesel engine particulate emissions: A comparison of mobility and microscopy size measurements*. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2007. **31**(2): p. 2971-2979.
56. di Stasio, S., *Observation of restructuring of nanoparticle soot aggregates in a diffusion flame by static light scattering*. *Journal of Aerosol Science*, 2001. **32**(4): p. 509-524.
57. Köylü, Ü.Ö., et al., *Fractal and projected structure properties of soot aggregates*. *Combustion and Flame*, 1995. **100**(4): p. 621-633.
58. Tian, K., et al., *Determination of the morphology of soot aggregates using the relative optical density method for the analysis of TEM images*. *Combustion and Flame*, 2006. **144**(4): p. 782-791.
59. Yon, J., et al., *From monomers to agglomerates: A generalized model for characterizing the morphology of fractal-like clusters*. *Journal of Aerosol Science*, 2021. **151**: p. 105628.
60. Friedlander, S.K. and C.S. Wang, *The self-preserving particle size distribution for coagulation by brownian motion*. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1966. **22**(2): p. 126-132.
61. Morán, J., et al., *Monte Carlo Aggregation Code (MCAC) Part 2: Application to soot agglomeration, highlighting the importance of primary particles*. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2020. **575**: p. 274-285.
62. Oh, C. and C.M. Sorensen, *Light scattering study of fractal cluster aggregation near the free molecular regime*. *Journal of Aerosol Science*, 1997. **28**(6): p. 937-957.
63. Sorensen, C.M., J. Cai, and N. Lu, *Light-scattering measurements of monomer size, monomers per aggregate, and fractal dimension for soot aggregates in flames*. *Applied Optics*, 1992. **31**(30): p. 6547-6557.
64. Kempema, N.J. and M.B. Long, *Combined optical and TEM investigations for a detailed characterization of soot aggregate properties in a laminar coflow diffusion flame*. *Combustion and Flame*, 2016. **164**: p. 373-385.
65. Bescond, A., et al., *Soot optical properties determined by analyzing extinction spectra in the visible near-UV: Toward an optical speciation according to constituents and structure*. *Journal of Aerosol Science*, 2016. **101**: p. 118-132.
66. Liu, F., et al., *Review of recent literature on the light absorption properties of black carbon: Refractive index, mass absorption cross section, and absorption function*. *Aerosol Science and Technology*, 2020. **54**(1): p. 33-51.
67. Dalzell, W.H. and A.F. Sarofim, *Optical Constants of Soot and Their Application to Heat-Flux Calculations*. *Journal of Heat Transfer*, 1969. **91**(1): p. 100-104.
68. Chang, H.C. and T.T. Charalampopoulos, *Determination of the wavelength dependence of refractive indices of flame soot*. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 1990. **430**.
69. Köylü, U.O. and G.M. Faeth, *Spectral Extinction Coefficients of Soot Aggregates From Turbulent Diffusion Flames*. *Journal of Heat Transfer*, 1996. **118**(2): p. 415-421.

70. Wu, J.-S., S. Krishnan, and G. Faeth, *Refractive indices at visible wavelengths of soot emitted from buoyant turbulent diffusion flames*. 1997.
71. Ouf, F.X., *Caractérisation d'aérosols émis lors d'incendies.*, in *Physique*. 2006, Université de Rouen.
72. Nemitallah, M.A., et al., *Review of Novel Combustion Techniques for Clean Power Production in Gas Turbines*. *Energy & Fuels*, 2018. **32**(2): p. 979-1004.
73. Zhang, Z., et al., *Experimental study of stratified swirl flame dynamics in a model gas turbine combustor*. *Energy*, 2020. **211**: p. 118699.
74. Huang, Y. and V. Yang, *Bifurcation of flame structure in a lean-premixed swirl-stabilized combustor: transition from stable to unstable flame*. *Combustion and Flame*, 2004. **136**(3): p. 383-389.
75. Lieuwen, T.C. and V. Yang, *Combustion instabilities in gas turbine engines: operational experience, fundamental mechanisms, and modeling*. 2005: American Institute of Aeronautics and Astronautics.
76. Gupta, A.K., D.G. Lilley, and N. Syred, *Swirl flows*. tw, 1984.
77. Syred, N., *A review of oscillation mechanisms and the role of the precessing vortex core (PVC) in swirl combustion systems*. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2006. **32**(2): p. 93-161.
78. Mongia, H.C., et al., *Challenges and Progress in Controlling Dynamics in Gas Turbine Combustors*. *Journal of Propulsion and Power*, 2003. **19**(5): p. 822-829.
79. Han, X., et al., *Flame interactions in a stratified swirl burner: Flame stabilization, combustion instabilities and beating oscillations*. *Combustion and Flame*, 2020. **212**: p. 500-509.
80. Quay, B., et al., *Spatially resolved measurements of soot volume fraction using laser-induced incandescence*. *Combustion and Flame*, 1994. **97**(3): p. 384-392.
81. Santoro, R.J. and J.H. Miller, *Soot particle formation in laminar diffusion flames*. *Langmuir*, 1987. **3**(2): p. 244-254.
82. Santoro, R.J. and H.G. Semerjian, *Soot formation in diffusion flames: Flow rate, fuel species and temperature effects*. *Symposium (International) on Combustion*, 1985. **20**(1): p. 997-1006.
83. Santoro, R.J., H.G. Semerjian, and R.A. Dobbins, *Soot particle measurements in diffusion flames*. *Combustion and Flame*, 1983. **51**: p. 203-218.
84. Santoro, R.J., et al., *The Transport and Growth of Soot Particles in Laminar Diffusion Flames*. *Combustion Science and Technology*, 1987. **53**(2-3): p. 89-115.
85. Coppalle, A. and D. Joyeux, *Temperature and soot volume fraction in turbulent diffusion flames: Measurements of mean and fluctuating values*. *Combustion and Flame*, 1994. **96**(3): p. 275-285.
86. Gomez, A., M.G. Littman, and I. Glassman, *Comparative study of soot formation on the centerline of axisymmetric laminar diffusion flames: Fuel and temperature effects*. *Combustion and Flame*, 1987. **70**(2): p. 225-241.
87. Böhm, H., et al., *The influence of pressure and temperature on soot formation in premixed flames*. *Symposium (International) on Combustion*, 1989. **22**(1): p. 403-411.
88. Cuoci, A., et al., *Soot formation in unsteady counterflow diffusion flames*. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2009. **32**(1): p. 1335-1342.
89. Gülder, Ö.L., *Soot formation in laminar diffusion flames at elevated temperatures*. *Combustion and Flame*, 1992. **88**(1): p. 75-82.
90. Smooke, M.D., et al., *Soot formation in laminar diffusion flames*. *Combustion and Flame*, 2005. **143**(4): p. 613-628.
91. Harris, S.J. and A.M. Weiner, *Surface growth of soot particles in premixed ethylene/air flames*. *Combustion Science and Technology*, 1983. **31**(3-4): p. 155-167.
92. Xuan, Y. and G. Blanquart, *Two-dimensional flow effects on soot formation in laminar premixed flames*. *Combustion and Flame*, 2016. **166**: p. 113-124.
93. Haynes, B.S., et al., *The influence of gaseous additives on the formation of soot in premixed flames*. *Symposium (International) on Combustion*, 1982. **19**(1): p. 1379-1385.
94. Xu, F., P.B. Sunderland, and G.M. Faeth, *Soot formation in laminar premixed ethylene/air flames at atmospheric pressure*. *Combustion and Flame*, 1997. **108**(4): p. 471-493.
95. Betrancourt, C., et al., *Investigation of the size of the incandescent incipient soot particles in premixed sooting and nucleation flames of n-butane using LII, HIM, and 1 nm-SMPS*. *Aerosol Science and Technology*, 2017. **51**(8): p. 916-935.
96. Bladh, H., et al., *Probing the smallest soot particles in low-sooting premixed flames using laser-induced incandescence*. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2015. **35**(2): p. 1843-1850.

97. Desgroux, P., et al., *Comparative study of the soot formation process in a “nucleation” and a “sooting” low pressure premixed methane flame*. Combustion and Flame, 2017. **184**: p. 153-166.
98. Lee, S.-Y., S.R. Turns, and R.J. Santoro, *Measurements of soot, OH, and PAH concentrations in turbulent ethylene/air jet flames*. Combustion and Flame, 2009. **156**(12): p. 2264-2275.
99. Park, O., R.A. Burns, and N.T. Clemens, *Relationship between soot and scalar dissipation rate in the soot-inception region of turbulent non-premixed jet flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 2019. **37**(1): p. 1057-1064.
100. Narayanaswamy, V. and N.T. Clemens, *Simultaneous LII and PIV measurements in the soot formation region of turbulent non-premixed jet flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 2013. **34**(1): p. 1455-1463.
101. Cetegen, B.M. and S. Basu, *Soot topography in a planar diffusion flame wrapped by a line vortex*. Combustion and Flame, 2006. **146**(4): p. 687-697.
102. Franzelli, B., et al., *Numerical investigation of soot-flame-vortex interaction*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(1): p. 753-761.
103. Stöhr, M., C.M. Arndt, and W. Meier, *Transient effects of fuel–air mixing in a partially-premixed turbulent swirl flame*. Proceedings of the Combustion Institute, 2015. **35**(3): p. 3327-3335.
104. Weigand, P., et al., *Investigations of swirl flames in a gas turbine model combustor: I. Flow field, structures, temperature, and species distributions*. Combustion and flame, 2006. **144**(1-2): p. 205-224.
105. Meier, W., X.R. Duan, and P. Weigand, *Investigations of swirl flames in a gas turbine model combustor: II. Turbulence–chemistry interactions*. Combustion and Flame, 2006. **144**(1): p. 225-236.
106. Geigle, K.P., et al., *Experimental Analysis of Soot Formation and Oxidation in a Gas Turbine Model Combustor Using Laser Diagnostics*. Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, 2011. **133**(12).
107. Geigle, K.P., et al., *Flow field characterization of pressurized sooting swirl flames and relation to soot distributions*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(3): p. 3917-3924.
108. Geigle, K.P., et al., *Investigation of soot formation in pressurized swirl flames by laser measurements of temperature, flame structures and soot concentrations*. Proceedings of the Combustion Institute, 2015. **35**(3): p. 3373-3380.
109. Geigle, K.P., et al., *Visualization of soot inception in turbulent pressurized flames by simultaneous measurement of laser-induced fluorescence of polycyclic aromatic hydrocarbons and laser-induced incandescence, and correlation to OH distributions*. Applied Physics B, 2015. **119**(4): p. 717-730.
110. Chatterjee, S. and Ö.L. Gülder, *Soot concentration and primary particle size in swirl-stabilized non-premixed turbulent flames of ethylene and air*. Experimental Thermal and Fluid Science, 2018. **95**: p. 73-80.
111. Meyer, T.R., et al., *Simultaneous planar laser-induced incandescence, OH planar laser-induced fluorescence, and droplet Mie scattering in swirl-stabilized spray flames*. Applied optics, 2005. **44**(3): p. 445-454.
112. Mulla, I.A. and B. Renou, *Simultaneous imaging of soot volume fraction, PAH, and OH in a turbulent n-heptane spray flame*. Combustion and Flame, 2019. **209**: p. 452-466.
113. Roussillo, M., et al., *Experimental investigation of soot production in a confined swirled flame operating under perfectly premixed rich conditions*. Proceedings of the Combustion Institute, 2019. **37**(1): p. 893-901.
114. Malbois, P., *Experimental investigation by laser diagnostics of the kerosene/air mixing and high-pressure swirl-stabilized lean premixed combustion from a low-NO_x injection system*. 2017, Normandie Université.
115. Karataş, A.E. and Ö.L. Gülder, *Soot formation in high pressure laminar diffusion flames*. Progress in Energy and Combustion Science, 2012. **38**(6): p. 818-845.
116. Amin, H.M. and W.L. Roberts, *Soot measurements by two angle scattering and extinction in an N₂-diluted ethylene/air counterflow diffusion flame from 2 to 5 atm*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(1): p. 861-869.
117. Sediako, A.D., et al., *In Situ Imaging Studies of Combustor Pressure Effects on Soot Oxidation*. Energy & Fuels, 2019. **33**(2): p. 1582-1589.

118. Tsurikov, M.S., et al., *LASER-BASED INVESTIGATION OF SOOT FORMATION IN LAMINAR PREMIXED FLAMES AT ATMOSPHERIC AND ELEVATED PRESSURES*. Combustion Science and Technology, 2005. **177**(10): p. 1835-1862.
119. Boyette, W., S. Chowdhury, and W. Roberts, *Soot particle size distribution functions in a turbulent non-premixed ethylene-nitrogen flame*. Flow, Turbulence and Combustion, 2017. **98**(4): p. 1173-1186.
120. Zhao, B., et al., *Analysis of Soot Nanoparticles in a Laminar Premixed Ethylene Flame by Scanning Mobility Particle Sizer*. Aerosol Science and Technology, 2003. **37**(8): p. 611-620.
121. Kondo, K., et al., *Uncertainty in Sampling and TEM Analysis of Soot Particles in Diesel Spray Flame*. 2013, SAE International.
122. Ouf, F.-X., et al., *Influence of Sampling and Storage Protocol on Fractal Morphology of Soot Studied by Transmission Electron Microscopy*. Aerosol Sci. Tech., 2010. **44**(11): p. 1005 - 1017.
123. Viskup, R., et al., *Fast detection of transient emission from diesel engine using optical and differential mobility spectrometer method*. tm-Technisches Messen, 2011. **78**(11): p. 520-526.
124. Keskinen, J., K. Pietarinen, and M. Lehtimäki, *Electrical low pressure impactor*. Journal of Aerosol Science, 1992. **23**(4): p. 353-360.
125. Marjamäki, M., et al., *PERFORMANCE EVALUATION OF THE ELECTRICAL LOW-PRESSURE IMPACTOR (ELPI)*. Journal of Aerosol Science, 2000. **31**(2): p. 249-261.
126. Miyashita, K., et al., *Tem analysis of soot particles sampled from gasoline direction injection engine exhaust at different fuel injection timings*. 2015, SAE Technical Paper.
127. Beaucage, G., *Approximations leading to a unified exponential/power-law approach to small-angle scattering*. Journal of Applied Crystallography, 1995. **28**(6): p. 717-728.
128. Di Stasio, S., et al., *Synchrotron SAXS< in situ> identification of three different size modes for soot nanoparticles in a diffusion flame*. Carbon, 2006. **44**(7): p. 1267-1279.
129. Yon, J., et al., *Investigation of soot oxidation by coupling LII, SAXS and scattering measurements*. Combustion and Flame, 2018. **190**: p. 441-453.
130. Wang, H., et al., *Small-angle neutron scattering of soot formed in laminar premixed ethylene flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 2002. **29**(2): p. 2749-2757.
131. Le, K.C., et al., *Raman spectroscopy of mini-CAST soot with various fractions of organic compounds: Structural characterization during heating treatment from 25 °C to 1000 °C*. Combustion and Flame, 2019. **209**: p. 291-302.
132. Hayashida, K., S. Nagaoka, and H. Ishitani, *Growth and oxidation of graphitic crystallites in soot particles within a laminar diffusion flame*. Fuel, 2014. **128**: p. 148-154.
133. Saffaripour, M., et al., *Raman spectroscopy and TEM characterization of solid particulate matter emitted from soot generators and aircraft turbine engines*. Aerosol Science and Technology, 2017. **51**(4): p. 518-531.
134. Le, K.C., et al., *Direct observation of aliphatic structures in soot particles produced in low-pressure premixed ethylene flames via online Raman spectroscopy*. Proceedings of the Combustion Institute, 2019. **37**(1): p. 869-876.
135. Faccinetto, A., et al., *High-sensitivity detection of polycyclic aromatic hydrocarbons adsorbed onto soot particles using laser desorption/laser ionization/time-of-flight mass spectrometry: An approach to studying the soot inception process in low-pressure flames*. Combustion and Flame, 2011. **158**(2): p. 227-239.
136. Weilmünster, P., A. Keller, and K.H. Homann, *Large molecules, radicals, ions, and small soot particles in fuel-rich hydrocarbon flames: Part I: positive ions of polycyclic aromatic hydrocarbons(PAH) in low-pressure premixed flames of acetylene and oxygen*. Combustion and Flame, 1999. **116**(1): p. 62-83.
137. Kamphus, M., M. Braun-Unkhoff, and K. Kohse-Höinghaus, *Formation of small PAHs in laminar premixed low-pressure propene and cyclopentene flames: Experiment and modeling*. Combustion and Flame, 2008. **152**(1): p. 28-59.
138. Li, Y., et al., *An experimental study of the rich premixed ethylbenzene flame at low pressure*. Proceedings of the Combustion Institute, 2009. **32**(1): p. 647-655.
139. Dobbins, R.A., R.A. Fletcher, and W. Lu, *Laser microprobe analysis of soot precursor particles and carbonaceous soot*. Combustion and Flame, 1995. **100**(1): p. 301-309.
140. Apicella, B., et al., *Mass spectrometric analysis of large PAH in a fuel-rich ethylene flame*. Proceedings of the Combustion Institute, 2007. **31**(1): p. 547-553.

141. Happold, J., H.-H. Grotheer, and M. Aigner, *Distinction of gaseous soot precursor molecules and soot precursor particles through photoionization mass spectrometry*. Rapid Communications in Mass Spectrometry, 2007. **21**(7): p. 1247-1254.
142. Commodo, M., et al., *Illuminating the earliest stages of the soot formation by photoemission and Raman spectroscopy*. Combustion and Flame, 2017. **181**: p. 188-197.
143. Kirchner, U., et al., *Single particle MS, SNMS, SIMS, XPS, and FTIR spectroscopic analysis of soot particles during the AIDA campaign*. Journal of Aerosol Science, 2003. **34**(10): p. 1323-1346.
144. Reilly, P.T.A., et al., *Direct observation of the evolution of the soot carbonization process in an acetylene diffusion flame via real-time aerosol mass spectrometry*. Combustion and Flame, 2000. **122**(1): p. 90-104.
145. Palotás, Á.B., et al., *Soot morphology: An application of image analysis in high - resolution transmission electron microscopy*. Microscopy research and technique, 1996. **33**(3): p. 266-278.
146. Barone, A.C., A. D'Alessio, and A. D'Anna, *Morphological characterization of the early process of soot formation by atomic force microscopy*. Combustion and Flame, 2003. **132**(1): p. 181-187.
147. Okyay, G., et al., *Soot aggregate complex morphology: 3D geometry reconstruction by SEM tomography applied on soot issued from propane combustion*. Journal of Aerosol Science, 2016. **93**: p. 63-79.
148. Yon, J., et al., *Examination of wavelength dependent soot optical properties of diesel and diesel/rapeseed methyl ester mixture by extinction spectra analysis and LII measurements*. Applied Physics B, 2011. **104**(2): p. 253-271.
149. De Falco, G., et al., *Probing soot structure and electronic properties by optical spectroscopy*. Fuel, 2020. **259**: p. 116244.
150. Minutolo, P., G. Gambi, and A. D'Alessio, *The optical band gap model in the interpretation of the UV-visible absorption spectra of rich premixed flames*. Symposium (International) on Combustion, 1996. **26**(1): p. 951-957.
151. Bladh, H., et al., *Optical soot characterization using two-color laser-induced incandescence (2C-LII) in the soot growth region of a premixed flat flame*. Proceedings of the Combustion Institute, 2011. **33**(1): p. 641-648.
152. Snelling, D.R., et al., *Determination of the soot absorption function and thermal accommodation coefficient using low-fluence LII in a laminar coflow ethylene diffusion flame*. Combustion and Flame, 2004. **136**(1): p. 180-190.
153. Török, S., et al., *Investigation of the absorption Ångström exponent and its relation to physicochemical properties for mini-CAST soot*. Aerosol Science and Technology, 2018. **52**(7): p. 757-767.
154. Wei, Y., et al., *Light Scattering and Extinction Measurements Combined with Laser-Induced Incandescence for the Real-Time Determination of Soot Mass Absorption Cross Section*. Analytical Chemistry, 2013. **85**(19): p. 9181-9188.
155. Andrews, G.E., et al., *Diesel Particle Size Distribution: The Conversion Of Particle Number Size Distribution To Mass Distribution*. 2001, SAE International.
156. Van Gulijk, C., et al., *Measuring diesel soot with a scanning mobility particle sizer and an electrical low-pressure impactor: performance assessment with a model for fractal-like agglomerates*. Journal of Aerosol Science, 2004. **35**(5): p. 633-655.
157. Yon, J., A. Bescond, and F.X. Ouf, *A simple semi-empirical model for effective density measurements of fractal aggregates*. Journal of Aerosol Science, 2015. **87**: p. 28-37.
158. Jenkins, T.P. and R.K. Hanson, *Soot pyrometry using modulated absorption/emission*. Combustion and Flame, 2001. **126**(3): p. 1669-1679.
159. Legros, G., et al., *Simultaneous soot temperature and volume fraction measurements in axis-symmetric flames by a two-dimensional modulated absorption/emission technique*. Combustion and Flame, 2015. **162**(6): p. 2705-2719.
160. Dobbins, R. and C. Megaridis, *Morphology of flame-generated soot as determined by thermophoretic sampling*. Langmuir, 1987. **3**(2): p. 254-259.
161. Delhay, D., et al., *The MERMOSE project: Characterization of particulate matter emissions of a commercial aircraft engine*. Journal of Aerosol Science, 2017. **105**: p. 48-63.

162. Wang, C., et al., *Automated determination of size and morphology information from soot transmission electron microscope (TEM)-generated images*. Journal of Nanoparticle Research, 2016. **18**(5): p. 127.
163. Bohren, C.F. and D.R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*. 2008: John Wiley & Sons.
164. Purcell, E.M. and C.R. Pennypacker, *Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains*. The Astrophysical Journal, 1973. **186**: p. 705-714.
165. Mishchenko, M.I., L.D. Travis, and D.W. Mackowski, *T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles: a review*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1996. **55**(5): p. 535-575.
166. Xu, Y.-I., *Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres*. Applied optics, 1995. **34**(21): p. 4573-4588.
167. Hulst, H.C. and H.C. van de Hulst, *Light scattering by small particles*. 1981: Courier Corporation.
168. Köylü, U.O. and G. Faeth, *Radiative properties of flame-generated soot*. 1993.
169. Dobbins, R.A. and C.M. Megaridis, *Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates*. Applied Optics, 1991. **30**(33): p. 4747-4754.
170. Oltmann, H., J. Reimann, and S. Will, *Wide-angle light scattering (WALS) for soot aggregate characterization*. Combustion and Flame, 2010. **157**(3): p. 516-522.
171. De Iuliis, S., et al., *Determination of soot parameters by a two-angle scattering-extinction technique in an ethylene diffusion flame*. Applied Optics, 1998. **37**(33): p. 7865-7874.
172. Burr, D., et al., *Determination of the soot aggregate size distribution from elastic light scattering through Bayesian inference*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2011. **112**(6): p. 1099-1107.
173. Link, O., et al., *Development of absolute intensity multi-angle light scattering for the determination of polydisperse soot aggregate properties*. Proceedings of the Combustion Institute, 2011. **33**(1): p. 847-854.
174. Huber, F., S. Will, and K. Daun, *Sizing aerosolized fractal nanoparticle aggregates through Bayesian analysis of wide-angle light scattering (WALS) data*. Vol. 184. 2016.
175. Köylü, U.O. and G. Faeth, *Optical properties of overfire soot in buoyant turbulent diffusion flames at long residence times*. 1994.
176. Iyer, S.S., et al., *Determination of soot scattering coefficient from extinction and three-angle scattering in a laminar diffusion flame*. Combustion and flame, 2007. **149**(1-2): p. 206-216.
177. Caumont-Prim, C., et al., *Measurement of aggregates' size distribution by angular light scattering*. Vol. 89. 2011.
178. Michelsen, H., et al., *Laser-induced incandescence: Particulate diagnostics for combustion, atmospheric, and industrial applications*. Progress in Energy and Combustion Science, 2015. **51**: p. 2-48.
179. Lefevre, G., *Characterization of the radiative properties of soot nanoparticles in the presence of organic compounds*. 2018, Normandie Université.
180. Michelsen, H.A., et al., *Modeling laser-induced incandescence of soot: a summary and comparison of LII models*. Applied Physics B, 2007. **87**(3): p. 503-521.
181. Chen, Y., et al., *Single-camera, single-shot, time-resolved laser-induced incandescence decay imaging*. Optics Letters, 2018. **43**(21): p. 5363-5366.
182. Hashimoto, N., et al., *Primary soot particle distributions in a combustion field of 4 kW pulverized coal jet burner measured by time resolved laser induced incandescence (TiRe-LII)*. Journal of Thermal Science and Technology, 2016. **11**(3): p. JTST0049-JTST0049.
183. Sun, Z.W., et al., *Single-shot, Time-Resolved planar Laser-Induced Incandescence (TiRe-LII) for soot primary particle sizing in flames*. Proceedings of the Combustion Institute, 2015. **35**(3): p. 3673-3680.
184. Chen, L., et al., *Determination of soot particle size using time-gated laser-induced incandescence images*. Applied Physics B, 2017. **123**(4): p. 96.
185. Hadeif, R., et al., *The concept of 2D gated imaging for particle sizing in a laminar diffusion flame*. Applied Physics B, 2013. **112**(3): p. 395-408.
186. Mansmann, R., et al., *LIISim: a modular signal processing toolbox for laser-induced incandescence measurements*. Applied Physics B, 2018. **124**(4): p. 69.

187. Liu, F., G.J. Smallwood, and D.R. Snelling, *Effects of primary particle diameter and aggregate size distribution on the temperature of soot particles heated by pulsed lasers*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2005. **93**(1-3): p. 301-312.
188. Daun, K.J., et al., *Determining aerosol particle size distributions using time-resolved laser-induced incandescence*. Applied Physics B, 2007. **87**(2): p. 363-372.
189. Menkiel, B., et al., *Measurement of in-cylinder soot particles and their distribution in an optical HSDI diesel engine using time resolved laser induced incandescence (TR-LII)*. Combustion and flame, 2012. **159**(9): p. 2985-2998.
190. Snelling, D.R., et al., *In-Situ Real-Time Characterization of Particulate Emissions from a Diesel Engine Exhaust by Laser-Induced Incandescence*. 2000, SAE International.
191. Michelsen, H.A., *Understanding and predicting the temporal response of laser-induced incandescence from carbonaceous particles*. The Journal of Chemical Physics, 2003. **118**(15): p. 7012-7045.
192. Kuhlmann, S.-A., J. Reimann, and S. Will, *On heat conduction between laser-heated nanoparticles and a surrounding gas*. Journal of aerosol science, 2006. **37**(12): p. 1696-1716.
193. Cenker, E. and W.L. Roberts, *Quantitative effects of rapid heating on soot-particle sizing through analysis of two-pulse LII*. Applied Physics B, 2017. **123**(3): p. 74.
194. Olofsson, N.-E., et al., *Soot sublimation studies in a premixed flat flame using laser-induced incandescence (LII) and elastic light scattering (ELS)*. Applied Physics B, 2013. **112**(3): p. 333-342.
195. Schraml, S., et al., *Soot temperature measurements and implications for time-resolved laser-induced incandescence (TIRE-LII)*. Combustion and Flame, 2000. **120**(4): p. 439-450.
196. Axelsson, B., R. Collin, and P.-E. Bengtsson, *Laser-induced incandescence for soot particle size and volume fraction measurements using on-line extinction calibration*. Applied Physics B, 2001. **72**(3): p. 367-372.
197. de Francqueville, L., G. Bruneaux, and B. Thirouard, *Soot Volume Fraction Measurements in a Gasoline Direct Injection Engine by Combined Laser Induced Incandescence and Laser Extinction Method*. SAE International Journal of Engines, 2010. **3**(1): p. 163-182.
198. Simonsson, J., et al., *In-situ soot characterization of propane flames and influence of additives in a 100 kW oxy-fuel furnace using two-dimensional laser-induced incandescence*. Proceedings of the Combustion Institute, 2019. **37**(1): p. 833-840.
199. Sun, Z.W., et al., *Planar laser-induced incandescence of turbulent sooting flames: the influence of beam steering and signal trapping*. Applied Physics B, 2015. **119**(4): p. 731-743.
200. Roussillo, M., *Thèse suies*. 2019.
201. De Iuliis, S., F. Cignoli, and G. Zizak, *Two-color laser-induced incandescence (2C-LII) technique for absolute soot volume fraction measurements in flames*. Applied Optics, 2005. **44**(34): p. 7414-7423.
202. Snelling, D.R., et al., *A calibration-independent laser-induced incandescence technique for soot measurement by detecting absolute light intensity*. Applied Optics, 2005. **44**(31): p. 6773-6785.
203. Crosland, B.M., M.R. Johnson, and K.A. Thomson, *Analysis of uncertainties in instantaneous soot volume fraction measurements using two-dimensional, auto-compensating, laser-induced incandescence (2D-AC-LII)*. Applied Physics B, 2011. **102**(1): p. 173-183.
204. De Iuliis, S., et al., *2D soot volume fraction imaging in an ethylene diffusion flame by two-color laser-induced incandescence (2C-LII) technique and comparison with results from other optical diagnostics*. Proceedings of the Combustion Institute, 2007. **31**(1): p. 869-876.
205. Reimann, J., S.A. Kuhlmann, and S. Will, *2D aggregate sizing by combining laser-induced incandescence (LII) and elastic light scattering (ELS)*. Vol. 96. 2009. 583-592.
206. Bejaoui, S., et al., *Laser induced fluorescence spectroscopy of aromatic species produced in atmospheric sooting flames using UV and visible excitation wavelengths*. Combustion and Flame, 2014. **161**(10): p. 2479-2491.
207. Roy, S., J.R. Gord, and A.K. Patnaik, *Recent advances in coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy: Fundamental developments and applications in reacting flows*. Progress in Energy and Combustion Science, 2010. **36**(2): p. 280-306.
208. Ladommatos, N. and H. Zhao, *A Guide to Measurement of Flame Temperature and Soot Concentration in Diesel Engines Using the Two-Colour Method Part I: Principles*. 1994, SAE International.

209. Zhao, F.-Q. and H. Hiroyasu, *The applications of laser Rayleigh scattering to combustion diagnostics*. Progress in energy and combustion science, 1993. **19**(6): p. 447-485.
210. A.Bresson, *Techniques d'imagerie quantitatives : fluorescence induite par laser appliquée aux écoulements et aux combustions*. 2000.
211. Chi, Z., et al., *Laser-induced fluorescence studies of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) vapors at high temperatures*. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2001. **57**(7): p. 1377-1384.
212. Thöny, A. and M.J. Rossi, *Gas-phase UV spectroscopy of anthracene, xanthone, pyrene, 1-bromopyrene and 1, 2, 4-trichlorobenzene at elevated temperatures*. Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry, 1997. **104**(1-3): p. 25-33.
213. Ossler, F., T. Metz, and M. Aldén, *Picosecond laser-induced fluorescence from gas-phase polycyclic aromatic hydrocarbons at elevated temperatures. II. Flame-seeding measurements*. Applied Physics B, 2001. **72**(4): p. 479-489.
214. Ossler, F., T. Metz, and M. Aldén, *Picosecond laser-induced fluorescence from gas-phase polycyclic aromatic hydrocarbons at elevated temperatures. I. Cell measurements*. Applied Physics B, 2001. **72**(4): p. 465-478.
215. Berlman, I., *Handbook of Fluorescence Spectra of Aromatic Molecules*, 1971: p. 345.
216. Sgro, L., et al., *UV-visible spectroscopy of organic carbon particulate sampled from ethylene/air flames*. Chemosphere, 2001. **42**(5-7): p. 671-680.
217. Ciajolo, A., et al., *Fluorescence spectroscopy of aromatic species produced in rich premixed ethylene flames*. Chemosphere, 2001. **42**(5-7): p. 835-841.
218. Vander Wal, R.L., K.A. Jensen, and M.Y. Choi, *Simultaneous laser-induced emission of soot and polycyclic aromatic hydrocarbons within a gas-jet diffusion flame*. Combustion and Flame, 1997. **109**(3): p. 399-414.
219. Xiao, J., E. Austin, and W. Roberts, *Relative polycyclic aromatic hydrocarbon concentrations in unsteady counterflow diffusion flames*. Combustion science and technology, 2005. **177**(4): p. 691-713.
220. Coe, D., B. Haynes, and J. Steinfeld, *Identification of a source of argon-ion-laser excited fluorescence in sooting flames*. Combustion and Flame, 1981. **43**: p. 211-214.
221. Raffel, M., et al., *Particle image velocimetry: a practical guide*. 2018: Springer.
222. Mazur, M., et al. *Planar Velocity Measurements at 100 kHz in Gas Turbine Combustors With a Continuous Laser Source*. in *Turbo Expo: Power for Land, Sea, and Air*. 2017. American Society of Mechanical Engineers.
223. Skovorodko, P.A., et al., *Experimental and numerical study of thermocouple-induced perturbations of the methane flame structure*. Combustion and flame, 2012. **159**(3): p. 1009-1015.
224. Bradley, D. and K. Matthews, *Measurement of high gas temperatures with fine wire thermocouples*. Journal of Mechanical Engineering Science, 1968. **10**(4): p. 299-305.
225. De Falco, G., et al., *The evolution of soot particles in premixed and diffusion flames by thermophoretic particle densitometry*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(1): p. 763-770.
226. Farrow, R.L., P. Mattern, and L.A. Rahn, *Comparison between CARS and corrected thermocouple temperature measurements in a diffusion flame*. Applied Optics, 1982. **21**(17): p. 3119-3125.
227. Sweeney, M.S., et al., *The structure of turbulent stratified and premixed methane/air flames I: Non-swirling flows*. Combustion and Flame, 2012. **159**(9): p. 2896-2911.
228. Sweeney, M.S., et al., *The structure of turbulent stratified and premixed methane/air flames II: Swirling flows*. Combustion and Flame, 2012. **159**(9): p. 2912-2929.
229. Luque, J. and D.R. Crosley, *LIFBASE: Database and spectral simulation program (version 1.5)*. SRI international report MP, 1999. **99**(009).
230. <http://www.sootgenerator.com/>.
231. Moore, R.H., et al., *Mapping the operation of the miniature combustion aerosol standard (Mini-CAST) soot generator*. Aerosol Science and Technology, 2014. **48**(5): p. 467-479.
232. Zack, G.W., W.E. Rogers, and S.A. Latt, *Automatic measurement of sister chromatid exchange frequency*. Journal of Histochemistry & Cytochemistry, 1977. **25**(7): p. 741-753.
233. Tian, B., et al., *High spatial resolution laser cavity extinction and laser-induced incandescence in low-soot-producing flames*. Applied Physics B, 2015. **120**(3): p. 469-487.

234. Liu, F., et al., *Sensitivity and relative error analyses of soot temperature and volume fraction determined by two-color LII*. Applied Physics B, 2009. **96**(4): p. 623-636.
235. Cenker, E., et al., *Sensitivity analysis for soot particle size imaging with laser-induced incandescence at high pressure*. Applied Physics B, 2015. **119**(4): p. 745-763.
236. Cenker, E., *Imaging measurements of soot particle size and soot volume fraction with laser-induced incandescence at Diesel engine conditions*. 2014, Ecole Centrale Paris.
237. Will, S., et al., *Performance characteristics of soot primary particle size measurements by time-resolved laser-induced incandescence*. Applied Optics, 1998. **37**(24): p. 5647-5658.
238. Altenhoff, M., et al., *Soot aggregate sizing in an extended premixed flame by high-resolution two-dimensional multi-angle light scattering (2D-MALS)*. Applied Physics B, 2019. **125**(9): p. 176.
239. Ma, B. and M.B. Long, *Combined soot optical characterization using 2-D multi-angle light scattering and spectrally resolved line-of-sight attenuation and its implication on soot color-ratio pyrometry*. Applied Physics B, 2014. **117**(1): p. 287-303.
240. Malbois, P., et al., *Quantitative measurements of fuel distribution and flame structure in a lean-premixed aero-engine injection system by kerosene/OH-PLIF measurements under high-pressure conditions*. Proceedings of the Combustion Institute, 2018.
241. Bescond, A., et al., *Numerical investigation of the possibility to determine the primary particle size of fractal aggregates by measuring light depolarization*. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2013. **126**: p. 130-139.
242. Amin, H.M.F. and W.L. Roberts, *Soot measurements by two angle scattering and extinction in an N₂-diluted ethylene/air counterflow diffusion flame from 2 to 5atm*. Proceedings of the Combustion Institute, 2017. **36**(1): p. 861-869.
243. Ayoola, B.O., et al., *Spatially resolved heat release rate measurements in turbulent premixed flames*. Combustion and Flame, 2006. **144**(1): p. 1-16.
244. North, G.L. and D.A. Santavicca, *The Fractal Nature of Premixed Turbulent Flames*. Combustion Science and Technology, 1990. **72**(4-6): p. 215-232.
245. Brasil, A., T.L. Farias, and M. Carvalho, *A recipe for image characterization of fractal-like aggregates*. Journal of Aerosol Science, 1999. **30**(10): p. 1379-1389.
246. Meyer, T.R., et al., *High-speed, three-dimensional tomographic laser-induced incandescence imaging of soot volume fraction in turbulent flames*. Optics Express, 2016. **24**(26): p. 29547-29555.